



# Nanostructures magnétiques auto-organisées: le cas du cobalt sur les surfaces vicinales de l'or (111)

Grégory Baudot

## ► To cite this version:

Grégory Baudot. Nanostructures magnétiques auto-organisées: le cas du cobalt sur les surfaces vicinales de l'or (111). Matière Condensée [cond-mat]. Université Paris-Diderot - Paris VII, 2003. Français. NNT: . tel-00004422

**HAL Id: tel-00004422**

**<https://theses.hal.science/tel-00004422>**

Submitted on 30 Jan 2004

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

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

**THÈSE de DOCTORAT  
de l'UNIVERSITÉ DENIS DIDEROT (PARIS VII)**

Spécialité :  
**Sciences des Matériaux**

présentée par :  
**Grégory Baudot**

pour obtenir le titre de :  
**DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ PARIS VII**

**Nano-structures magnétiques auto-organisées :  
le cas du cobalt sur les surfaces  
vicinales de l'or (111)**

Soutenue le 16 Décembre 2003 devant le jury composé de :

|     |                          |                   |
|-----|--------------------------|-------------------|
| M.  | <b>P. BEAUVILLAIN</b>    | <b>Rapporteur</b> |
| M.  | <b>A. FERT</b>           | <b>Président</b>  |
| M.  | <b>J.C. LEVY</b>         | <b>Examineur</b>  |
| Mme | <b>S. ROUSSET</b>        | <b>Directrice</b> |
| Mme | <b>M. SAUVAGE-SIMKIN</b> | <b>Invitée</b>    |
| M.  | <b>G. TREGLIA</b>        | <b>Examineur</b>  |
| M.  | <b>P. ZEPPEFELD</b>      | <b>Rapporteur</b> |



## Résumé

La croissance et l'étude des propriétés des nano-structures magnétiques est un enjeu important du point de vue fondamental et technologique. De par leur taille, les nano-structures sont susceptibles de présenter des structures et des propriétés magnétiques nouvelles. Les surfaces vicinales permettent de maîtriser la densité et la direction des marches atomiques et constituent des substrats nano-structurés à 1D. L'auto-organisation sur les surfaces cristallines fournit des substrats avec des nano-structurations que l'on peut combiner à un réseau de marches pour stabiliser un ordre 2D à grande distance.

Une étude STM à température variable et des simulations numériques nous permettent d'étudier la croissance organisée de nano-plots de cobalt sur des substrats vicinaux d'or reconstruits et de déterminer les mécanismes atomiques responsables de l'organisation de la croissance. Sur ces nano-particules mono-disperses nous menons des mesures magnétiques par effet Kerr magnéto-optique MOKE. Nous caractérisons ainsi le super-paramagnétisme des nano-plots de cobalt et nous en mesurons l'énergie d'anisotropie.

Dans un second temps nous étudions les modifications structurales induites par les marches pour des films de cobalt déposés sur des substrats d'or vicinaux. Nous présentons des mesures de diffraction des rayons X interprétées dans le cadre d'un modèle probabiliste d'empilement de plans (111). Nous déterminons précisément la structure des films minces et montrons qu'ils présentent une structure cubique à faces centrées. Le magnétisme de ces couches de cobalt mesuré par MOKE révèle des propriétés d'anisotropie magnétique liées à leur structure cubique et à la vicinalité de l'interface.

## Abstract

The experimental study of nanostructures is one field of great interest in actual solid state physics since nanostructures are expected to exhibit some new structural and physical properties. Vicinal surfaces consisting in a regular array of atomic steps give the opportunity either to obtain a 1D nanostructured substrates or to stabilize some surface reconstructions to provide 2D long-range ordered nanopatterned substrates.

We first present a complete study of the organized growth of cobalt nanodots on reconstructed vicinal gold substrates. A variable temperature tunnel microscopy study coupled to multi-scaled simulations allows us to elucidate the atomic mechanisms of the organized growth. We perform magneto-optical measurements on these cobalt nano-dots in order to study their super-paramagnetism behavior and to determine their magnetic anisotropy.

In a second time we point out the dramatic effect of the atomic steps on the cobalt layer structure. We perform grazing incidence X ray diffraction to characterize the structure of ultra-thin cobalt films deposited on gold vicinal substrate with a high density of steps. In the frame of a probabilistic model of stacking faults we interpret these measurements and conclude to a face centered cubic structure for the cobalt

films. The magnetic properties of these cobalt layers reveal a modified magnetic anisotropy that we link to their structure and to the vicinity of the substrate.



# Table des matières

|                                                                                                   |           |
|---------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| <b>Introduction générale</b>                                                                      | <b>1</b>  |
| <b>1 Auto-organisation des surfaces et magnétisme des nano-structures</b>                         | <b>7</b>  |
| 1.1 Introduction . . . . .                                                                        | 7         |
| 1.2 Les substrats auto-organisés et leur application à la croissance de nano-structures . . . . . | 8         |
| 1.2.1 Le phénomène d'auto-organisation sur les surfaces cristallines                              | 8         |
| 1.2.2 Les réseaux de dislocations sur les surfaces cristallines . . . . .                         | 9         |
| 1.2.3 La croissance de nano-objets sur les surfaces auto-organisées .                             | 12        |
| 1.2.4 Les surfaces vicinales de Au(111) : des substrats nano-structurés                           | 15        |
| 1.3 Nano-structures magnétiques . . . . .                                                         | 20        |
| 1.3.1 Introduction : l'énergie d'un système ferromagnétique . . . . .                             | 20        |
| 1.3.2 Les films ultra-minces . . . . .                                                            | 22        |
| 1.3.3 Les nano-plots magnétiques . . . . .                                                        | 26        |
| 1.4 Conclusion et motivation pour le système Co/Au vicinal . . . . .                              | 31        |
| <b>2 Techniques expérimentales</b>                                                                | <b>33</b> |
| 2.1 Dispositif expérimental et environnement UHV . . . . .                                        | 33        |
| 2.1.1 Le bâti ultra-vide . . . . .                                                                | 33        |
| 2.1.2 Analyse chimique et structurale des surfaces . . . . .                                      | 34        |
| 2.1.3 Réalisation et préparation des échantillons . . . . .                                       | 36        |
| 2.2 Microscopie à effet tunnel (STM) . . . . .                                                    | 38        |
| 2.2.1 Principe du STM . . . . .                                                                   | 38        |
| 2.2.2 Applications du STM . . . . .                                                               | 38        |
| 2.2.3 STM à température variable . . . . .                                                        | 40        |
| 2.3 Diffraction des rayons X en incidence rasante (GIXD) . . . . .                                | 40        |
| 2.3.1 Principes . . . . .                                                                         | 41        |
| 2.3.2 Dispositif expérimental . . . . .                                                           | 42        |
| 2.4 Effet Kerr magnéto-optique (MOKE) . . . . .                                                   | 43        |
| 2.4.1 Présentation de l'effet Kerr magnéto-optique . . . . .                                      | 43        |
| 2.4.2 Le MOKE appliqué à l'étude de nano-structures magnétiques .                                 | 46        |

|          |                                                                                                                         |           |
|----------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| 2.4.3    | Développement d'une enceinte de mesures magnéto-optiques en ultravide . . . . .                                         | 50        |
| 2.4.4    | Conclusion . . . . .                                                                                                    | 54        |
| <b>3</b> | <b>Croissance organisée des nano-plots de cobalt sur les surfaces vicinales de Au(111)</b>                              | <b>55</b> |
| 3.1      | Introduction . . . . .                                                                                                  | 55        |
| 3.2      | Les substrats vicinaux et reconstruits : Au(788) et Au(11,12,12) . . .                                                  | 56        |
| 3.3      | Croissance organisée des plots de cobalt à température ambiante avec un ordre à grande distance . . . . .               | 58        |
| 3.3.1    | Croissance organisée de Co/Au(788) étudiée par STM . . . . .                                                            | 58        |
| 3.3.2    | Anisotropie des plots et suivi de la croissance par RAS . . . . .                                                       | 63        |
| 3.3.3    | Conclusion . . . . .                                                                                                    | 69        |
| 3.4      | Optimisation de l'ordre local du réseau de plots : le rôle de la température . . . . .                                  | 70        |
| 3.4.1    | Croissance homogène à chaud . . . . .                                                                                   | 70        |
| 3.4.2    | Autour de la température ambiante . . . . .                                                                             | 71        |
| 3.4.3    | Dépôts à froid étudiés à température ambiante . . . . .                                                                 | 72        |
| 3.5      | Détermination des mécanismes atomiques de la croissance organisée . .                                                   | 75        |
| 3.5.1    | Etude STM in-situ de la croissance organisée à froid . . . . .                                                          | 75        |
| 3.5.2    | Simulations Monte Carlo . . . . .                                                                                       | 81        |
| 3.6      | Conclusions et perspectives . . . . .                                                                                   | 86        |
| <b>4</b> | <b>Super-paramagnétisme des plots de cobalt auto-organisés sur les vicinales de Au(111) : étude couplée STM et MOKE</b> | <b>89</b> |
| 4.1      | Introduction . . . . .                                                                                                  | 89        |
| 4.2      | Super-paramagnétisme de nano-particules à anisotropie uniaxiale . . .                                                   | 90        |
| 4.2.1    | Présentation du système . . . . .                                                                                       | 91        |
| 4.2.2    | Susceptibilité à l'équilibre . . . . .                                                                                  | 92        |
| 4.2.3    | Susceptibilité dynamique . . . . .                                                                                      | 93        |
| 4.2.4    | Super-paramagnétisme d'une assemblée de particules . . . . .                                                            | 97        |
| 4.3      | Susceptibilité magnétique des plots de cobalt organisés sur Au(788) . .                                                 | 99        |
| 4.3.1    | Dispositif expérimental, présentation de la mesure . . . . .                                                            | 99        |
| 4.3.2    | Caractérisation structurale par STM . . . . .                                                                           | 100       |
| 4.3.3    | Susceptibilité des plots de cobalt sur Au(788) . . . . .                                                                | 101       |
| 4.3.4    | Coupage dipolaire des nano-plots de cobalt sur Au(788) . . . .                                                          | 104       |
| 4.3.5    | Conclusion . . . . .                                                                                                    | 105       |
| 4.4      | L'importance des effets dynamiques pour la mesure des cycles d'hystérésis de nano-particules magnétiques. . . . .       | 106       |
| 4.4.1    | Relaxation et retournement d'une nano-particule magnétique .                                                            | 106       |
| 4.4.2    | Cycles d'hystérésis et effets dynamiques . . . . .                                                                      | 107       |

|          |                                                                                                                                     |            |
|----------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------|
| 4.4.3    | Courbe d'aimantation d'une assemblée de particules sans interactions . . . . .                                                      | 110        |
| 4.5      | Super-paramagnétisme des plots de cobalt organisés sur Au(11,12,12) . . . . .                                                       | 111        |
| 4.5.1    | Dispositif expérimental, présentation de la mesure . . . . .                                                                        | 111        |
| 4.5.2    | Susceptibilité magnétique des plots de Co/Au(11,12,12) . . . . .                                                                    | 112        |
| 4.5.3    | Cycles d'hystérésis des plots de Co/Au(11,12,12) . . . . .                                                                          | 114        |
| 4.6      | Conclusions et perspectives . . . . .                                                                                               | 116        |
| <b>5</b> | <b>Modifications structurales induites par les marches dans les films de cobalt sur les surfaces vicinales de Au(111)</b> . . . . . | <b>117</b> |
| 5.1      | Introduction . . . . .                                                                                                              | 117        |
| 5.2      | La structure hexagonale des films de cobalt sur Au(111) . . . . .                                                                   | 118        |
| 5.2.1    | Etude topographique par microscopie à effet tunnel . . . . .                                                                        | 119        |
| 5.2.2    | Détermination de la structure des films Co/Au(111) par GIXD . . . . .                                                               | 121        |
| 5.3      | Propriétés structurales des films de Co sur Au(788) . . . . .                                                                       | 126        |
| 5.4      | Croissance du cobalt sur la surface Au(233) . . . . .                                                                               | 134        |
| 5.4.1    | Structure des films de 5 MC de cobalt sur Au(233) . . . . .                                                                         | 134        |
| 5.4.2    | Influence de l'épaisseur sur la structure des films de Co/Au(233) . . . . .                                                         | 139        |
| 5.5      | Croissance du cobalt sur la surface Au(755) . . . . .                                                                               | 145        |
| 5.6      | Conclusions et perspectives . . . . .                                                                                               | 148        |
| <b>6</b> | <b>Magnétisme des films de cobalt sur les surfaces vicinales de Au(111)</b> . . . . .                                               | <b>151</b> |
| 6.1      | Introduction . . . . .                                                                                                              | 151        |
| 6.2      | Un effet magnéto-optique particulier aux interfaces vicinales : Le VIS-MOKE . . . . .                                               | 152        |
| 6.2.1    | Introduction . . . . .                                                                                                              | 152        |
| 6.2.2    | Un nouvel effet magnéto-optique vicinal : le VISMOKE . . . . .                                                                      | 152        |
| 6.2.3    | Etude expérimentale du VISMOKE . . . . .                                                                                            | 157        |
| 6.2.4    | Conclusion . . . . .                                                                                                                | 164        |
| 6.3      | Anisotropie magnétique dans les films de cobalt sur les surfaces vicinales d'or . . . . .                                           | 164        |
| 6.3.1    | Propriétés magnétiques des films de Co/Au(111) . . . . .                                                                            | 165        |
| 6.3.2    | Propriétés magnétiques des films de Co/Au(788) . . . . .                                                                            | 167        |
| 6.3.3    | Propriétés magnétiques des films de Co/Au(322) . . . . .                                                                            | 172        |
| 6.3.4    | Propagation de parois de domaines magnétiques . . . . .                                                                             | 175        |
| 6.3.5    | Propriétés magnétiques des films de Co/Au(755) . . . . .                                                                            | 176        |
| 6.3.6    | Conclusion . . . . .                                                                                                                | 177        |
| 6.4      | Relation entre le magnétisme et la structure des films ultra-minces de cobalt sur les surfaces vicinales d'or . . . . .             | 178        |
| 6.4.1    | La transition de réorientation magnétique sur Au(111) . . . . .                                                                     | 178        |
| 6.4.2    | L'effet de la rugosité de surface : le cas des surfaces vicinales . . . . .                                                         | 178        |

|          |                                                                                             |            |
|----------|---------------------------------------------------------------------------------------------|------------|
| 6.4.3    | L'effet de la structure de volume : constantes d'anisotropie d'ordres élevés . . . . .      | 181        |
| 6.5      | Conclusions et perspectives . . . . .                                                       | 183        |
|          | <b>Conclusion générale</b>                                                                  | <b>185</b> |
| <b>A</b> | <b>Susceptibilité à l'équilibre d'une nano-particule magnétique à anisotropie uniaxiale</b> | <b>191</b> |
| <b>B</b> | <b>L'anisotropie dipolaire de rugosité</b>                                                  | <b>193</b> |
| B.1      | Interfaces vicinales indépendantes . . . . .                                                | 193        |
| B.2      | Couplage des interfaces vicinales . . . . .                                                 | 194        |
| B.3      | Effet dipolaire total de rugosité . . . . .                                                 | 195        |
| B.4      | Estimation quantitative des effets dipolaires de rugosité . . . . .                         | 196        |
| B.5      | Effet global de la rugosité des interfaces . . . . .                                        | 197        |
|          | <b>Références bibliographiques</b>                                                          | <b>199</b> |

# Introduction générale

Les physiciens du solide s'intéressent de plus en plus à des objets de dimensions réduites, que cela soit pour découvrir des propriétés fondamentales nouvelles ou pour des applications technologiques. Lorsque la taille des objets devient nano-métrique, les propriétés quantiques sont prépondérantes car cette échelle est du même ordre de grandeur que la longueur d'onde des électrons au niveau de Fermi et la longueur d'échange dans les métaux magnétiques. Les propriétés optiques, électroniques et magnétiques des nano-objets sont alors radicalement différentes de celles des systèmes macroscopiques. La découverte des microscopies en champ proche, avec en particulier la microscopie à effet tunnel et les travaux pionniers de Don Eigler à IBM Almaden ont suscité un engouement pour la manipulation des atomes et des molécules. C'est une méthode de choix pour l'investigation des nano-objets individuels, mais l'élaboration "atome par atome" ou "molécule par molécule" est intrinsèquement limitée. La croissance auto-organisée à la surface des cristaux ouvre une nouvelle voie pour la fabrication en parallèle de nano-objets de tailles régulières et périodiquement espacés. Une telle régularité de taille est indispensable pour l'étude des propriétés physiques des nano-structures (en fonction de leur taille, de leur forme ou de leur interaction) car la plupart des techniques d'analyse (optiques et magnétiques) font une moyenne sur un grand nombre d'objets. De plus, pour de nombreuses applications potentielles, comme le stockage de l'information dans des nano-structures magnétiques, il est également indispensable d'assembler les nano-objets en grande densité sur une surface et de connaître leur comportement collectif.

Dans ce travail de thèse, nous avons choisi des surfaces auto-organisées comme substrats pour y déposer un matériau magnétique. L'objectif est alors d'étudier les nano-structures magnétiques auto-organisées : leurs propriétés structurales et magnétiques. Dans un premier temps, la microscopie à effet tunnel couplée à la diffraction de surface des rayons X nous a permis de caractériser la structure des objets élaborés. Deux types de nano-objets ont été ainsi investis : des nano-plots et des films ultra-minces. Dans les deux cas la morphologie du substrat, qui présente un phénomène d'auto-organisation, influence fortement la croissance et la structure du dépôt. Dans un deuxième temps nous avons utilisé l'effet Kerr magnéto-optique pour étudier les propriétés magnétiques de ces deux types de nano-objets. Un dernier défi est alors de relier l'ensemble des résultats expérimentaux : les propriétés

structurales et magnétiques.

Le système qui a été choisi dans ce travail de thèse est celui du cobalt déposé sur des surfaces d'or vicinales. Ce système est un système modèle pour plusieurs raisons :

- Les surfaces d'or vicinales présentent un phénomène d'auto-organisation bien connu et varié puisque ces surfaces peuvent être des escaliers atomiques réguliers et stables (i.e. des marches monoatomiques espacées périodiquement de quelques nanomètres) ou bien des surfaces facettées périodiques. Les travaux antérieurs menés sur ces surfaces ont caractérisé leur morphologie et la présence, dans certains cas, d'une reconstruction sur les terrasses. L'objectif est donc de tirer parti de notre bonne connaissance de ces substrats pour faire croître des objets auto-organisés.
- Le cobalt possède des caractéristiques structurales intéressantes. Sa structure naturelle de volume est hexagonale compacte et présente, dans le plan (111), un désaccord de maille de 14% avec l'or (la maille du cobalt est plus petite que celle de l'or). Ce désaccord de maille ainsi que le problème de l'empilement du réseau hexagonal compact sur le réseau cubique à faces centrées de l'or est la source de comportements structuraux originaux mis en évidence dans ce travail de thèse.
- Le système cobalt sur or présente des caractéristiques magnétiques remarquables : l'interface cobalt/or favorise une aimantation perpendiculaire pour des épaisseurs de cobalt inférieure à une dizaine de plans atomiques. Ce phénomène a été mis en évidence à la fin des années 80, notamment par les spécialistes du magnétisme à Orsay [Chappert et al., 1986b; Chappert et Bruno, 1988; Bruno, 1988b; Ferré et al., 1990; Pommier et al., 1990]. Les systèmes à anisotropie magnétique perpendiculaire représentent, d'une part, un enjeu important du point de vue des applications technologiques et, d'autre part, sur le plan fondamental très peu d'études ont étudié l'influence de marches atomiques sur l'anisotropie perpendiculaire.

Les résultats obtenus et exposés dans ce mémoire sont présentés rapidement ci-dessous.

## **A - Nano-plots de cobalt auto-organisés**

Au cours de cette thèse nous nous sommes concentrés sur la croissance auto-organisée de plots de cobalt sur les surfaces reconstruites vicinales de Au(111) et notamment sur les surfaces Au(788) et Au(11,12,12). Cette étude présente trois aspects.

### **1 - Les surfaces vicinales pour la croissance auto-organisée**

L'utilisation des surfaces vicinales permet de contrôler la densité et la régularité des marches atomiques, défaut qui perturbe souvent la croissance sur les surfaces denses et qui compromet l'investigation des propriétés physiques des nano-objets. Les surfaces vicinales et reconstruites d'or présentent un réseau de sites préférentiels de croissance situés à l'intersection des marches et des lignes de reconstruction. Ce substrat est structuré dans deux directions : perpendiculairement aux marches, la période correspond à la largeur des terrasses tandis que, dans la direction perpendiculaire, la période est celle de la reconstruction de l'or. Ce travail constitue le premier exemple de croissance organisée à deux dimensions couplant une distribution de taille étroite et un ordre à grande distance<sup>1</sup>.

### **2 - Les processus atomiques de l'auto-organisation : Expériences et Simulations**

En utilisant la microscopie à effet tunnel à température variable, nous avons mené une étude en température pour optimiser la distribution de taille des îlots ainsi que la réplique de la nano-structuration du substrat par le réseau de plots nano-métriques de cobalt<sup>2</sup>. Nous avons ainsi montré comment l'aspect cinétique des processus microscopiques de diffusion, d'adsorption et d'insertion explique l'existence d'une plage de température de croissance organisée. En parallèle de ces expériences, nous avons collaboré avec Laurent Provaille du SRMP au CEA-Saclay pour mettre au point un programme de Monte-Carlo cinétique (KMC) et avec Hervé Bulou de l'IPCMS à Strasbourg pour calculer les barrières énergétiques des mécanismes atomiques. Le programme que nous avons développé permet de simuler la nucléation et la croissance du cobalt sur une surface présentant des sites de croissance privilégiés. Grâce à ces simulations nous avons pu reproduire l'évolution de la densité critique d'îlots en fonction de la température.

---

<sup>1</sup>V. Repain, G. Baudot, H. Ellmer et S. Rousset, Europhysics Letter 58 (2002) 730

<sup>2</sup>G. Baudot, S. Rohart, V. Repain, H. Ellmer, Y. Girard et S. Rousset, Appl. Surf. Sci. 212-213 (2003) 360

### **3 - Le magnétisme des nano-structures de cobalt auto-organisées**

D'un point de vue magnétique nous avons déterminé la température de blocage des îlots de cobalt en effectuant des mesures de susceptibilité par effet Kerr magnéto-optique. Il faut souligner que les efforts d'amélioration de la distribution de tailles des îlots permettent d'utiliser des techniques de mesures macroscopiques pour remonter aux propriétés individuelles des nano-objets. En collaboration avec l'équipe d'Harald Brune de l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne nous avons mesuré la densité d'énergie d'anisotropie des plots de cobalt et nous avons montré que leur couplage dipolaire est négligeable. Grâce à une collaboration avec le groupe de J. Ferré du Laboratoire de Physique des Solides (Orsay), nous avons effectué des mesures supplémentaires de susceptibilité ex-situ sur un système de plots similaires encapsulés par une couche de passivation d'or.

## **B - Films ultra-minces de cobalt sur substrats vicinaux**

Le but de cette étude est de progresser dans la compréhension du lien entre les propriétés magnétiques des films ultra-minces et leur structure cristallographique (structure de volume, relaxations des atomes en volume, structure d'interface). Les films de matériaux ferromagnétiques déposés sur substrats vicinaux présentent une structure d'interface parfaitement contrôlée et modulable (densité de marches) et sont des systèmes modèles pour cette étude.

### **1 - Détermination de la structure des films par GIXD**

Nous avons effectué des mesures de diffraction des rayons X en incidence rasante (GIXD) à l'aide du rayonnement synchrotron (au LURE, à Orsay, en collaboration avec Yves Garreau et Alessandro Coati). Nous avons mis en évidence une croissance très perturbée du cobalt sur les surfaces vicinales. Alors que la structure de films de cobalt est hexagonale compacte (hc) sur la surface Au(111) elle est plutôt cubique à faces centrées (cfc) dans les films déposés sur substrats vicinaux. La propension du cobalt à croître avec une structure cubique à faces centrées peut être intégrée dans un modèle d'empilement paramétré par une probabilité de faute. Nous caractérisons ainsi complètement le type d'empilement adopté par le cobalt lorsqu'il est déposé en films ultra-minces sur des substrats vicinaux d'or.

### **2 - Modifications des propriétés magnétiques**

Nous avons montré dans un premier temps que la présence de marches à l'interface modifie l'anisotropie magnétique du film et décale l'épaisseur de transition de réorientation de l'aimantation. Ce basculement de l'aimantation avec l'épaisseur est une caractéristique importante des films magnétiques ultra-minces à anisotropie perpendiculaire qui sont des systèmes intéressants pour les applications à l'en-

registrement magnéto-optique. Ce travail a aussi mis en évidence un nouvel effet magnéto-optique propre aux interfaces vicinales<sup>5</sup>. Ces études ont été effectuées à Orsay dans l'équipe de Jacques Ferré.

En parallèle de ces travaux, nous avons entrepris de développer un bâti destiné à la réalisation de mesures par effet Kerr magnéto-optique en ultra-vide. Cette enceinte est maintenant couplée au dispositif expérimental de préparation des échantillons et de microscopie à effet tunnel et elle permettra de caractériser in-situ des échantillons magnétiques en champ polaire ou longitudinal à des température variables.

Ce mémoire est structuré de la manière suivante : dans le chapitre 1 nous exposons les notions fondamentales de la physique des systèmes auto-organisés sur les surfaces cristallines et du magnétisme des nano-structures qui nous ont servi dans ce travail. Le chapitre 2 est consacré aux techniques expérimentales utilisées au cours de cette thèse. Les résultats sont exposés dans les chapitres suivants. Le chapitre 3 présente l'étude que nous avons menée sur la croissance des nano-plots de cobalt sur les surfaces vicinales et reconstruites d'or. Les mesures des propriétés magnétiques de ces nano-plots sont présentées dans le chapitre 4. Les chapitres 5 et 6 sont consacrés à l'étude des films ultra-minces de cobalt sur des substrats vicinaux d'or. Le chapitre 5 présente la caractérisation structurale de ces films alors que le chapitre 6 est consacré à l'étude de leurs propriétés magnétiques.

---

<sup>5</sup>J. Hamrle, J. Ferré, J. P. Jamet, V. Repain, G. Baudot et S. Rousset, Physical Review B 67 (2003) 155411



# Chapitre 1

## Auto-organisation des surfaces et magnétisme des nano-structures

### 1.1 Introduction

Que cela soit dans les dispositifs de stockage de l'information ou dans les têtes de lecture, les systèmes magnétiques utilisés ont des tailles inférieures à 100 nm. Il est donc devenu capital de comprendre le magnétisme des structures nano-métriques et c'est ce qui motive de nombreux travaux de recherche actuels.

Pour étudier le magnétisme des nano-structures il faut élaborer et caractériser de tels nano-objets. L'originalité de ce travail est de tirer parti de nos études antérieures sur l'auto-organisation des surfaces cristallines pour élaborer des nano-structures contrôlées. Ce chapitre introduit le phénomène d'auto-organisation pour la croissance de nano-objets ainsi que les propriétés magnétiques spécifiques de ces nano-objets.

La première partie de ce chapitre est consacrée à la présentation du phénomène d'auto-organisation sur les surfaces cristallines et son utilisation pour l'obtention des substrats nano-structurés. Nous verrons comment ces surfaces nano-structurées peuvent servir de gabarit pour la croissance de nano-structures contrôlées. Cette partie sera l'occasion d'introduire les substrats que nous avons spécifiquement étudiés au cours de ce travail de thèse. Les surfaces vicinales de Au(111) sont présentées et leur intérêt pour la croissance de nano-structures est discuté.

La deuxième partie est consacrée à la présentation des propriétés magnétiques originales et spécifiques des nano-structures magnétiques. Du fait de leur faible dimensionnalité, ces nano-structures présentent des caractéristiques magnétiques nouvelles dont l'étude est un sujet crucial de la physique du solide, tant d'un point de vue expérimental que technologique. Nous verrons comment les films ultraminces et les nano-particules introduisent de nouvelles notions comme la transition de réorientation magnétique ou le super-paramagnétisme.

En conclusion, nous verrons que le système Co/Au vicinal que nous avons choisi d'étudier possède une grande richesse structurale et magnétique et qu'il est un système modèle pour étudier la croissance, le magnétisme et le lien entre structure et magnétisme des nano-structures.

## 1.2 Les substrats auto-organisés et leur application à la croissance de nano-structures

### 1.2.1 Le phénomène d'auto-organisation sur les surfaces cristallines

Depuis sa découverte au début des années 90, le phénomène d'auto-organisation [Ibach, 1997; Shchukin et Bimberg, 1999; Rousset et al., 1999; Rousset et al., 2002] à la surface des cristaux a suscité un engouement croissant. Il s'agit de la mise en ordre spontanée de motifs plus grands que le réseau cristallin, allant de quelques nanomètres à une centaine de nanomètres, et régie par des interactions élastiques à longue portée. Ces morphologies sont des structures d'équilibre, elles sont toutes stables à température ambiante.

Un exemple spectaculaire est l'apparition de bandes de cuivre-oxygène lors de l'adsorption d'oxygène sur une surface de cuivre (110) (cf. Fig. 1.1.a) [Kern et al., 1991]. Si suffisamment peu d'oxygène est adsorbé sur la surface, deux phases apparaissent : l'une est la surface de cuivre nu, l'autre est formée de chaînes atomiques de cuivre-oxygène. L'énergie libre de la surface est minimisée lorsque les deux phases se fragmentent en domaines périodiques (la période vaut 6 nm sur la figure 1.1.a). Cet ordre spontané est le résultat d'une compétition entre des interactions dipolaires à longue portée d'origine élastique et des termes énergétiques d'interfaces [Kern et al., 1991; Marchenko, 1992; Zeppenfeld et al., 1994; Zeppenfeld et al., 1995]. Ainsi, dès que le système est bi-phasé, chaque phase possède une contrainte de surface intrinsèque. La discontinuité de cette contrainte entraîne l'existence d'une ligne de forces le long de la frontière entre les deux phases. Ces forces produisent des déplacements atomiques à l'intérieur du cristal sur une profondeur typique correspondant à la taille des domaines.

La théorie de l'élasticité des milieux continus montre que ces déformations interagissent avec le champ de forces et diminuent la densité d'énergie élastique du système et ceci d'autant plus que les domaines formés sont petits. Ce gain énergétique est en compétition avec le coût énergétique local (terme à courte portée) de création de parois de domaines, ce qui stabilise une période [Marchenko, 1981; Vanderbilt, 1992]. L'existence de cette période a été observée sur un certain nombre de surfaces planes ou facettées, métalliques ou semi-conductrices, propres ou en présence d'un adsorbat. Cependant, l'accord quantitatif entre les observations et la théorie est rare. Le système oxygène sur cuivre est un des premiers qui a permis de vérifier

un tel accord. La période des bandes varie avec le taux de couverture en oxygène et cette variation est bien décrite par le modèle élastique [Vanderbilt, 1992; Zeppenfeld et al., 1994]. L'exemple de l'auto-organisation sur les surfaces d'or facettées montre des périodes atteignant plusieurs centaines de nanomètres (cf. Fig. 1.1.b) et peut se décrire par le même modèle. Les surfaces d'or nous ont permis de tester la relation entre la période et le coût énergétique local de formation d'une frontière ce qui est le coeur de la thèse de Vincent Repain [Repain, 2001].

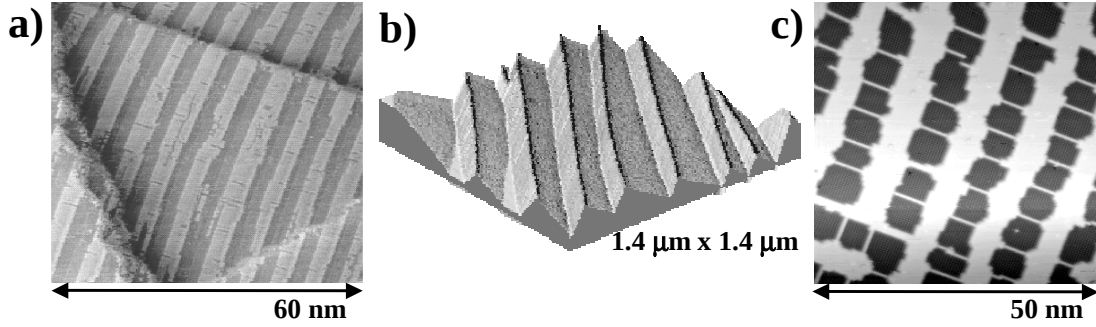


FIG. 1.1: a) Structure en bandes du cuivre-oxygène pour un taux de couverture en oxygène de 0,26 monocouches sur la surface de cuivre (110). Les bandes sombres (formées des chaînes de Cu-O) alternent avec des bandes de cuivre nu. La période est de 6 nm. (avec l'aimable autorisation de P. Zeppenfeld). b) Structure facettée de la surface d'or (455). Vue 3D où l'échelle des hauteurs est exagérée (l'angle réel entre deux facettes successives est de  $174^\circ$ ). L'ordre à grande distance présente une périodicité de 200 nm. c) Pavés d'azote adsorbés et organisés sur la surface Cu(100) pour un taux de couverture de  $\tau=0,6$  MC.

Le phénomène d'auto-organisation sur les surfaces cristallines permet ainsi de structurer les surfaces depuis l'échelle de quelques atomes jusqu'à plusieurs centaines de nanomètres. Les systèmes très anisotropes offrent toujours une structure en bandes. Les systèmes plus isotropes, aujourd'hui beaucoup moins bien maîtrisés, ont l'avantage d'offrir une plus grande variété de motifs, notamment des réseaux bi-dimensionnels. Un exemple de système bi-dimensionnel est celui de l'organisation en pavés de l'azote adsorbé sur Cu(100) (cf. Fig 1.1.c) [Ellmer et al., 2001].

## 1.2.2 Les réseaux de dislocations sur les surfaces cristallines

Parmi les réseaux bi-dimensionnels, une classe particulière de surfaces cristallines auto-organisées comprend les réseaux de dislocations de surface. C'est d'ailleurs historiquement sur ces substrats que David Chambliss à IBM Almaden a démontré, le premier, la faisabilité de la croissance auto-organisée sur le système Ni/Au [Chambliss et al., 1991].

Ces réseaux dislocations de surface apparaissent lorsqu'il existe un désaccord de paramètre de maille important entre la couche de surface et le premier plan de volume. Sur les surfaces métalliques, les atomes de surface, sous-coordinés par rapport à leur environnement initial de volume, essaient de retrouver un plus grand nombre de voisins. Nous allons examiner en détail le cas de la surface Au(111) pour laquelle la minimisation de l'énergie de surface conduit à une reconstruction de surface.

### Reconstruction de Au(111)

L'or a une particularité intéressante car il est le seul métal qui présente sa face dense (111) reconstruite à température ambiante. De manière générale, la différence de coordination des atomes de surface a pour conséquence directe un coût énergétique surfacique et elle entraîne conjointement l'existence d'une contrainte de surface. La reconstruction de la surface permet de relaxer une partie de cette contrainte [Bach *et al.*, 1997] et de diminuer l'énergie de surface. Il n'est cependant pas clair de déterminer lequel de ces effets est un moteur pour l'établissement de la reconstruction [Olivier *et al.*, 2003].

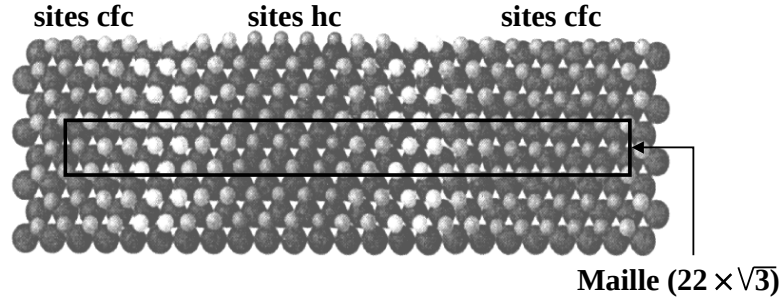


FIG. 1.2: *Modèle atomique de la reconstruction de Au(111) avec représentation de la couche de surface et du premier plan de volume [Ibach, 1997].*

Finalement, la reconstruction de Au(111) se traduit par une densité d'atomes de la couche de surface plus importante de 4 % que celle des couches de volume. Cet effet rehausse la densité électronique en surface malgré la baisse de coordination. Ainsi, 23 atomes de surface sont disposés sur 22 atomes du premier plan de volume. Cette reconstruction est nommée par les dimensions de sa maille élémentaire soit  $22 \times \sqrt{3}$ . Les observations STM [Barth *et al.*, 1990], de diffraction d'atomes d'Hélium [Harten *et al.*, 1985] et de diffraction de rayons X [Huang *et al.*, 1990; Sandy *et al.*, 1991; Abernaty *et al.*, 1993] indiquent que les atomes sont disposés alternativement sur des sites de symétrie cubique à faces centrées (qui continuent l'empilement naturel ABC du volume) et des sites de symétrie hexagonale compacte (correspondant à un empilement de type ABA). Ces deux types d'empilement compact sont séparés

par des zones de transition où les atomes sont hors site. Les atomes hors site sont plus rapprochés les uns des autres avec une direction de compression le long d'une rangée dense. Ils sont aussi plus hauts de 0,03 nm que les atomes en site d'empilement compact. Ces zones hors sites correspondent à une densité plus grande d'atomes en surface et sont observées facilement sur les images STM. Le passage de zones d'empilement cubique à faces centrées à hexagonal compact en surface par des lignes de fautes d'empilement est bien décrit dans le cadre d'un modèle de type Frenkel-Kontorova [Needs et Mansfield, 1989]. Pour rendre compte de l'observation de zones cfc plus grandes que les zones hc, il est possible d'introduire dans le modèle deux types de puits de potentiel de profondeurs différentes (pour l'empilement hc ou cfc) [Frank et der Merwe, 1949; El-Batanouny et al., 1987; Ravelo et El-Batanouny, 1989; Takeuchi et al., 1991].

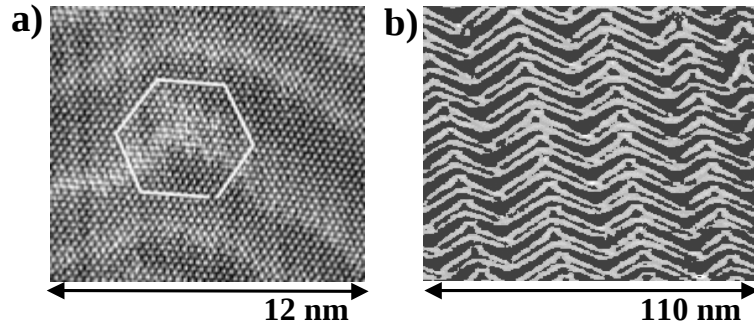


FIG. 1.3: a) Résolution atomique de la surface d'or (111) imagée par STM. Les lignes claires sont les lignes de faute d'empilement. La dislocation de surface au centre du coude de la reconstruction est localisée par le contour de Burger. b) Structure en chevrons de la surface d'or (111).

La symétrie du cristal impose trois directions denses équivalentes sur la surface et on s'attend donc à observer la reconstruction  $22 \times \sqrt{3}$  orientée selon ces trois directions. Les images STM confirment cet effet et permettent d'observer, à plus grande échelle, une structure en chevrons (cf. figure 1.3.b) qui alterne deux de ces directions. Cette structure en chevrons de période 30 nm est interprétée comme un système auto-organisé [Narasimhan et Vanderbilt, 1992].

Le coude (cf figure 1.3.a) d'un chevron possède un arrangement atomique particulier qui est une dislocation de surface [Chambliss et al., 1991]. On visualise la présence d'une telle dislocation en traçant sur la surface un hexagone régulier de côté 10 atomes (contour de Burger). L'existence d'atomes sur-coordinés ou sous-coordinés explique que cet hexagone ne se referme pas (cf figure 1.3.a). Ceci explique le terme de "réseau de dislocations" employé pour décrire cette nano-structuration de surface. Notons qu'à encore plus grande échelle, on observe des domaines de chevrons

désorientés de  $2\pi/3$  les uns par rapport aux autres [Barth *et al.*, 1990].

### D'autres réseaux de dislocations : le cas de l'hétéro-épitaxie

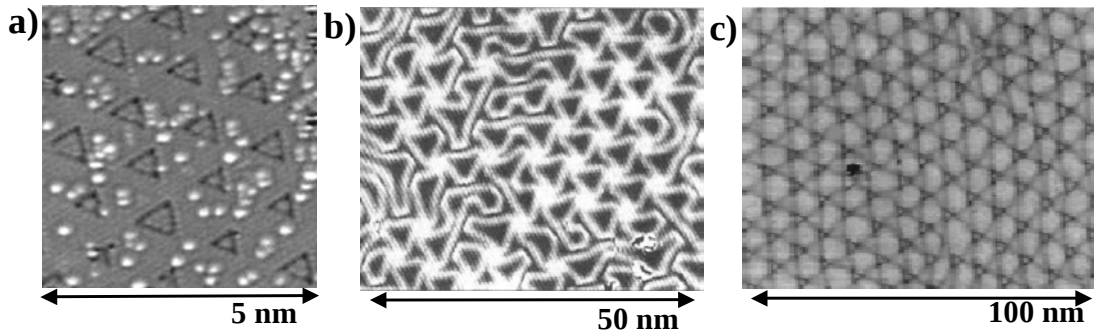


FIG. 1.4: a) Surface de Ni(111) recouverte de 0,25 MC de Au à température ambiante [Günther *et al.*, 1994]. b) Surface de Ru(0001) recouverte de 2 monocouches de Cu [Jacobsen *et al.*, 1995]. c) Surface de platine (111) recouverte par 2 plans atomiques d'argent [Brune *et al.*, 1998; Brune, 1998].

Un autre cas fréquent de désaccord de maille entre la couche de surface et le premier plan de volume est celui d'un dépôt d'un matériau B sur un substrat A. On retrouve alors les mêmes types de parois de domaine que sur l'or mais les géométries des arrangements des dislocations de surface sont variées. La figure 1.4 illustre ces dislocations en hétéro-épitaxie dans le cas de Au/Ni(111), Cu/Ru(0001) et Ag/Pt(111). Dans le cas du dépôt de deux plans atomiques d'argent sur du platine [Brune *et al.*, 1998; Brune, 1998], les lignes de faute d'empilement apparaissent plus sombres contrairement au cas de l'or car elles représentent des zones où la densité atomique est plus faible que dans le volume.

### 1.2.3 La croissance de nano-objets sur les surfaces auto-organisées

L'idée de la croissance auto-organisée est d'utiliser les surfaces cristallines auto-organisées comme substrats pour déposer sous vide un matériau dont la croissance va reproduire le motif du substrat.

Sur une surface cristalline, non préalablement structurée par le phénomène d'auto-organisation, tous les atomes sont équivalents (on parle de croissance homogène). Les atomes qui sont évaporés sur cette surface, diffusent plus ou moins, en fonction de la température. Au cours de ce processus de diffusion, si deux atomes se rencontrent, le modèle le plus simple fait l'hypothèse que le dimère formé ne diffuse plus : c'est la phase de nucléation des îlots. A un stade ultérieur de la croissance, le nombre d'îlots

n'augmente plus mais les atomes viennent s'agréger sur les îlots existant pour les faire croître. Ce processus de croissance sur une surface homogène fait apparaître une distance caractéristique entre îlots et une taille moyenne d'îlot qui sont liées au flux des atomes déposés et à la température du substrat. Cependant, la distribution de taille des îlots reste large. Le premier objectif de la croissance sur des surfaces auto-organisées est de réduire la distribution de tailles des îlots.

Lorsque la surface est auto-organisée, tous les sites atomiques de la surface ne sont plus identiques et on parle de substrat hétérogène. Les processus microscopiques de la nucléation et de la croissance sont alors considérablement modifiés. L'existence d'une nano-structuration en surface peut induire une croissance organisée de différentes manières. Sur la surface de platine recouverte d'argent (cf. Fig. 1.4.c), c'est le phénomène de diffusion des atomes qui est modifié par rapport à une surface homogène car les lignes de faute d'empilement agissent comme des barrières de potentiel pour la diffusion des atomes [Brune *et al.*, 1998; Brune, 1998]. En dessous d'une certaine température (environ 110 K), les atomes d'argent sont piégés à l'intérieur d'une cellule triangulaire et forment un agrégat au centre de celle-ci (cf. encart de la figure 1.5.a). Les atomes déposés sur ce substrat forment un réseau hexagonal d'îlots (cf. Fig. 1.5.a). Sur la surface de Pt(111) recouverte de 2 MC de cuivre le même type d'organisation est observée pour la croissance d'îlots de fer à 250 K (cf. Fig. 1.5.b) [Brune *et al.*, 1998].

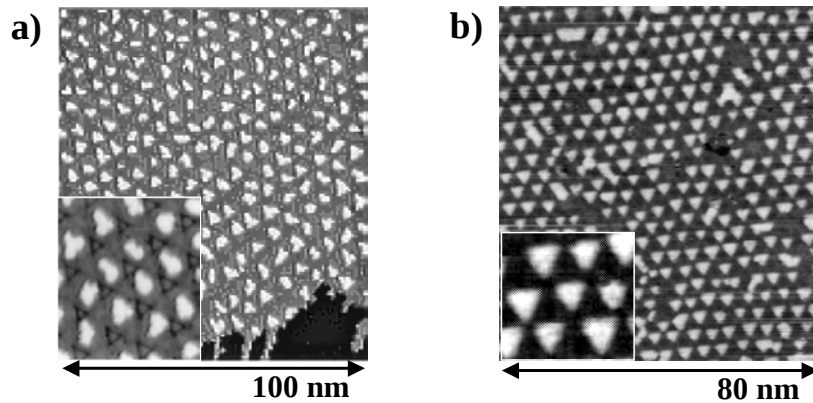


FIG. 1.5: a) Le dépôt d'argent sur 2Ag/Pt(111) (cf. Fig. 1.4.c) à 110K conduit à un super-réseau d'îlots d'argent [Brune *et al.*, 1998; Brune, 1998]. b) Image STM d'un dépôt sub-monocouche de fer à 250 K sur un substrat composé de 2 MC de Cu sur Pt(111). Les îlots triangulaires de fer s'arrangent sur un réseau hexagonal [Brune *et al.*, 1998].

Sur la structure en chevrons de la surface Au(111) (cf. Fig. 1.3.b) plusieurs métaux (Fe [Voigtländer *et al.*, 1991a], Co [Voigtländer *et al.*, 1991b; Padovani *et al.*,

1999b], Ni [Chambliss *et al.*, 1991], Rh [Altman *et Colton*, 1994], Pd [Stephenson *et al.*, 1998]) présentent une croissance organisée. Sur Au(111), tous les sites atomiques de la surface ne sont pas équivalents puisque les coudes de la reconstruction présentent des dislocations de surface où la coordinence des atomes est modifiée [Chambliss *et al.*, 1991]. Ces coudes constituent des sites de nucléation privilégiés. La nucléation sur ces sites a d'abord été attribuée à des puits de potentiel localisés qui piègeaient les hétéro-atomes aux coudes [Chambliss *et al.*, 1991]. Cependant, une étude complémentaire du système Ni/Au(111) [Meyer *et al.*, 1996] a établi que le mécanisme de nucléation est un processus d'échange atomique localisé aux coudes de la reconstruction. Dans le cas de Co/Au(111), nous avons étudié le cas des très faible taux de couverture de cobalt à température ambiante. Les images de microscopie à effet tunnel révèlent qu'il y a un processus d'échange atomique qui intervient aux coudes de la reconstruction en chevrons. On observe sur la figure 1.6.a un point noir correspondant à une "profondeur" de 0,03 nm. Cette valeur peut être interprétée comme la différence des tailles atomiques du cobalt et de l'or et est cohérente avec les observations de Meyer [Meyer *et al.*, 1996]. On interprète donc ces points noirs comme des atomes de cobalt insérés dans la surface d'or. Remarquons que la différence d'énergie de surface invoquée par Meyer [Meyer *et al.*, 1996] comme étant motrice pour l'échange de Ni/Au(111) peut être aussi avancée dans le cas de Co/Au(111). On peut de plus souligner que le grand désaccord de maille entre les deux matériaux semble être un élément important dans l'existence d'un tel processus d'insertion dont le résultat est semblable à un alliage de surface confiné [ Tersoff, 1995]. Le processus d'échange aux coudes des chevrons semble donc être commun à la croissance du nickel et du cobalt sur Au(111). Il est finalement très tentant d'en conclure que c'est bien ce type de mécanisme qui est responsable de la croissance organisée de certains métaux sur Au(111).

Le premier stade de nucléation est finalement suivi par la croissance d'îlots sur les germes insérés et la surface présente des rangées d'îlots périodiquement distribués [Voigtländer *et al.*, 1991b; Padovani *et al.*, 1999b]. Cependant, la croissance auto-organisée sur Au(111) présente malheureusement un ordre à grande distance limité par la taille des domaines de la reconstruction en chevrons qui n'excède pas  $100 \times 100 \text{ nm}^2$  et par la taille limitée des terrasses (111). Les figures 1.7.a et 1.7.b illustrent cette faible longueur de cohérence du réseau de plots de cobalt sur Au(111).

Dans tous ces exemples la croissance réplique la nano-structuration initiale du substrat et les îlots présentent une distribution de taille étroite, voisine de la limite théorique (cf. Fig. 1.6.c).

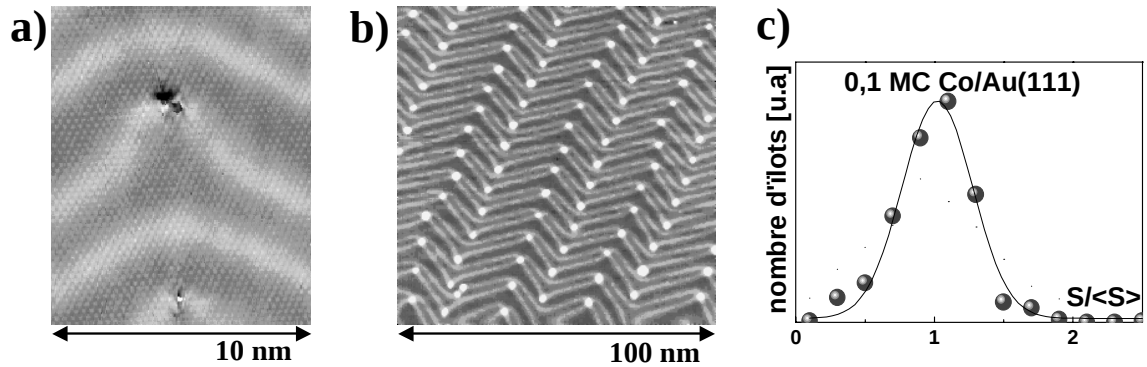


FIG. 1.6: a) Image STM de 0,005 MC de cobalt déposé sur Au(111) à température ambiante. Les atomes de Co insérés apparaissent 0,03 nm plus "bas" que la surface d'or. b) Image STM de 0,05 MC de cobalt déposé sur Au(111) à température ambiante. On observe l'homogénéité de la croissance. c) Distribution de taille des îlots de cobalt sur Au(111). La statistique a été faite sur près de 1000 îlots pour un taux de couverture de 0,1 MC qui donne la distribution la plus étroite.

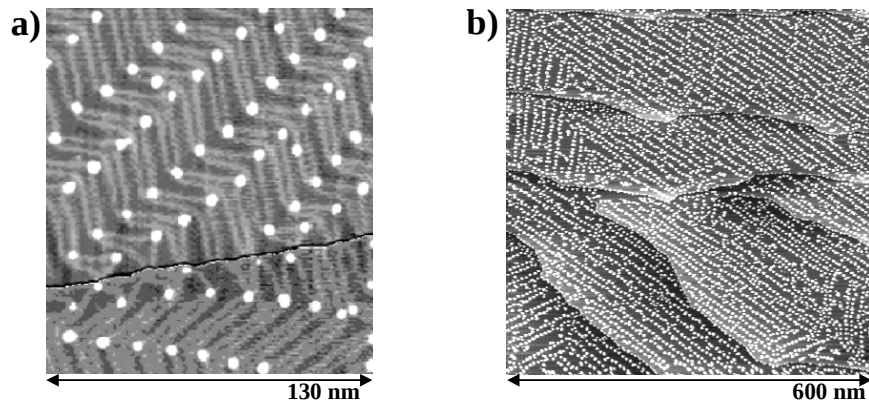


FIG. 1.7: a) Image STM de 0,05 MC de cobalt déposé sur Au(111) à température ambiante dans une région contenant une marche atomique. Sur cette image les deux terrasses ont été remis au même niveau pour augmenter le contraste. b) Image STM de 0,2 MC de cobalt déposé sur Au(111) à température ambiante.

#### 1.2.4 Les surfaces vicinales de Au(111) : des substrats nanostructurés

Sur les surfaces planes, les marches d'une hauteur d'un plan atomique sont les défauts les plus répandus et elles viennent souvent perturber l'organisation des nano-objets sur la surface. Les sites de bords de marche présentent une coordinence différente et peuvent être des sites privilégiés d'adsorption. Ainsi, dans certains cas, la

présence de marches favorise la croissance de nano-structures le long des bords de marches. Lorsque les propriétés physiques des nano-objets sont très dépendantes de la taille des objets, l'existence de ces défauts compromet leurs investigations. Pour remédier à ces inconvénients inhérents aux surfaces denses, nous proposons d'utiliser des surfaces vicinales.

## Généralités sur les surfaces vicinales

Une surface vicinale est une surface dont l'orientation est voisine d'une orientation cristalline dense. La désorientation par rapport à la face dense est entre  $0^\circ$  et  $15^\circ$  environ. Comme la position des atomes en surface est imposée de façon discrète par le réseau cristallin, la surface des atomes n'est plus un plan mais s'organise en un réseau de marches dont la hauteur correspond à la distance entre deux plans cristallographiques (cf. Fig. 1.8). La taille des terrasses et donc la densité des marches sont directement reliées à l'angle de désorientation  $\theta$ .

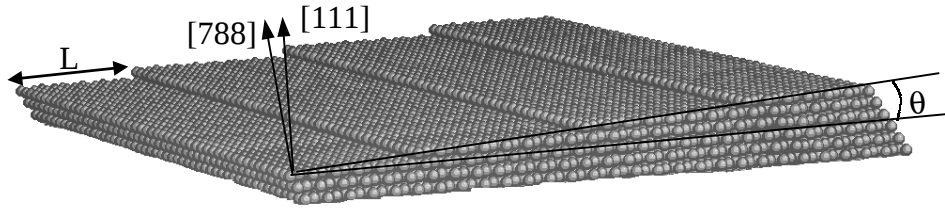


FIG. 1.8: Vue schématique d'une surface (788). L'angle  $\theta$  est l'angle dont la face vicinale est désorientée par rapport à la face dense. La densité des marches est fixée par cet angle :  $n = 1/L = \tan \theta / h$ , où  $h$  est la hauteur d'une marche et  $L$  la largeur des terrasses.

L'énergie libre d'une surface vicinale s'écrit généralement comme la somme de trois termes : une énergie de terrasse, une énergie de marche et un terme d'interaction entre marches. Si l'on note  $\theta$  l'angle de désorientation vicinale on peut écrire cette énergie libre comme suit :

$$\gamma(\theta) = \gamma_0 + \frac{\beta}{h} |\tan \theta| + g |\tan \theta|^3 \quad (1.1)$$

On note  $h$  la hauteur des marches et  $\tan \theta = h/L$  où  $L$  est la largeur des terrasses.  $\gamma_0$  est ici l'énergie surfacique pour une terrasse d'orientation dense (111).  $\beta$  est l'énergie libre d'une marche isolée par unité de longueur. Le dernier terme prend en compte les interactions entre marche. Celles-ci sont répulsives avec  $g > 0$ . Il existe plusieurs types d'interactions entre marches [Jeong et Williams, 1999] : l'interaction élastique, l'interaction statistique et l'interaction dipolaire. Dans le cas où  $\gamma_0$ ,  $\beta$  et  $g$  sont positifs et indépendants de l'angle  $\theta$  on obtient une fonction  $\gamma(\theta)$  convexe et

on s'attend à observer des surfaces vicinales stables présentant un réseau régulier de marches monoatomiques. Si on envisage maintenant le cas où une reconstruction de surfaces module un ou plusieurs de ces termes on peut obtenir une énergie de surface qui présente des minima locaux correspondants à des faces vicinales stables [Jesser et der Merwe, 1972; Jeong et Williams, 1999; Repain, 2001]. Les autres orientations auraient alors pour état d'équilibre un mélange de ces faces stables de compositions variables [Williams, 1994; Repain, 2001]. Si l'on rajoute à ça l'existence d'interactions élastiques à longue portée on peut montrer que ces mélanges s'organisent pour former des structures périodiques en toits d'usine. La surface Au(455) présentée sur la figure 1.1.b illustre ce facettage périodique dans le cas des surfaces vicinales d'or [Repain, 2001].

### Les substrats vicinaux de Au(111)

Les surfaces vicinales de l'or au voisinage des faces denses (111) ou (100) sont en général instables. Cela a pu être observé sur les formes d'équilibres de cristallites d'or [Heyraud et Metois, 1980; Wang et Wynblatt, 1998; Emundts et al., 2001], sur les formes de sillons gravés dans l'or et recuits [Surnev et al., 1996] ou bien directement sur des monocristaux d'or taillés avec une petite désorientation par rapport à la face dense [Watsona et al., 1995; Rousset et al., 2002]. Dans certains cas, le lien entre le phénomène de facettage et la présence d'une reconstruction de surface sur la face dense a pu être clairement établi. Le cas des surfaces vicinales de l'or (111) désorientées entre  $2^\circ$  et  $12^\circ$  dans l'axe de zone  $[0\bar{1}1]$  a été étudié en détail lors de la thèse de Vincent Repain effectuée dans notre groupe [Repain et al., 2000a; Repain, 2001; Rousset et al., 1999; Rousset et al., 2002]. L'étude du facettage a également fait apparaître des zones de stabilité des surfaces vicinales d'or. Dans ce travail de thèse, nous avons tiré parti de cette connaissance pour choisir en priorité des surfaces vicinales stables avec des densités de marches différentes. En plus du réseau de marches, la présence de la reconstruction sur certaines faces confère une nanostructuration supplémentaire au substrat. Nous ne présentons ici que les différents substrats vicinaux utilisés au cours de ce travail de thèse pour l'étude structurale et magnétique des nano-structures de cobalt.

Les cinq types d'échantillons sont résumés dans le tableau 1.1. Ils ont tous pour axe de zone l'axe  $[0\bar{1}1]$  qui est aussi la direction parallèle aux bords de marche.  $\theta$  désigne l'angle de désorientation par rapport au plan (111) de la face dense. Ces faces sont nommées par leurs indices de Miller<sup>1</sup> (hkl) qui correspondent à la direction [hkl] normale à leur plan. Les surfaces sont coupées selon deux directions d'azimuts<sup>2</sup>

---

<sup>1</sup>Par convention une surface vicinale dont tous les indices de Miller sont pairs sera nommée  $(\frac{h}{2} \frac{k}{2} \frac{l}{2})$ . Une autre convention d'écriture est que l'on sépare les indices de Miller par des virgules seulement si au moins l'un d'entre eux est un nombre à plusieurs chiffres.

<sup>2</sup>Pour une surface vicinale (hkl) la direction azimutale est la direction cristallographique normale à la direction  $[111]$  qui appartient au plan  $([111], [hkl])$ .

| Azimut              | Marches   | Orientation | Angle        | Reconstruite | n  | Largeur          |
|---------------------|-----------|-------------|--------------|--------------|----|------------------|
| $[\bar{2}11]$       | $\{100\}$ | (322)       | $11,4^\circ$ | Non          | 5  | $1,2 \text{ nm}$ |
|                     |           | (755)       | $9,4^\circ$  | Non          | 6  | $1,4 \text{ nm}$ |
| $[2\bar{1}\bar{1}]$ | $\{111\}$ | (233)       | $10,0^\circ$ | Non          | 6  | $1,3 \text{ nm}$ |
|                     |           | (788)       | $3,5^\circ$  | Oui          | 16 | $3,8 \text{ nm}$ |
|                     |           | (11,12,12)  | $2,3^\circ$  | Oui          | 24 | $5,8 \text{ nm}$ |

TAB. 1.1: *Résumé des caractéristiques structurales des surfaces vicinales de Au(111) que nous avons utilisées comme substrats.*

opposés, qui déterminent le type de marches.

Les surfaces vicinales (322) et (755) sont orientées selon l'azimut  $[\bar{2}11]$  et présentent des bords de marche  $\{100\}$  ce qui signifie que leurs contre-marches sont des microfacettes de symétrie carrée  $\{100\}$ . Elles ont une orientation  $(n+1, n-1, n-1)$  et une largeur de terrasse  $L = (n - \frac{1}{3})d$  avec  $n$  un entier qui correspond au nombre de rangées atomiques de la terrasse et  $d$  la distance entre rangées denses. Les surfaces vicinales (233), (788) et (11,12,12) sont orientées selon l'azimut  $[211]$  et présentent des bords de marche  $\{111\}$  ce qui signifie que leurs contre-marches sont des microfacettes de symétrie triangulaire  $\{111\}$ . Elles ont une orientation  $(n-2, n, n)$  et une largeur de terrasse  $L = (n - \frac{2}{3})d$  avec  $n$  un entier qui correspond au nombre de rangées atomiques de la terrasse et  $d$  la distance entre rangées denses.

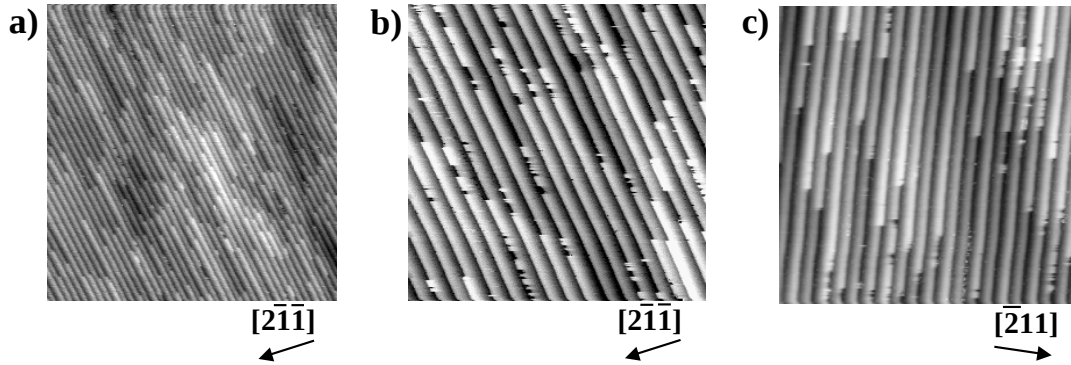


FIG. 1.9: a) Image STM ( $50 \times 50 \text{ nm}^2$ ) de la surface Au(322). b) Image STM ( $20 \times 20 \text{ nm}^2$ ) de la surface Au(322) c) Image STM ( $25 \times 25 \text{ nm}^2$ ) de la surface Au(233).

Les surfaces les plus désorientées présentent la plus grande densité de marches. C'est le cas des trois surfaces (322), (755) et (233) qui ont des angles de désorientation respectifs de  $11,4^\circ$  ;  $9,4^\circ$  et  $10,0^\circ$ . Dans ces trois cas aucune reconstruction

de surface n'apparaît sur les terrasses. On peut justifier ce point en remarquant que la largeur des terrasses est alors trop faible pour que le gain énergétique de la reconstruction compense son coût en énergie élastique. Ces surfaces sont stables, constituées de marches monoatomiques périodiquement distribuées et les terrasses ne sont pas reconstruites. Les largeurs de terrasses sont récapitulées dans le tableau 1.1. La figure 1.9 présente des images STM des surfaces Au(322) et Au(233) sur lesquelles on visualise les marches ainsi que la présence de crans atomiques le long des bords de marches.

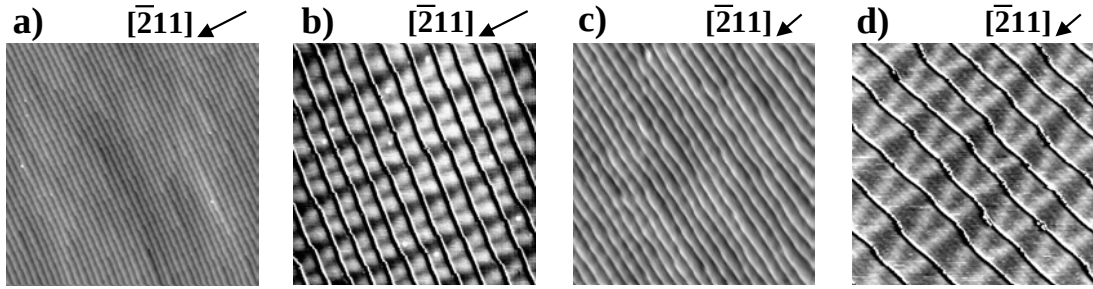


FIG. 1.10: a) Image STM ( $150 \times 150 \text{ nm}^2$ ) de la surface Au(788). b) Image STM ( $45 \times 45 \text{ nm}^2$ ) de la surface Au(788). Cette image est traitée, chaque terrasse est remis à un même niveau pour faire ressortir le contraste de la reconstruction. c) Image STM ( $115 \times 115 \text{ nm}^2$ ) de la surface Au(11,12,12). d) Image STM ( $40 \times 40 \text{ nm}^2$ ) de la surface Au(11,12,12). Cette image est traitée, chaque terrasse est remis à un même niveau pour faire ressortir le contraste de la reconstruction.

Lorsque l'on diminue l'angle de désorientation entre  $2^\circ$  et  $4^\circ$ , la densité de marches diminue et la largeur des terrasses augmente. Dans le cas des surface désorientées dans l'azimut  $[\bar{2}11]$ , la reconstruction de type  $n \times \sqrt{3}$  ( $n \gtrsim 22$ ) apparaît sur les terrasses. La présence des marches favorise alors un seul domaine de reconstruction. Les lignes de fautes d'empilement possèdent toutes une direction commune et traversent les bords de marches perpendiculairement [Repain et al., 1999]. C'est le cas des surfaces (788) et (11,12,12) désorientées respectivement de  $3,5^\circ$  et  $2,3^\circ$ . La figure 1.10 présente des images STM des surfaces Au(788) et Au(11,12,12). On voit que l'on obtient alors une nano-structuration du substrat sous la forme d'un réseau rectangulaire dont une direction est celle des marches et l'autre, perpendiculaire, est celle de la reconstruction. La cohérence de ce réseau est conservé sur tout l'échantillon vicinal d'une surface de quelques millimètres carrés. Nous verrons au chapitre 3 comment ces surfaces peuvent, dans certaines conditions de dépôt, permettre la croissance d'un réseau de nano-particules de cobalt bien régulières.

## 1.3 Nano-structures magnétiques

Après avoir présenté les possibilités d'auto-organiser des nano-structures métalliques sur des substrats monocristallins grâce à la nano-structuration de surface nous allons introduire les propriétés magnétiques spécifiques de ces objets.

Nous commençons par regarder les différents termes énergétiques qui entrent en jeu au sein d'un corps ferromagnétique. En faisant le bilan énergétique dans le cas d'un film ultra-mince nous verrons comment la baisse de dimensionnalité affecte les propriétés magnétiques. Nous présentons particulièrement le phénomène de transition de réorientation magnétique au sein d'un film ultra-mince. Dans un troisième temps nous présentons le cas de nano-structures de dimensionnalité encore plus réduite. Le cas des nano-particules nous permettra d'introduire les notions de régime super-paramagnétique et de température de blocage.

### 1.3.1 Introduction : l'énergie d'un système ferromagnétique

La description physique d'un milieu ferromagnétique commence par l'analyse des différents termes énergétiques intervenant dans l'hamiltonien du système. Nous notons  $\vec{M}$  l'aimantation du système et  $\vec{m} = \vec{M}/M$  l'aimantation unitaire de cosinus directeurs  $(\beta_1, \beta_2, \beta_3)$ . Ces cosinus directeurs repèrent l'aimantation dans le repère adapté à la symétrie cristalline du système considéré.

#### L'énergie Zeeman

Le terme d'énergie Zeeman n'est pas intrinsèque au système puisqu'il est dû à la présence d'un champ extérieur. En effet, à toute densité de moment magnétique  $\vec{M}$  plongé dans un champ  $\vec{H}_{ext}$  correspond une densité d'énergie  $E_Z$  donnée par :

$$E_Z = -\mu_0 \vec{H}_{ext} \cdot \vec{M} \quad (1.2)$$

Cette énergie correspond au couple qu'effectue le champ extérieur sur l'aimantation et traduit la tendance de cette dernière à s'aligner le long de celui-ci.

#### L'interaction dipolaire magnétique

Au sein d'un système ferromagnétique chaque moment magnétique ressent le champ magnétique créé par son environnement. Ce couplage dipolaire est une interaction à longue portée et elle a un effet prépondérant à l'échelle du système. C'est ce que traduit le terme de champ démagnétisant. Si le système ferromagnétique que l'on considère crée un champ  $\vec{H}_d = -[N] \cdot \vec{M}$  alors la densité d'énergie de champ démagnétisant est donnée par :

$$E_{dip} = -\frac{1}{2} \mu_0 \vec{H}_d \cdot \vec{M} = \frac{1}{2} \mu_0 \vec{M} \cdot [N] \cdot \vec{M} \quad (1.3)$$

Avec  $[N]$  le tenseur de champ démagnétisant qui est une caractéristique purement géométrique du système. La densité d'énergie  $\mu_0 M^2$  est caractéristique de cet effet dipolaire.

## L'interaction d'échange

Un matériau ferromagnétique se caractérise par une interaction d'échange à courte portée qui impose l'alignement de l'aimantation le long d'une même direction dans tout le système en dessous d'une température de mise en ordre : la température de Curie du système. Cette interaction a été introduite en 1929 par Heisenberg dans le cadre de la mécanique quantique. Dans une description de moments magnétiques  $\vec{m}_i$  localisés la densité d'énergie d'échange est exprimée grâce à un coefficient  $J_{ij}$  avec  $J_{ij} > 0$  dans le cas d'un ferromagnétique et  $J_{ij} < 0$  pour un échange anti-ferromagnétique. Cette densité d'énergie peut aussi s'écrire plus généralement [Landau et Lifshitz, 1935; Neel, 1944; Kittel, 1949] avec un coefficient d'échange  $A_{ech}$  en [J/m] qui caractérise les intensités des interactions d'échange et peut être dépendant de la température.

$$E_{ech} = -\frac{\mu_0}{2} \sum_{i,j \neq i} J_{ij} \vec{m}_i \cdot \vec{m}_j \quad \text{ou} \quad E_{ech} = A_{ech} \left( \overrightarrow{grad}(\vec{m}) \right)^2 \quad (1.4)$$

L'interaction d'échange ferromagnétique et l'interaction dipolaire ont des effets contradictoires et coexistent dans un même système ferromagnétique. Du fait de leur portées différentes on peut définir une longueur caractéristique que l'on appelle longueur d'échange et que l'on note  $L_{ech}$  qui sépare les zones d'influence privilégiée des deux interactions. Cette longueur est donnée par :

$$L_{ech} \propto \sqrt{\frac{A_{ech}}{\mu_0 M^2}} \quad (1.5)$$

Dans le proche voisinage d'un moment de référence ( $L < L_{ech}$ ) c'est l'interaction d'échange qui l'emporte et les moments ne peuvent s'écarter significativement de la direction du moment de référence. Mais plus loin ( $L > L_{ech}$ ), petit à petit, les moments deviennent indépendants du moment de référence et peuvent s'orienter selon les lignes de champ afin de minimiser l'énergie d'interaction dipolaire.

## L'anisotropie magnétique de volume

L'énergie d'un corps ferromagnétique dépend de la direction de son aimantation par rapport à des axes structuraux fixes. On décrit cette dépendance par deux termes d'énergie d'anisotropie. Le premier est intrinsèque au cristal parfait : c'est l'anisotropie magnéto-cristalline. Le deuxième se rajoute lorsque le cristal est déformé avec un tenseur de déformations  $[\varepsilon]$  : c'est l'anisotropie magnéto-élastique.

$$E_v(\vec{m}, [\varepsilon]) = E_v^{mc}(\vec{m}) + E_v^{me}(\vec{m}, [\varepsilon]) \quad (1.6)$$

L'origine physique de ces anisotropies magnétiques est l'interaction spin-orbite qui couple les moments de spin et orbital de l'électron [VanVleck, 1937]. Ces deux termes énergétiques doivent rendre compte de la symétrie du système et sont souvent développées en harmoniques sphériques aux premiers ordres. Les symétries cristallines imposent des relations aux coefficients de ces développements [Sander, 1999] et permettent de simplifier leurs expressions.

Si on note  $\theta$  l'angle que fait l'aimantation avec l'axe [111] du cristal cfc et avec l'axe c ([0001]) du cristal hc on peut résumer les termes d'anisotropies volumiques magnéto-cristalline et magnéto-élastique [Sander, 1999] :

$$E_v = K_v \sin^2 \theta + K_v^{(n)} f^{(n)}(\theta) \quad \text{avec} \quad K_v = K_v^{mc} + K_v^{me} \quad (1.7)$$

Le terme  $K_v \sin^2 \theta$  correspond au premier terme d'un développement en cosinus directeurs<sup>1</sup>. Le terme  $K_v^{(n)} f^{(n)}(\theta)$  représente les termes magnéto-cristallins et magnéto-élastiques d'ordres supérieurs. Nous verrons dans le chapitre 6 que ces termes peuvent avoir une grande importance dans les propriétés magnétiques des films ultra-minces.

## Domaines magnétiques

Au sein d'un matériau ferromagnétique l'énergie dipolaire est abaissée grâce à la création de domaines magnétiques. La direction de l'aimantation varie alors d'un domaine à l'autre et il existe des parois de domaines. Le coût énergétique de ces parois correspond à la rotation de l'aimantation et est du à l'interaction d'échange et à l'anisotropie magnétique. On peut construire la largeur caractéristique  $L_p$  d'une paroi de domaine magnétique avec les énergies caractéristiques des effets mis en jeu :

$$L_p \propto \sqrt{\frac{A_{ech}}{K_{mc} + K_{me}}} \quad (1.8)$$

Pour des considérations plus détaillées la référence [Hubert et Schafer, 1998] est très complète. Soulignons juste que dans le cas de systèmes dont les dimensions deviennent comparables à la largeur de paroi des configurations d'aimantation particulières peuvent apparaître. Nous en verrons un exemple lorsque nous parlerons de nano-plots magnétiques.

### 1.3.2 Les films ultra-minces

Contrairement à la prévision de Mermin et Wagner [Mermin et Wagner, 1966] on peut observer un ordre ferromagnétique au sein de ces nano-structures bidimensionnelles grâce à l'existence d'une anisotropie uniaxiale ou d'un couplage dipolaire. De manière très générale la réduction de coordinence en surface entraîne l'apparition d'une anisotropie de surface et une exaltation du moment magnétique.

---

<sup>1</sup>On peut remarquer que dans le cas d'un cristal cfc la symétrie impose  $K_v^{mc} = 0$ .

Les termes énergétiques induits par la baisse de symétrie consécutive à l'introduction de surfaces dans un film ferromagnétique entraînent l'existence d'une transition de réorientation de l'aimantation en fonction de l'épaisseur dans les films ultra-minces.

### **L'interaction dipolaire magnétique pour un film ultramince : l'anisotropie de forme**

Dans le cas d'un film ultra-mince avec  $L_z \ll L_x, L_y$  le tenseur  $[N]$  de champ démagnétisant se réduit à son seul terme non nul :  $N_{zz} = 1$ . En notant  $\theta$  l'angle que fait l'aimantation avec la normale à la surface on a  $M_z = M \cos^2 \theta$  et obtient l'énergie de champ démagnétisant d'un film ultramince <sup>1</sup> :

$$E_d = K_d \sin^2 \theta \quad \text{avec} \quad K_d = -\frac{1}{2} \mu_0 M^2 \quad (1.9)$$

Ce terme d'anisotropie dipolaire (ou de forme) favorise une configuration planaire de l'aimantation.

### **L'anisotropie magnétique de surface**

La brisure de symétrie induite par la réduction du nombre de voisins aux surfaces (ou interfaces) d'un film mince magnétique induit des termes d'anisotropie effective que l'on définit comme des termes d'anisotropie de surface (ou d'interface). Néel, le premier, a rendu compte de cette source d'anisotropie dans un modèle de paires atomiques [Neel, 1953; Neel, 1954]. Ce modèle est une approche simple qui permet d'intégrer un environnement atomique quelconque et de calculer l'anisotropie magnétique résultante.

La densité volumique d'énergie d'anisotropie de surface pour un film magnétique d'épaisseur  $t$  est donnée par :

$$E_s = \frac{K_s}{t} \sin^2 \theta \quad (1.10)$$

Il faut remarquer que la définition effective de l'anisotropie de surface en fonction de sa dépendance en  $1/t$  est trompeuse. Il existe en effet des cas où les déformations  $\varepsilon_{ij}$  au sein d'un film mince peuvent avoir cette même dépendance en épaisseur. On inclut donc dans l'anisotropie de surface une partie d'anisotropie magnéto-élastique dont l'origine n'est pas localisée à la surface du film.

La densité surfacique d'énergie d'anisotropie  $K_s$  est positive pour de nombreux systèmes dont les couches de cobalt déposées sur des substrats de Pd, Pt ou Au

---

<sup>1</sup>On choisit d'écrire l'énergie de champ démagnétisant du film ultramince en  $\sin^2 \theta$  en éliminant une constante isotrope.

[*Chappert et al.*, 1986a; *Chappert et Bruno*, 1988; *Allenspach et al.*, 1990]. Sur ces systèmes l'anisotropie de surface favorise donc une orientation de l'aimantation perpendiculaire au plan du film et ce d'autant plus que son épaisseur est faible. L'origine de l'anisotropie d'interface est bien souvent l'hybridation qui existe entre les électrons du substrat et ceux du film magnétique. Ces effets sont donc exaltés lorsqu'un métal de transition est mis en jeu dans le système [*Bruno*, 1989a; *Bruno*, 1989b; *Bruno et Renard*, 1989]. D'un point de vue technologique les systèmes à anisotropie de surface perpendiculaire sont de bons candidats pour des médias d'enregistrement magnéto-optiques.

### La transition de réorientation magnétique

On peut maintenant faire le bilan énergétique en champ nul pour un film ultra-mince ferromagnétique en regroupant les termes énergétiques mentionnés ci-avant<sup>1</sup>. En ne gardant que le premier ordre de l'anisotropie de volume, on obtient :

$$E_{film} = \left( K_v + K_d + \frac{K_s}{t} \right) \sin^2 \theta \quad (1.11)$$

La transition de réorientation magnétique (TRM) est le processus de basculement de la direction de facile aimantation dans un film ultra-mince en fonction de son épaisseur. Dans un film ultra-mince, l'effet de forme domine généralement le terme de volume et aligne l'aimantation dans le plan. Dans un système à anisotropie d'interface perpendiculaire le terme  $K_s$  peut orienter l'aimantation perpendiculairement au film pour des faibles épaisseurs. Cette compétition entre anisotropie de forme et anisotropie d'interface détermine la transition de réorientation de l'aimantation en fonction de l'épaisseur du film.

L'étude de la direction de facile aimantation d'un film magnétique et le suivi de sa transition de réorientation est une caractérisation importante de ses propriétés d'anisotropie magnétique. D'un point de vue fondamental, cette transition permet d'étudier les différentes sources d'anisotropie magnétique et d'un point de vue technologique il est crucial de bien contrôler l'orientation (perpendiculaire ou planaire) de l'aimantation.

Parmi les nombreux systèmes à anisotropie de surface perpendiculaire les plus connus sont sans doute Ni/Cu [*Schulz et Baberschke*, 1994; *Farle et al.*, 1997; *O'Brien et Tonner*, 1994], Fe/Ag [*Heinrich et al.*, 1987; *Qiu et al.*, 1993; *Kawakami et al.*, 1996], Co/Ag [*Allenspach et al.*, 1990], Fe/Cu [*Allenspach et Bischof*, 1992; *Pappas et al.*, 1990], Co/Pd [*Purcell et al.*, 1993], Co/Pt [*McGee et al.*, 1993], Co/Au [*Chappert et al.*, 1986a; *Chappert et Bruno*, 1988; *Allenspach et al.*, 1990; *Beauvillain*

---

<sup>1</sup>Nous ne prenons pas en compte l'interaction d'échange qui est isotrope et nous ne traitons pas le cas de l'interaction d'échange anisotrope qui peut exister en présence d'impuretés ou d'un mélange de deux phases magnétiques.

*et al.*, 1993; *Speckmann et al.*, 1995]. Dans ce travail de thèse nous nous sommes particulièrement intéressés au cas du système Co/Au, notamment pour son anisotropie de surface perpendiculaire. Il existe de très nombreuses études de la transition de réorientation dans les films de cobalt sur la surface Au(111) [*Chappert et al.*, 1986a; *Chappert et al.*, 1986b; *den Broeder et al.*, 1988; *Chappert et Bruno*, 1988; *Allenspach et al.*, 1990; *Ferré et al.*, 1990; *Ould-Mahfoud et al.*, 1993; *Grolhier et al.*, 1993; *Beauvillain et al.*, 1993; *Grolhier et al.*, 1994; *Ferré et al.*, 1997; *Ding et al.*, 2001; *Langer et al.*, 2001; *Pütter et al.*, 2001; *Sellman et al.*, 2001; *Langer et al.*, 2002]. Toutes ces études ne sont pas menées dans les mêmes conditions (substrat monocristallin ou non, couche recouverte ou non,...) et il est délicat d'établir une épaisseur de transition de réorientation. On peut cependant donner une fourchette de 4-5 à 10 monocouches pour le basculement de l'aimantation.

Il faut noter que cette transition de réorientation a aussi été étudiée en faisant varier la température [*Langer et al.*, 2001; *Sellman et al.*, 2001]. Les différents termes d'anisotropie n'ont pas la même dépendance en température et s'annulent donc pour une température de transition propre à chaque épaisseur de la couche magnétique. L'influence de la couche de passivation est aussi très importante puisque celle-ci modifie la nature d'une interface du film [*Ould-Mahfoud et al.*, 1993; *Beauvillain et al.*, 1993]. Une étude récente a même montré que l'épaisseur de la couche de passivation jouait un rôle déterminant dans le déplacement de la transition de réorientation [*Langer et al.*, 2002].

Puisque les marches atomiques sont présentes à toutes les interfaces des films ultraminces, il est capital de bien comprendre leur rôle sur les propriétés magnétiques des films et en particulier sur la transition de réorientation magnétique. Les surfaces vicinales sont des substrats modèles pour l'étude de l'influence des marches sur l'anisotropie magnétique. La plupart des travaux sur l'influence de l'anisotropie de marche sur l'orientation de l'aimantation ont été menées sur des systèmes à anisotropie planaire [*Wulfhekel et al.*, 1997; *Hyman et al.*, 1998; *Kawakami et al.*, 1998; *Qiu et Bader*, 1999; *Elmers et al.*, 2000; *Cherifi et al.*, 2001; *Rickart et al.*, 2002]. Parmi les systèmes à anisotropie perpendiculaire, seuls Ni/Cu [*Dhesi et al.*, 1999; *Shick et al.*, 1999; *Jähnke et al.*, 2001] et Fe/Ag [*Kawakami et al.*, 1996] ont été étudiés. Ces travaux ont mis en évidence l'importance de l'anisotropie de marche dans les systèmes vicinaux et son influence sur la transition de réorientation magnétique [*Dhesi et al.*, 1999; *Jähnke et al.*, 2001]. Le système Co/Au vicinal que nous avons choisi d'étudier se prête bien à ce genre d'études et nous verrons au chapitre 6 comment la vicinalité des substrats d'or influence le magnétisme des films ultra-minces de cobalt.

### 1.3.3 Les nano-plots magnétiques

#### Introduction : nano-structures de dimensionnalité inférieure à 2

La réduction de dimensionnalité dans les nano-fils (structures 1D) ou les nanoparticules (structures 0D) entraîne des modifications des propriétés magnétiques.

Dans un matériau ferromagnétique la longueur d'échange est de l'ordre de quelques nanomètres. C'est donc la largeur typique que doivent avoir des bandes 1D pour être ferromagnétiques. Les surfaces vicinales sont donc naturellement tout à fait adaptées à la croissance de ces systèmes. Les figures 1.11.a et b illustrent bien le potentiel des substrats vicinaux pour la croissance de nano-bandes magnétiques dans le cas de Fe/Cu(111) [Shen *et al.*, 1997]. Ce type de substrats a aussi été utilisé pour la croissance de fils sur Co/Cu [de la Figuera *et al.*, 1995] et, plus récemment, la croissance et l'étude de bandes uni-dimensionnelles de Co et Co-Ag ont été réalisées par Gambardella *et al.* [Gambardella *et al.*, 2000a; Gambardella *et al.*, 2000b; Gambardella *et al.*, 2001]. Dans la continuité de ces études des chaînes atomiques de Co et de Cu ont été obtenues et étudiées sur Pt(997) [Dallmeyer *et al.*, 2000; Gambardella *et al.*, 2002a]. En ce qui concerne les propriétés magnétiques des systèmes uni-dimensionnels, les premières mesures ont été réalisées sur des bandes de Fe sur un substrat de W(110) [Elmers *et al.*, 1994]. Ce système de bandes présente une anisotropie planaire perpendiculaire à l'axe des bandes et un couplage dipolaire inter-bandes qui induit un ordre "dipolaire super-ferromagnétique" [Hauschild *et al.*, 1998]. Ce système a récemment été étudié en STM polarisé en spin [Pratzer *et al.*, 2001; Pietzsch *et al.*, 2000] et les domaines magnétiques ont été résolus au sein des bandes de Fe.

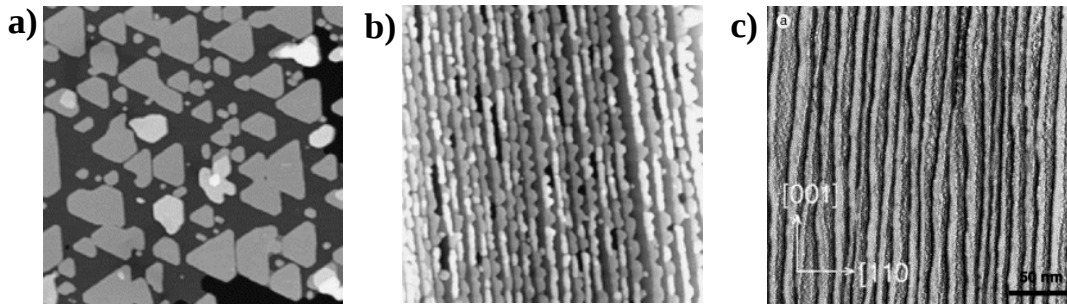


FIG. 1.11: a-b) Images STM ( $200 \times 200 \text{ nm}^2$ ) d'un dépôt de 1 MC de Fe sur deux surfaces de Cu : a) Cu(111) b) surface vicinale de Cu(111) [Shen *et al.*, 1997; Shen et Kirschner, 2002]. c) Image STM image ( $250 \times 250 \text{ nm}^2$ ) d'une surface vicinale de W(110) avec des bords de marche selon [001] recouverte de 0,8 MC de Fe. Les bandes claires en bords de marche sont les bandes de Fe [Hauschild *et al.*, 1998].

Lorsque l'on réduit encore les dimensions dans les nano-particules 0D les effets de taille deviennent très importants. La baisse de coordination des atomes au sein des

nano-structures peut alors exalter de manière très significative leur moment magnétique [Gambardella et al., 2002b] qui tend vers le moment magnétique d'un atome isolé. Il existe de nombreuses études sur la modification du moment magnétique en fonction de la coordinence et de la tailles des îlots. Dans le cas de Co/Au, Dürr et al. ont étudié l'exaltation du moment magnétique orbital en fonction de la taille des îlots en XMCD (dichroïsme circulaire magnétique en rayons X) [Dürr et al., 1999]. D'autres études [Stöhr, 1999; Ohresser et al., 2001] montrent que cette exaltation du moment magnétique orbital est un phénomène général lorsque la taille des nano-structures est réduite. Tous ces résultats mettent aussi en évidence une forte augmentation de l'anisotropie magnétique lors de la réduction de taille des nano-particules. Cette augmentation de la densité atomique d'énergie d'anisotropie magnétique d'îlot avec la diminution de sa taille a été étudiée dans le cas du Co et du Fe sur Au(111) [Dürr et al., 1999; Ohresser et al., 2001]. Plus récemment, il a été montré que l'anisotropie magnétique d'un îlot de Co sur Pt(111) était considérablement augmentée lorsque sa taille diminue jusqu'à ne contenir qu'un atome [Gambardella et al., 2003].

## Le super-paramagnétisme des nano-particules magnétiques

Lorsque l'on diminue les dimensions latérales d'un système ferromagnétique pour créer un îlot il existe une taille critique  $D_{mono}$  en dessous de laquelle cet îlot n'est composé que d'un seul domaine magnétique. Pour une petite particule sphérique à anisotropie uniaxiale on peut écrire que cette taille correspond à l'égalité des variations des énergies dipolaire et de paroi correspondant à l'introduction d'une paroi, on obtient :  $D_{mono} \sim \frac{\sqrt{A_{ech} K}}{\mu_0 M^2}$ . Pour une particule sphérique de cobalt on estime  $D_{mono} \simeq 50 \text{ nm}$ .

### • Remarque sur la notion de particule monodomaine :

Dans le cas théorique d'un ferromagnétique monodomaine infini l'interaction d'échange établit un ordre ferromagnétique au dessous de la température de Curie  $T_C$ . La dépendance de l'aimantation en fonction de la température est alors donnée par la loi de Curie-Weiss.

Si le système ferromagnétique considéré est un îlot nano-métrique on ne peut plus définir une température de Curie au sens de la transition de phase. Cependant, les fluctuations d'ondes de spin conduisent à une dépendance de l'aimantation en fonction de la température selon une loi de Bloch et l'on peut définir une température  $T_C^*$  qui annule l'aimantation [Yosida, 1996].

$$M(T) = M(0) (1 - B T^b) \quad \text{et} \quad T_C^* = B^{-1/b} \quad (1.12)$$

Pour des températures supérieures à  $T_C^*$  le super-moment de la particule "perd de sa cohérence" et diminue, on ne peut plus parler de particule monodomaine. Les études expérimentales et théoriques de l'évolution de l'amplitude de Bloch

et de l'exposant de Bloch avec la taille du système sont peu nombreuses et parfois contradictoires<sup>1</sup> [*Binder et al.*, 1970; *Pierce et al.*, 1952; *Xiao et Chien*, 1987; *Merikoski et al.*, 1991; *Hendriksen et al.*, 1993; *Zhang et al.*, 1998]. Il semble cependant que lorsque la taille  $D$  de la particule diminue  $T_C^*$  diminue [*Binder et al.*, 1970; *Merikoski et al.*, 1991; *Hendriksen et al.*, 1993; *Chen et al.*, 1996; *Zhang et al.*, 1998].

Une particule monodomaine peut être décrite comme un super-moment magnétique  $\vec{\mu} = \sum n_{at} \vec{\mu}_{at}$  avec  $n_{at}$  le nombre d'atomes dans la particule,  $\vec{\mu}_{at}$  le moment magnétique atomique. S'il existe, au sein de la particule, une anisotropie uniaxiale la densité d'énergie est donnée par  $E = K \sin^2 \theta$  avec  $\theta$  l'angle que fait le moment  $\vec{\mu}$  avec l'axe facile d'aimantation. La particule peut alors être vue comme un système à deux niveaux séparés par une barrière énergétique  $\Delta E = K$ . Cette propriété d'anisotropie magnétique des nano-particules est d'un grand intérêt aussi bien d'un point de vue fondamental que technologique. L'existence d'une anisotropie magnétique au sein d'une particule magnétique garantit la stabilité de son moment dans une direction. Lorsque la taille de la particule diminue et malgré les effets d'exaltation évoqués plus haut, la constante d'anisotropie de celle-ci diminue si bien qu'il arrive un moment où la stabilité du moment magnétique n'est plus observée. Le super-moment magnétique se met alors à fluctuer et on parle de régime super-paramagnétique.

A très basse température ( $k_B T \ll \Delta E$ ) la particule présente un moment magnétique bloqué dans un des deux états stables équivalents ( $\vec{\mu}$  est alors parallèle à l'axe d'anisotropie). A plus haute température, le mécanisme thermiquement activé de saut d'un état à l'autre (c'est à dire de basculement du moment  $\vec{\mu}$ ) devient effectif avec une probabilité  $\nu = \nu_0 \exp[-\Delta E/k_B T]$ . La relaxation de la particule en champ nul est donnée par la loi d'Arrhénius-Néel  $\mu(t) = \mu(0) \exp(-t/\tau)$  avec le temps de décroissance  $\tau = 1/\nu$ . A très haute température ( $k_B T \gg \Delta E$ ) le moment moyen de la particule répond à un champ magnétique selon une loi de Langevin typique d'un système paramagnétique<sup>2</sup> :

$$\mu_H = \mu L[\mu H/k_B T] \quad \text{avec} \quad L[x] = \coth x - \frac{1}{x} \quad (1.13)$$

Pour une température  $T$  donnée le temps  $\tau(T)$  est le temps moyen de fluctuation pour une particule. Imaginons un expérimentateur qui observe la particule avec un temps d'observation  $t_{obs}$ . Dans le cas  $t_{obs} < \tau(T)$  l'observateur voit une particule ferromagnétique avec un moment bloqué alors que dans le cas  $t_{obs} > \tau(T)$  il voit une particule dont le moment fluctue. L'égalité  $t_{obs} = \tau(T_B)$  définit la température

<sup>1</sup>Pour un système volumique :  $b \rightarrow \frac{3}{2}$  et  $B \rightarrow 1/T_C^{3/2}$ .

<sup>2</sup>L'argument de la fonction de Langevin fait intervenir le super-moment magnétique de la particule d'où le terme de super-paramagnétique.

de blocage donnée par :

$$T_B = \frac{\Delta E}{k_B \ln(\nu_0 t_{obs})^{-1}} \quad (1.14)$$

Il est important de noter que cette température de blocage dépend, en plus des caractéristiques intrinsèques du système, du temps d'observation  $t_{obs}$ .

Pour bien comprendre le phénomène de super-paramagnétisme il est important de connaître l'origine de l'anisotropie magnétique d'une nano-particule. Dans le cas de nano-plots de Co/Pt(111) l'équipe de Harald Brune a montré très récemment, en combinant une étude STM et des mesures par effet Kerr magnéto-optique, que les atomes de périphérie des îlots étaient responsables de l'anisotropie magnétique [Rusponi *et al.*, 2003]. Ils ont notamment mesuré que des îlots formés par un coeur de Pt entouré d'une couronne de Co (cf. Fig 1.12) ont la même énergie d'anisotropie que des îlots de Co de même taille. Ces résultats confirment le rôle prépondérant des atomes de bords de marche déjà souligné par Weber *et al.* [Weber *et al.*, 1995]. Il s'agit donc d'un pas de plus dans la compréhension globale des propriétés magnétiques des nano-structures et de l'effet de taille sur le moment magnétique et l'anisotropie magnétique.

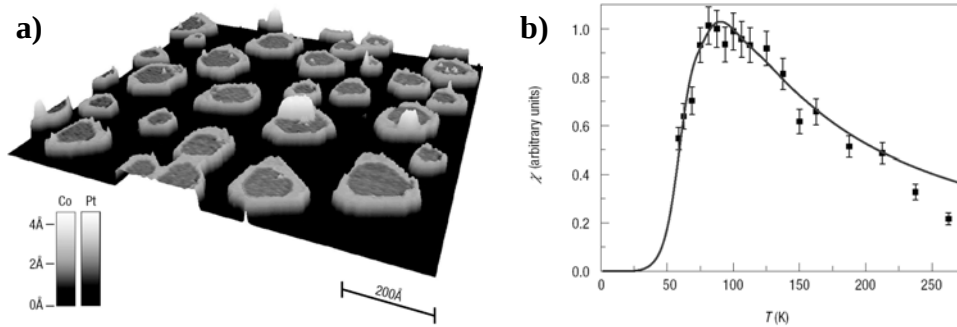


FIG. 1.12: a) Vue 3D d'une image STM d'îlots formés d'un coeur de Pt (0,2 MC) entouré d'une couronne de Co (0,2 MC). b) Courbe de susceptibilité : les points mesurés sur le système de l'image a) sont parfaitement ajustés par la courbe pleine correspondant à la réponse magnétique d'îlots de cobalt pur de mêmes périmètres [Rusponi *et al.*, 2003].

### Moyens d'études du nano-magnétisme

Il existe plusieurs moyens expérimentaux pour mener des études des propriétés magnétiques des nano-particules. Tout d'abord, il est possible de faire l'étude de nano-particules individuelles en utilisant, par exemple, soit un micro-SQUID, soit un microscope à effet tunnel résolu en spin. Pour ce type d'études utilisant le

micro-SQUID on fera référence à [Wernsdorfer, 2001]. Les études sur les particules individuelles sont souvent difficiles. Par ailleurs, pour les applications, il est aussi indispensable d'étudier des assemblées de nano-particules. L'objectif de ce travail de thèse est de montrer comment l'étude d'un réseau de nano-particules organisées permet de remonter, d'une part, à des propriétés individuelles, d'autre part, de caractériser les interactions éventuelles entre particules. Ce type d'études n'est possible que dans le cas d'une assemblée de particules identiques. On comprend donc que c'est une nouvelle voie qui s'ouvre grâce aux systèmes auto-organisés qui permettent d'obtenir des particules avec des distributions de taille et de forme très étroites. Dans ce contexte, le contrôle de la croissance organisée et la caractérisation par STM de la morphologie des particules est pour nous un atout majeur.

Pour mener une étude sur une assemblée de nano-particules magnétiques on peut envisager plusieurs méthodes. Citons le XMCD (dichroïsme magnétique circulaire des rayons X) qui permet notamment la détermination de l'anisotropie magnétique et des moments magnétiques orbitaux et de spin des particules. Une référence générale pour l'utilisation du XMCD est [Stöhr, 1999]. Ce type de mesures nécessite l'utilisation du rayonnement synchrotron. Plus simplement, on peut utiliser les effets magnéto-optiques et en particulier l'effet Kerr magnéto-optique que nous présentons en détail dans le chapitre 2. Cet effet permet de mesurer des variations d'aimantation en fonction du champ magnétique appliqué et donc de tracer des cycles d'hystérésis et des courbes d'aimantation. Contrairement à un vrai système paramagnétique, un système super-paramagnétique peut être saturé avec des champs magnétiques facilement réalisables ( $< 5$  T). Cependant, à très basse température, dans le régime bloqué, il peut être difficile de saturer une assemblée de particules magnétiques. Un moyen astucieux d'étudier la réponse en champ de ce système est de se limiter à la mesure de sa susceptibilité initiale (en champ nul). Le mode opératoire classique pour ce type d'étude est d'appliquer un champ magnétique alternatif avec une fréquence  $\omega$ , de mesurer un signal proportionnel à l'aimantation (signal magnéto-optique par exemple) et de mesurer (par détection synchrone ou numériquement) la pente à l'origine de la courbe  $M(H)$ .

A l'image de l'étude menée par Brune et al. [Rusponi et al., 2003] la complémentarité de la microscopie à effet tunnel et des mesures d'effet Kerr magnéto-optique permet de mener des études expérimentales complètes d'une assemblée de particules. C'est ce type de mesures que nous avons choisi de réaliser sur un système modèle de nano-particules magnétiques auto-organisés : les nano-plots de cobalt sur les surfaces d'or vicinales reconstruites.

## 1.4 Conclusion et motivation pour le système Co/Au vicinal

Nous avons vu dans la première partie de ce chapitre que le phénomène d'auto-organisation des surfaces cristallines donne lieu à de nombreuses géométries de nano-structuration : des surfaces reconstruites, des réseaux de dislocations, des surfaces vicinales, des surfaces en présence d'un adsorbat. L'originalité de ce travail de thèse est d'utiliser ces substrats pour la croissance de nano-structures bien contrôlées. Nous avons choisi d'étudier particulièrement l'effet d'un substrat vicinal d'or sur la croissance des nano-structures de cobalt.

L'or présente l'avantage d'avoir une reconstruction de surface. Les substrats d'or vicinaux présentent une nano-structuration bi-dimensionnelle (2D) lorsqu'ils sont reconstruits avec des lignes de fautes d'empilement perpendiculaires aux marches (Au(788) et Au(11,12,12)). D'un point de vue de la croissance nous avons rappelé que, du fait de son fort désaccord de maille avec l'or (14%), le cobalt présente une croissance organisée sur la surface Au(111) (cf. Fig 1.5) dans un régime sub-monocouche. Dans le chapitre 3, nous montrons la possibilité d'auto-organiser des nano-structures de cobalt avec un ordre à grande distance sur les substrats vicinaux d'or. Grâce à une étude de microscopie à effet tunnel en température variable couplée à des simulations numériques nous déterminons les mécanismes atomiques responsables de la croissance organisée du cobalt sur les substrats vicinaux d'or reconstruits. D'un point de vue magnétique, les nano-structures, du fait de leur dimensionnalité réduite, possèdent des propriétés magnétiques originales comme une anisotropie et un moment magnétique exaltés et un comportement super-paramagnétique. Dans le chapitre 4, le super-paramagnétisme des nano-plots de cobalt est étudié. La complémentarité du STM et de l'effet Kerr magnéto-optique nous permet de mesurer l'anisotropie des particules et d'en déterminer l'origine.

Les substrats d'or vicinaux présentent une nano-structuration uni-dimensionnelle (1D) lorsqu'ils ne sont pas reconstruits (Au(233), Au(755) et Au(322)). Le caractère vicinal des substrats que nous utilisons nous permet d'étudier le lien entre les caractéristiques morphologiques et structurales des films ultra-minces de cobalt et leurs propriétés magnétiques. Nous avons vu que la compétition entre les effets d'anisotropie dipolaire et d'anisotropie d'interface conduit, en général, à une transition de réorientation de l'aimantation des films ultra-minces en fonction de l'épaisseur. Dans le chapitre 5, nous étudions en détail la structure cristalline des films de cobalt et nous montrons comment celle-ci est modifiée par la présence des marches à l'interface Au/Co. Les mesures d'effet Kerr magnéto-optique que nous présentons au chapitre 6 nous permettent de caractériser la transition de réorientation magnétique au sein de ces films et de discuter les modifications de leurs propriétés magnétiques en lien avec leur structure.



# Chapitre 2

## Techniques expérimentales

L'auto-organisation des surfaces cristallines et son application à la croissance de nano-structures contrôlées nécessitent un environnement ultra-vide. Nous commençons par décrire notre dispositif expérimental ultra-vide (UHV) et les différentes techniques de réalisation et de caractérisation des échantillons qui y sont associées. Pour la détermination des morphologies et structures de nos systèmes nous avons utilisé deux techniques complémentaires : la microscopie à effet tunnel (STM) à température variable (30 K-900 K) et la diffraction des rayons X en incidence rasante (GIXD) utilisant le rayonnement synchrotron. La première technique est le point central de notre dispositif et nous la présentons dans la deuxième partie de ce chapitre. Dans un troisième temps nous détaillons le principe de la GIXD. Pour les mesures de propriétés magnétiques nous avons utilisé l'effet Kerr magnéto-optique. Cette technique est nouvelle pour notre équipe et nous la présentons en détails dans la dernière partie de ce chapitre. Nous discutons l'utilisation de l'effet Kerr magnéto-optique pour l'étude du nano-magnétisme. Enfin, nous présentons le développement de l'enceinte ultra-vide de mesures magnéto-optiques qui a eu lieu pendant ce travail de thèse.

### 2.1 Dispositif expérimental et environnement UHV

#### 2.1.1 Le bâti ultra-vide

Le dispositif expérimental que nous avons utilisé lors de ce travail de thèse est présenté sur la photo 2.1. Cette enceinte ultra-vide est composée de trois chambres et d'un sas pour l'introduction rapide des échantillons. L'étude des surfaces impose de travailler dans un vide très poussé (ultra-vide) ( $< 10^{-10}$  mbar). La qualité du vide de notre dispositif ( $P = 3.10^{-11}$  mbar de pression de base) est assurée par deux pompes turbomoléculaires, trois pompes ioniques et deux sublimateurs de titane.

La première chambre est la chambre de préparation et d'analyse des échantillons.

Le bras manipulateur de cette chambre possède quatre degrés de liberté (trois translations et une rotation) et nous permet de positionner l'échantillon avec précision devant chaque instrument qu'elle contient, à savoir :

- Un four à bombardement électronique situé à l'extrémité du bras manipulateur qui permet de chauffer les échantillons jusqu'à environ 1250 K.
- Un système de refroidissement à l'azote liquide situé à l'extrémité du bras manipulateur qui permet de refroidir les échantillons à environ 100 K.
- Un spectromètre de masse qui nous permet essentiellement de contrôler la qualité du vide et de détecter les fuites éventuelles.
- Un canon à ions fonctionnant avec une tension de 0,2-1,5 keV qui nous permet de bombarder nos échantillons métalliques pour les nettoyer.
- Deux évaporateurs où l'évaporant est chauffé par bombardement électronique. Un évaporateur simple contient de l'or et un évaporateur triple contient du fer, du cobalt et de l'argent.
- Une microbalance à quartz qui permet d'étalonner les flux d'évaporation des évaporateurs.
- Un ensemble LEED/Auger pour la caractérisation structurale et chimique des échantillons (cf. paragraphe suivant).

La deuxième chambre est la chambre STM. Elle contient le microscope à effet tunnel à température variable et peut accueillir un ou plusieurs évaporateurs que l'on peut placer pour évaporer directement sous le STM. Le principe du STM est détaillé dans la deuxième partie de ce chapitre.

La troisième chambre est la chambre de mesures magnéto-optiques. Cette chambre comprend un bras manipulateur avec trois degrés de liberté (deux translations et une rotation) qui devrait supporter un cryostat dans un avenir proche. Les visées optiques sont réalisées grâce à des hublots en quartz non contraints pour éviter la dépolarisation de la lumière. Cette chambre contient aussi un évaporateur qui permet d'effectuer un dépôt in-situ et de suivre les propriétés magnétiques au cours du dépôt sans déplacer l'échantillon. L'application d'un champ extérieur se fait soit par une bobine (champ polaire) soit par un électro-aimant (champ longitudinal). L'effet Kerr magnéto-optique, son application à l'étude du nano-magnétisme et la conception de cette chambre de mesures magnéto-optiques sont présentés dans la dernière partie de ce chapitre.

### 2.1.2 Analyse chimique et structurale des surfaces

A tout moment de l'étude d'une surface ou de la réalisation d'un échantillon il est important de pouvoir mener une caractérisation chimique et structurale. Pour ce faire nous disposons d'un spectromètre Auger et d'un LEED [Zangwill, 1988].

La spectroscopie d'électrons Auger (AES) permet une analyse chimique de la

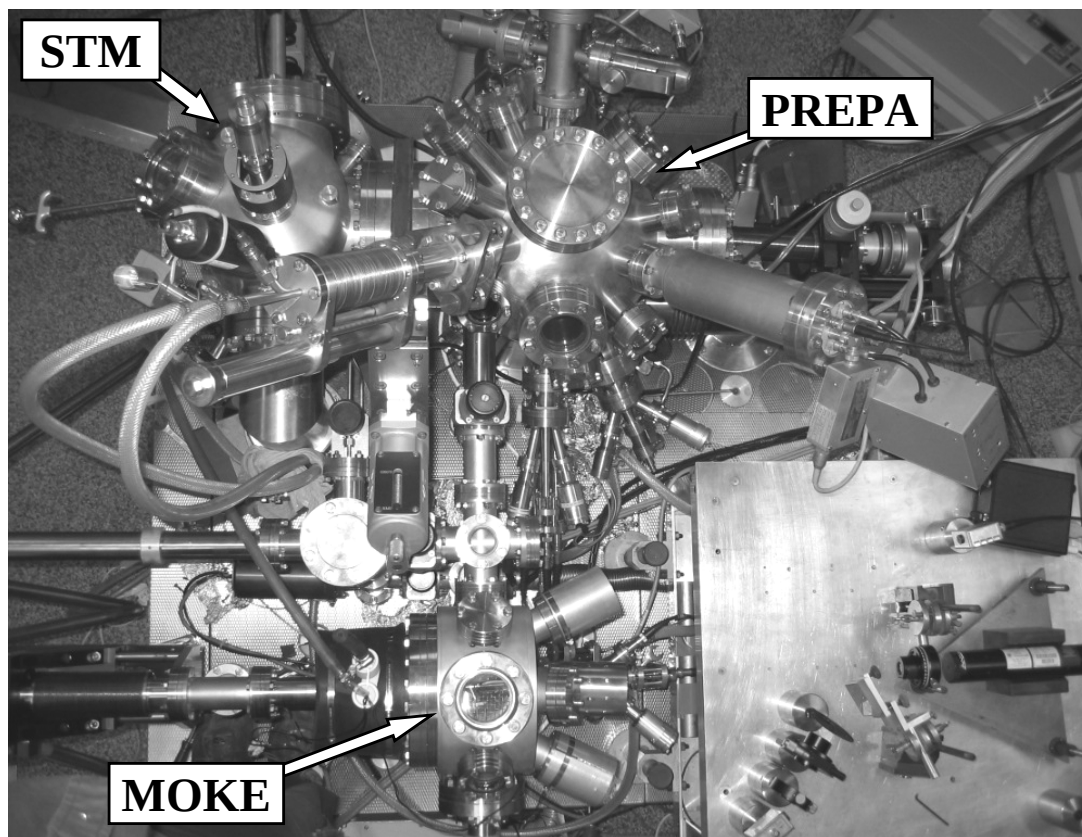


FIG. 2.1: Photographie du dispositif expérimental ultravide. Les trois chambres de l'enceinte sont indiquées par des flèches : PREPA pour la chambre de préparation, STM pour la chambre STM et MOKE pour la chambre de mesures magnéto-optiques.

surface. Lors de l'irradiation d'un échantillon par un faisceau d'électrons énergétiques ( $E > \text{keV}$ ) des atomes sont ionisés il existe deux processus de désexcitation : la désexcitation radiative (un électron d'une couche supérieure vient combler la lacune en émettant un photon) et la désexcitation non radiative par effet Auger. Cette dernière met en jeu deux électrons des niveaux supérieurs dont l'un vient combler la lacune alors que l'autre est éjecté en emportant l'excédent d'énergie sous forme d'énergie cinétique. Le spectre des électrons Auger émis par un échantillon est une signature spectroscopique et permet donc sa caractérisation chimique. L'une des principales caractéristiques de la spectroscopie Auger est sa très bonne résolution en profondeur. L'observation des raies de basse énergie ( $< 300 \text{ eV}$ ) assure que le libre parcours moyen des électrons à travers la matière est de quelques couches atomiques. Cette technique est donc sensible à la composition chimique de surface.

La diffraction d'électrons lents (LEED) permet de caractériser la structure cristalline de la surface de l'échantillon. Le LEED est une technique de caractérisation

spatiale moyenne dans l'espace réciproque qui consiste à envoyer sur l'échantillon un faisceau monocinétique d'électrons d'une centaine d'électron-volts ( $E=20$  à  $500$  eV). Ce faisceau de faible énergie pénètre sur seulement quelques plans mono-atomiques et est diffracté par le réseau cristallin de l'échantillon. En variant la longueur d'onde des électrons incidents on peut sonder l'espace réciproque associé à la surface de l'échantillon. Les électrons diffractés sont recueillis sur un écran hémisphérique fluorescent. La figure de diffraction ainsi créée fournit donc une information sur la structure cristalline de la surface.

La forte section efficace de collision électron-électron induit des processus de multi-diffraction et l'approximation cinématique de la diffraction ne s'applique rigoureusement pas au LEED. Le faisceau électronique utilisé présente une distribution angulaire (incohérence spatiale) et un étalement en énergie (incohérence temporelle) si bien qu'il existe une longueur de cohérence  $L_C$  ( $L_C= 50$  à  $70$  nm) qui correspond à la taille maximale des structures que le LEED peut résoudre. Ces deux limites du LEED nous ont poussé à utiliser la diffraction des rayons X en incidence rasante (GIXD) dès qu'il s'est agit d'effectuer des mesures précises et quantitatives de la structure cristalline de nos échantillons. La GIXD est présentée en détail dans la troisième partie de ce chapitre.

### 2.1.3 Réalisation et préparation des échantillons

Comme dans tous domaines de physique expérimental les échantillons sont la clef de voûte de nos études. Nous présentons ici la réalisation d'échantillons de surface métallique de bonne qualité chimique et cristalline et la technique de dépôt sous vide que nous avons employé pour le travail présenté dans ce manuscrit.

#### Préparation des surfaces métalliques

Dans tout ce travail de thèse nous avons utilisé des surfaces de monocristaux que nous avons acquis à la sortie de leur polissage. La préparation finale par bombardement-recuit a été menée dans l'enceinte de préparation de notre dispositif.

**Réalisation des échantillons :** La première étape de la réalisation des échantillon est la cristallogénèse sous vide des barreaux monocristallins. L'or utilisé pour réaliser ces barreaux est pur à 99.999 %. Ensuite, les monocristaux sont orientés cristallographiquement par des rayons X, grâce à la méthode de Laué en retour. Une fois orientés les échantillons monocristallins sont coupés par électro-érosion à fil puis la surface est attaquée à l'eau régale. A ce niveau la surface est très rugueuse et il est nécessaire d'effectuer un polissage mécanique pour obtenir une surface plane et lisse. Afin d'atteindre la structure atomique ordonnée du monocristal, on complète le polissage mécanique par un polissage électrochimique. Toutes ces étapes de préparation des surfaces monocristallines sont effectuées par une autre équipe ou par

une entreprise spécialisée. Avant d'analyser la surface ou de l'observer au STM il faut l'introduire dans l'enceinte ultra-vide et lui faire subir une préparation in-situ par des cycles de bombardement-recuit.

**Cycles de bombardement-recuit :** Lorsqu'un échantillon est brut de polissage on achève sa préparation par des cycles de bombardement-recuit. On fait de même pour débarrasser une surface de toutes les impuretés qui s'y sont adsorbées lors d'une exposition à l'air ou pour retrouver une surface nue et propre après un dépôt.

Pour le bombardement ionique on utilise des ions argon. Le gaz d'argon est inerte, il ne pollue pas l'échantillon et ne s'adsorbe que de façon négligeable sur les parois de l'enceinte. Pour bombarder l'échantillon on établit une pression de  $5.10^{-6}$  mbar dans l'enceinte et un faisceau d'électrons ionise une partie du gaz qui est ensuite accéléré par une tension d'environ 900 V dans la direction de l'échantillon. Un ion argon arrache en moyenne 2 atomes à la surface et un bombardement de 45 minutes suffit à nettoyer une surface couverte de 4 monocouches de cobalt. Après le bombardement la surface est rugueuse, l'échantillon est alors recuit grâce au four du bras manipulateur de l'enceinte de préparation. Ce recuit active les processus de diffusion en surface ce qui permet de "guérir" les défauts (trous) créés par les ions argon. Dans le cas de l'or, après un recuit de quelques minutes entre 500°C et 600°C il ne reste sur la surface que des terrasses d'orientation (111) séparées par des marches monoatomiques.

A l'issue des cycles de bombardement-recuit la qualité cristalline de la surface est testée par LEED et l'absence de polluants est vérifiée par AES.

## Dépôts métalliques

Une fois que la surface métallique nue est propre on peut y déposer un matériau pour en étudier la croissance puis les propriétés physiques. Pour ces dépôts on utilise l'évaporation thermique sous vide et on calibre les flux avec une microbalance à quartz.

**Technique d'évaporation :** Pour déposer un matériau sur la surface de l'échantillon nous utilisons la méthode d'évaporation thermique sous vide. Cette technique consiste à projeter les atomes en phase gazeuse sur la surface de l'échantillon. Lors du dépôt la pression dans l'enceinte est inférieure à  $3.10^{-10}$  mbar. L'évaporateur est constitué d'un four à bombardement électronique qui chauffe le matériau à déposer (sous forme de barreau ou dans un creuset) jusqu'à une température où sa pression de vapeur saturante est suffisante. Les atomes sont alors émis avec un grand angle solide et le faisceau est colimaté sur l'échantillon par un simple tube. Le taux de couverture, généralement noté  $\theta$ , mesure la quantité de matière évaporée sur un substrat par unité de surface, il se mesure en monocouche (MC). Un taux de couverture de 1 MC signifie que l'on a déposé une quantité équivalente à une couche atomique

homogène d'évaporant à la surface du substrat. Les flux de dépôts utilisés au cours des études expérimentales de ce travail de thèse sont de l'ordre de  $10^{-2}$  MC.s<sup>-1</sup> et ont été étalonnés grâce à une micro-balance à quartz.

**Etalonnage :** Pour bien contrôler la quantité de matériau déposée nous avons introduit dans l'enceinte de préparation une microbalance à quartz. Son principe réside dans le décalage de fréquence de résonance d'un oscillateur à quartz en fonction de la masse déposée sur sa surface. En pratique, on place dans le faisceau d'évaporant une face d'un cristal de quartz, un contrôleur mesure sa fréquence de résonance au cours du dépôt et donne directement le flux de matière reçu par la surface. Pour calibrer précisément les flux de dépôt, nous avons réalisé plusieurs dépôts de cobalt et d'or sur des échantillons de  $Si_3N_4$  en mesurant, à chaque fois, le flux avec la microbalance à quartz. Ces échantillons ont ensuite été analysés par RBS (Rutherford Back-Scattering) en canalisation. Cette méthode donne le nombre d'atomes déposés en surface et permet donc d'étalonner la microbalance à quartz. Finalement, nous disposons d'un outil précis pour contrôler la quantité de matière déposée ce qui nous permet de connaître le taux de couverture avec une précision inférieure 10%.

## 2.2 Microscopie à effet tunnel (STM)

### 2.2.1 Principe du STM

Le STM est un outil extraordinaire pour qui veut étudier des objets métalliques de taille nano-métrique. L'effet tunnel des électrons a été utilisé pour une application à la microscopie par Binnig et Rohrer [*Binnig et al.*, 1982] en 1982. Le principe de la technique consiste à mesurer le courant tunnel qui passe entre une pointe métallique que l'on déplace à quelques dixièmes de nanomètres au dessus de la surface d'un échantillon conducteur porté à un potentiel  $V$ .

Dans le cas des tensions faibles, on peut écrire  $I_{STM} \propto V e^{-\sqrt{\phi}d}$  où  $\phi$  est le travail de sortie électronique du métal et  $d$  la distance pointe-surface. Pour 1 V de tension le courant détecté est de l'ordre de 1 nA avec une distance pointe-surface de l'ordre de 0,5 nm. La très bonne résolution du microscope à effet tunnel résulte de la variation exponentielle du courant tunnel en fonction de la distance pointe surface  $d$ . Si  $\phi$  vaut quelques eV, une variation de  $d$  de 0,1 nm correspond à une variation du courant tunnel d'un facteur 10. Finalement, la résolution est d'environ 0,001 nm perpendiculairement à la surface et 0,05 nm latéralement.

### 2.2.2 Applications du STM

Le STM permet d'étudier la structure des surfaces à l'échelle atomique. Ce fonctionnement topographique, le plus courant et le plus simple, consiste à balayer la

surface en ajustant le déplacement vertical de la pointe pour garder un courant tunnel constant. Le STM donne alors la possibilité d'obtenir des images de résolution atomique comme dans le cas de la figure 2.2.a.

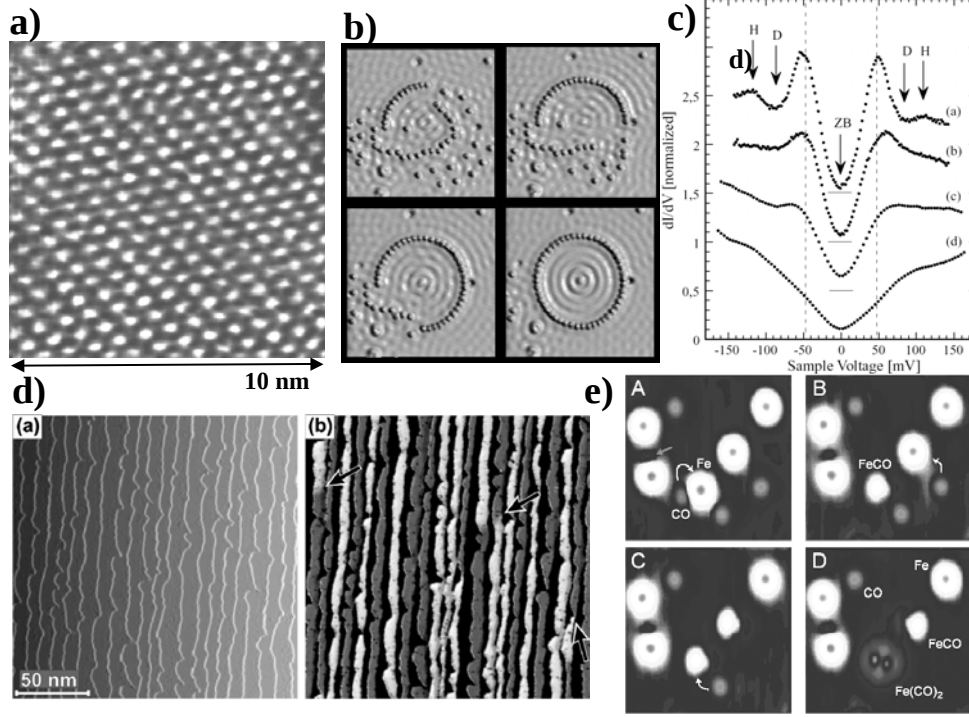


FIG. 2.2: a) Image STM de résolution atomique sur une surface  $Au(111)$ . b) Assemblage atomique par STM d'un cercle d'atomes de Fe sur  $Cu(111)$ . On visualise les ondes de densité électronique à l'intérieur du cercle [Crommie et al., 1993] ([http ://www.almaden.ibm.com/vis/stm/gallery.html](http://www.almaden.ibm.com/vis/stm/gallery.html)). c) Spectres tunnel mesurés sur  $BiSrCaCuO$  dans différentes régions. L'état supraconducteur est perturbé par le désordre de l'échantillon [Cren et al., 2001]. d) Image topographique et magnétique de fils de Fe sur  $W(110)$ . Sur l'image magnétique le contraste correspond à la direction de l'aimantation [Bode et al., 2002]. e) Images  $6,3 \times 6,3 \text{ nm}^2$  du suivi de la formation de la liaison Fe-CO par STM inélastique à 13 K sur  $Ag(110)$  [Lee et Ho, 1999].

Le STM peut aussi être utilisé comme un manipulateur d'atomes ou de molécules. Il est ainsi possible de modifier localement la structure d'une surface en créant des structures atomique artificielles [Eigler et Schweizer, 1990; Bartels et al., 1997] comme dans le cas de la figure 2.2.b.

En toute rigueur, le STM sonde la densité d'états locale de la surface. En effet, une expression plus détaillée du courant tunnel à température nulle est donnée par

[Tersoff et Hamann, 1985] :

$$I_{STM}(r_0, V) \propto \int_{E_F}^{E_F+eV} \rho(r_0, E) N_p(E - eV) dE \quad (2.1)$$

avec  $\rho(r_0, E)$  la densité d'états locale de la surface et  $N_p(E)$  la densité d'états de la pointe. Cette expression illustre une application du STM en tant qu'instrument de spectroscopie. En effet, si la tension  $V$  est fixée, la mesure de  $\frac{\partial I_{STM}}{\partial V} \propto \rho(r_0, E_F + eV)$  permet de faire une spectroscopie électronique locale de la surface. Cette application est illustrée sur la figure 2.2.c issue de [Cren et al., 2001].

La figure 2.2.c, issue de [Bode et al., 2002], illustre la possibilité d'obtenir un contraste magnétique avec le STM [Wiesendanger et al., 1990]. Le principe de base du STM résolu en spin est la différence de barrière tunnel entre deux électrodes magnétiques d'aimantations parallèles ou anti-parallèles.

Enfin, le STM permet de faire de la spectroscopie vibrationnelle locale en utilisant l'effet tunnel inélastique [Stipe et al., 1998b; Stipe et al., 1998a; Stipe et al., 1999]. Il est ainsi possible de différencier des configurations de molécules, de suivre et d'induire des réactions chimiques en surface comme des dissociations moléculaires (cf. Fig 2.2.d) [Lee et Ho, 1999; Lauhon et Ho, 200].

### 2.2.3 STM à température variable

Le microscope à effet tunnel que nous utilisons permet de réaliser des images à température variable. Il s'agit du modèle VT-STM de Omicron<sup>1</sup> qui permet de travailler entre 30 K et 900 K. Pour les températures inférieures à l'ambiante nous utilisons un porte échantillon spécifique qui est refroidi par un cryostat grâce à une tresse de cuivre. Pour les températures supérieures à l'ambiante nous utilisons un porte échantillon qui comporte une résistance chauffante. Nous avons utilisé la variation de température du STM lors de l'étude de la croissance des nano-plots de cobalt au cours de laquelle nous avons effectué des dépôts sur des échantillons placés sur le STM. Cette étude est présentée dans le chapitre 3.

## 2.3 Diffraction des rayons X en incidence rasante (GIXD)

La diffraction des rayons X en incidence rasante est une méthode de choix pour l'étude des structures de surface [Feidenhans, 1989; Robinson et Tweet, 1992]. Nous présentons dans cette partie le principe de cette technique et le dispositif expérimental que nous avons utilisé au cours de ce travail de thèse.

---

<sup>1</sup><http://www.omicron.de>

### 2.3.1 Principes

#### Sensibilité à la surface sous incidence rasante

Contrairement aux électrons, les rayons X ont une faible section efficace dans la matière et ont d'abord été utilisés pour la détermination des structures cristallographiques de volume. En utilisant une incidence proche de l'incidence critique (réflexion totale) on peut cependant contrôler la profondeur de pénétration du faisceau dans le cristal et la limiter à quelques nanomètres. On obtient finalement un signal de diffraction dû à la surface qui permet d'en étudier la structure. L'intensité de ce signal diffracté est très faible et l'étude des structures de surface par diffraction des rayons X en incidence rasante nécessite l'utilisation du rayonnement synchrotron.

#### Diffraction par une surface

Le caractère bi-dimensionnel d'une surface libère un degré de liberté dans la règle de sélection des tâches d'intensité de l'espace réciproque. Les pics de Bragg d'un cristal volumique deviennent alors des tiges d'intensité perpendiculaires à la surface. Du fait de l'épaisseur finie de la zone sondée (dizaine de plans atomiques) l'intensité est modulée le long de ces tiges de troncature. Cette intensité est maximale pour les conditions de Bragg du volume sous-jacent à la surface et elle est plus spécifique à la surface en conditions d'anti-phase, c'est à dire entre deux pics de Bragg. L'analyse de la modulation d'intensité le long des tiges de troncature permet de déterminer la structure atomique en surface [Croset *et al.*, 2002; Prévot *et al.*, 2003]

#### Principe de la diffraction par une surface vicinale

Nous avons vu au chapitre 1 que les surfaces vicinales qui nous intéressent sont des surfaces stables qui présentent un réseau régulier de marches atomiques de hauteur  $h$  séparées par des terrasses (111) de largeur  $w$ . En plus de la symétrie cristalline atomique des terrasses il existe donc une période  $w$  dans la direction perpendiculaire aux marches. En première approximation, le réseau réciproque d'une surface vicinale résulte donc de la convolution d'une terrasse de largeur  $w$  par un réseau de marches de pas  $w$ . On repère par  $H$  (respectivement  $L$ ) la direction de l'espace réciproque qui correspond à la direction planaire et perpendiculaire aux marches (respectivement perpendiculaire à la surface moyenne) de l'espace réel. Dans le plan ( $H, L$ ) l'intensité est distribuée sur des tiges situées tous les  $H = n\frac{2\pi}{w}$  et inclinées de l'angle vicinal  $\theta$  par rapport à la direction  $L$ . Comme pour une surface dense, l'intensité est modulée le long des tiges du fait de l'épaisseur finie de la zone sondée. La taille finie des terrasses agit comme un filtre qui limite l'intensité à une zone de largeur  $\pi/w$  autour des points  $H = n\frac{2\pi}{w}$ . Finalement, le réseau réciproque d'une surface vicinale de (111) d'un cristal cubique à faces centrées est schématisé sur la figure 2.3

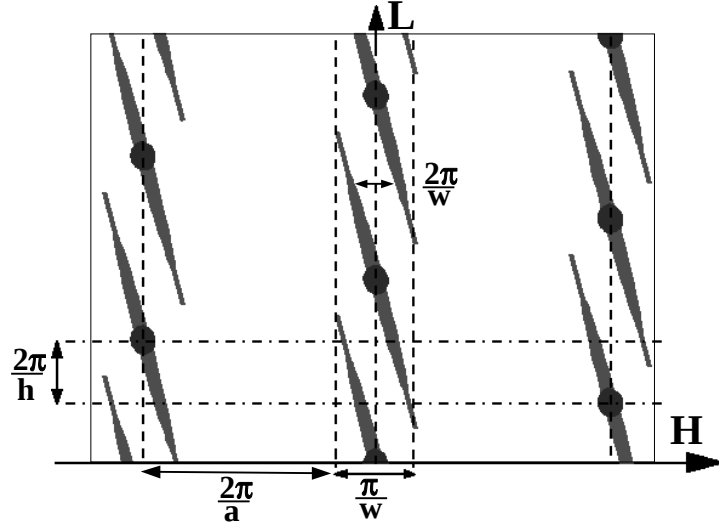


FIG. 2.3: *Distribution de l'intensité diffractée dans le plan  $(H, L)$  du réseau réciproque d'une surface vicinale de  $(111)$  d'un cristal cubique à faces centrées.  $w$  est la largeur des terrasses.  $a$  est la période atomique au sein de la terrasse le long de la direction perpendiculaire aux marches.  $h$  est la distance entre les plans  $(111)$ .*

### 2.3.2 Dispositif expérimental

Toutes les mesures de diffraction des rayons X en incidence rasante qui sont présentées dans ce manuscrit ont été réalisées sur la ligne de lumière DW12 de DCI au LURE d'Orsay. Nous avons collaboré avec Y. Garreau et M. Sauvage-Simkin. La ligne de lumière achemine le faisceau d'énergie 15 keV jusqu'à une fenêtre de beryllium qui permet aux rayons X de pénétrer dans l'enceinte ultra-vide du diffractomètre. Le diffractomètre permet différentes rotations et translation de l'échantillon et du détecteur. Un évaporateur peut être monté directement sur la chambre du diffractomètre pour faciliter les études de structure de films minces en fonction de leur épaisseur. Nous avons utilisé cette configuration pour la caractérisation structurale des films de cobalt présentée dans le chapitre 5. En plus de cette chambre de diffraction le dispositif ultra-vide comporte une chambre de préparation et une chambre de MBE. La chambre de préparation est couplée à un sas d'introduction rapide et contient un canon à bombardement ionique, un four à bombardement électronique pour la préparation des échantillons ainsi qu'un LEED et un Auger pour la caractérisation des surfaces. Un évaporateur permet de réaliser des dépôts et un dispositif de vanne ultravide et de pompage indépendant permet de changer l'évaporant (ou l'évaporateur) sans perturber le reste de l'enceinte.

## 2.4 Effet Kerr magnéto-optique (MOKE)

### 2.4.1 Présentation de l'effet Kerr magnéto-optique

#### Introduction

On dit que l'on est en présence d'un effet magnéto-optique lorsque l'état de polarisation de la lumière est modifié à la traversée d'un milieu magnétique ou à la réflexion sur la surface d'un tel milieu. Les premiers effets magnéto-optiques ont été mis en évidence par Michael Faraday en 1845 (effet en transmission) et par John Kerr en 1877 (effet en réflexion).

La compréhension théorique des effets magnéto-optiques a débuté avec Maxwell [Maxwell, 1873]. Il a réalisé que l'origine de ces effets réside dans la différence de vitesse de propagation pour les deux modes de polarisation circulaire (droite et gauche) de la lumière dans un milieu aimanté. En 1932, Hulme a donné la première description quantique de l'effet Kerr magnéto-optique [Hulme, 1932]. Le couplage spin-orbite correspond à l'interaction entre le moment de spin de l'électron et le champ magnétique qui résulte de son mouvement. Cette interaction couple le moment de spin de l'électron à son mouvement et relie donc les propriétés magnétiques et optiques d'un milieu ferromagnétique.

La première application de cet effet magnéto-optique à l'étude du magnétisme des films minces a été faite par Moog et Bader en 1985 [Moog et Bader, 1985]. Depuis le MOKE est largement utilisé pour caractériser la réponse magnétique des films et des surfaces magnétiques [Qiu et Bader, 1999; Qiu et Bader, 2000]. Il permet la mesure d'un signal directement proportionnel à l'aimantation. Son utilisation la plus courante est la mesure du cycle d'hystérésis mais il faut aussi mentionner la microscopie Kerr qui permet de faire l'imagerie magnéto-optique des domaines magnétiques. Un des avantages du MOKE est sa simplicité et son faible coût alors que ses principales limites sont l'étendue macroscopique de la sonde, la faible résolution spatiale et le caractère relatif de la mesure (pas de mesure absolue de l'aimantation de façon directe).

#### Un peu de formalisme

Les propriétés optiques d'un corps sont déterminées par la réponse de ce corps à un champ électrique et sont contenues dans son tenseur diélectrique. Ainsi, la description macroscopique de l'effet Kerr magnéto-optique est basée sur l'analyse des propriétés diélectriques du milieu étudié.

Le tenseur diélectrique  $[\varepsilon_{ij}]$  peut être décomposé en une partie symétrique et une partie anti-symétrique. La partie symétrique est diagonalisable et dans le cas particulier d'un milieu isotrope les trois valeurs propres sont égales à la constante diélectrique  $\varepsilon$  du milieu. Les effets magnéto-optiques trouvent leur origine dans la partie anti-symétrique du tenseur  $[\varepsilon_{ij}]$ . Si l'on introduit la constante complexe de

Voigt  $Q_V$  [Voigt, 1908] on peut écrire la réponse diélectrique d'un milieu aimanté :

$$\vec{D} = \varepsilon(\vec{E} + iQ_V \vec{m} \times \vec{E}) \quad (2.2)$$

Le tenseur diélectrique d'un tel milieu s'écrit alors :

$$[\varepsilon] = \varepsilon \begin{pmatrix} 1 & -iQ_V m_z & iQ_V m_y \\ iQ_V m_z & 1 & -iQ_V m_x \\ -iQ_V m_y & iQ_V m_x & 1 \end{pmatrix} \quad (2.3)$$

avec  $m_x$ ,  $m_y$  et  $m_z$  les composantes de l'aimantation  $\vec{m}$ . Aux deux modes normaux de polarisation circulaire gauche (PCG) et droite (PCD) correspondent deux indices de réfraction :

$$n_L = \sqrt{\varepsilon}(1 - Q_V \vec{m} \cdot \vec{k}) \quad \text{et} \quad n_R = \sqrt{\varepsilon}(1 + Q_V \vec{m} \cdot \vec{k}) \quad (2.4)$$

On voit ainsi que l'existence des termes diélectriques non diagonaux (c'est à dire d'une constante de Voigt non nulle) conduit à une différence dans les vitesses de propagation et dans les taux d'absorption des modes PCG et PCD.

Si l'on veut expliciter l'effet Kerr magnéto-optique il faut calculer la réflectivité pour différentes polarisations de la lumière. La méthode générale pour un système multi-couche consiste à résoudre les équations de Maxwell et à satisfaire les conditions aux limites à chaque interface [Višňovský, 1986; Zak et al., 1990; Zak et al., 1991]. Dans le cas d'un film magnétique ultramince on considère que l'épaisseur optique totale du film est très faible devant la longueur d'onde de la lumière, c'est la limite des films ultraminces [Višňovský et al., 1995]. On obtient alors la matrice de réflexion :

$$R = \begin{pmatrix} r_{ss} & r_{sp} \\ r_{ps} & r_{pp} \end{pmatrix} \quad \text{telle que} \quad \vec{E}_r = R \cdot \vec{E}_i \quad (2.5)$$

$\vec{E}_i$  et  $\vec{E}_r$  sont les champs électriques incident et réfléchi par l'échantillon. Les indices  $s$  et  $p$  désignent les polarisations rectilignes respectivement perpendiculaire au plan d'incidence et parallèle au plan d'incidence. Pour un système sandwich composé d'un substrat non magnétique, d'un film ultramince ferromagnétique et d'une couche de passivation non magnétique on peut établir les relations entre les composantes de réflexion de la matrice  $R$  et les différentes caractéristiques magnéto-optiques du système [Višňovský et al., 1995; Qiu et Bader, 1999; Qiu et Bader, 2000]. Les rotations Kerr complexes qui regroupent la rotation Kerr  $\phi'$  et l'ellipticité Kerr  $\phi''$  pour une lumière incidente de polarisation  $p$  ou  $s$  sont données par :

$$\phi_p = \phi'_p + i\phi''_p = \frac{r_{sp}}{r_{pp}} \quad \text{et} \quad \phi_s = \phi'_s + i\phi''_s = \frac{r_{ps}}{r_{ss}} \quad (2.6)$$

## Les configurations de mesure

Lorsque l'on effectue une mesure d'effet Kerr magnéto-optique on fixe plusieurs paramètres expérimentaux comme la polarisation de la lumière incidente et l'orientation que fait le champ extérieur avec le plan d'incidence. On distingue trois principaux types d'effets Kerr qui correspondent à différentes directions de l'aimantation par rapport au plan de la couche magnétique et au plan d'incidence de la lumière.

L'effet Kerr polaire désigne le cas où un faisceau de lumière polarisé rectilignement éclaire, en incidence normale, une surface magnétique aimantée perpendiculairement à son plan (cf. Fig.2.4.b).

L'effet Kerr longitudinal correspond au cas où l'on éclaire une surface d'aimantation spontanée planaire avec un faisceau de lumière polarisé rectilignement et en incidence oblique de manière à avoir l'aimantation dans le plan d'incidence de la lumière (cf. Fig.2.4.a).

Ces deux cas sont les plus classiques et donnent lieu à des effets (rotation et ellipticité) proportionnels à l'aimantation. Plus précisément, il apparaît dans les expressions 2.4 un résultat très important : seule la composante de l'aimantation projetée sur le vecteur de propagation de la lumière est mesurée en effet Kerr. Pour être complets mentionnons qu'il existe une troisième configuration pour laquelle l'aimantation est dans le plan de la couche magnétique mais perpendiculaire au plan d'incidence. Cet effet Kerr transverse n'a pas été utilisé au cours de cette thèse. Cependant, nous verrons dans la dernière partie de ce chapitre qu'il peut être intéressant d'étudier certains types d'échantillons avec une configuration plus inhabituelle. Cette configuration correspond au cas où l'échantillon à aimantation planaire est éclairé par un faisceau de lumière polarisé rectilignement et en incidence normale (cf. Fig.2.4.c). On s'attend alors à ne mesurer aucun signal de rotation Kerr<sup>1</sup>. Nous verrons dans le chapitre 6 qu'il existe pourtant une situation où l'on détecte un signal d'effet Kerr dans cette géométrie.

Pour mettre en évidence les mécanismes d'apparition de la modification de l'état de polarisation de la lumière par la réflexion sur un milieu aimanté on considère plus particulièrement l'effet Kerr polaire. La figure 2.4.d illustre ce cas avec une lumière incidente polarisée  $p$  et une incidence  $\vartheta_0$ . Le champ électrique de l'onde lumineuse induit, pour les électrons de surface, des oscillations dans le plan d'incidence. Alors que la lumière réfléchie est en grande partie polarisée dans le même plan que la lumière incidente (composante  $R_N$ ), les électrons qui subissent une force de Lorentz résultant de leur mouvement au sein du champ magnétique de la couche induisent une composante  $R_K$  pour le champ réfléchi. La superposition de ces composantes conduit à une lumière réfléchie polarisée elliptiquement. L'analyse de cette lumière réfléchie permet d'isoler la composante  $R_K$  et de quantifier l'aimantation de la couche magnétique.

---

<sup>1</sup>Il existe cependant, une différence de réflectivité pour les polarisations  $s$  et  $p$ .

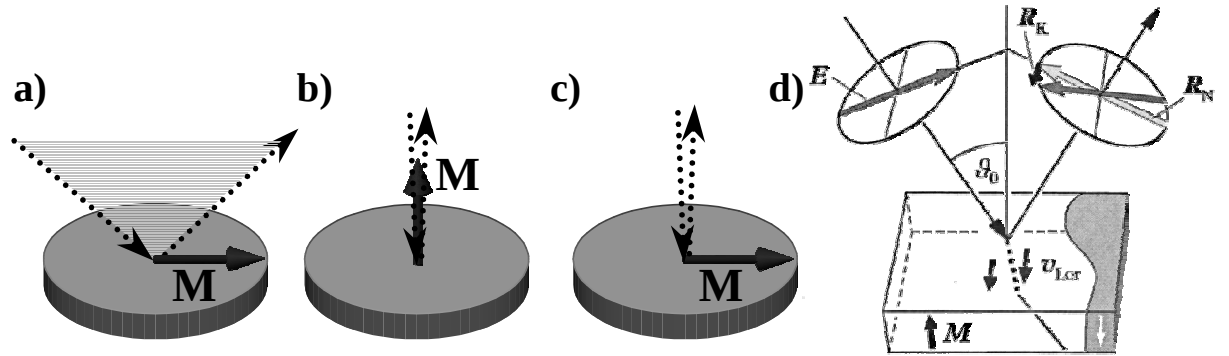


FIG. 2.4: *Différentes configurations de mesure pour l'effet Kerr magnéto-optique : a) Configuration longitudinale, b) Configuration polaire, c) Configuration en champ planaire et incidence normale. d) Schéma de l'effet Kerr polaire issu de la référence [Hubert et Schafer, 1998].*

## 2.4.2 Le MOKE appliqué à l'étude de nano-structures magnétiques

### Introduction

Un enjeu important de la physique des nano-objets est la caractérisation des propriétés magnétiques de nano-structures localisées à la surface d'un substrat non magnétique. Il paraît donc très intéressant d'utiliser les effets magnéto-optiques pour mener de telles études. Avant d'en évoquer la mise en oeuvre pratique nous passons en revue les questions préliminaires qu'il est légitime de se poser avant d'envisager l'utilisation de l'effet Kerr pour l'étude de nano-structures magnétiques.

On vient de voir que les effets magnéto-optiques et plus particulièrement les effets Kerr polaire et longitudinal permettent de mesurer l'aimantation d'un matériau magnétique à l'aide d'une source lumineuse. Pour une caractérisation de l'aimantation (tracé d'un cycle d'hystérésis) un laser He-Ne convient très bien. Si on veut étudier la réponse spectrale magnéto-optique on peut utiliser une source blanche et analyser la lumière réfléchie avec un monochromateur.

### Possibilités de mesures

Analyser l'état de polarisation de la lumière réfléchie par un échantillon magnétique dans le but de mesurer l'effet Kerr magnéto-optique peut se faire soit par une méthode avec modulation de la polarisation et détection synchrone soit par une méthode en continu.

#### Mesure en continu :

Le principe de la mesure de l'effet Kerr peut être explicité dans le cadre de la figure 2.4.d. On peut écrire les champs électriques incidents et réfléchis :

$$\vec{E}^i = \begin{pmatrix} 0 \\ E \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \vec{E}^r = \begin{pmatrix} R_K \\ R_N \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} r_{ss} & r_{sp} \\ r_{ps} & r_{pp} \end{pmatrix} \cdot \vec{E}^i = \begin{pmatrix} E r_{sp} \\ E r_{pp} \end{pmatrix} \quad (2.7)$$

Si l'échantillon n'est pas magnétique le terme non diagonal  $r_{sp}$  est nul et la lumière réfléchie garde la même polarisation (ici  $p$ ) que la lumière incidente. Si l'on est en présence d'un échantillon magnétique  $r_{sp}$  est proportionnel à l'aimantation et mesurer la composante  $R_K = E r_{sp}$  permet de caractériser l'aimantation du système. Expérimentalement, on pourrait mesurer la composante  $R_K$  en utilisant un analyseur croisé avec le polariseur d'entrée qui éliminerait la composante  $R_N$ . Malheureusement, on mesure alors une intensité  $I_K = |R_K|^2 \propto m^2$  quadratique en  $m$ . L'intensité mesurée est alors très faible et la mesure est peu précise.

Une solution plus astucieuse consiste à analyser la lumière réfléchie avec un polariseur décroisé d'un petit angle  $\delta$  avec le polariseur d'entrée. On considère un polariseur d'entrée qui polarise rectilignement le faisceau incident. L'analyseur est décroisé par rapport au polariseur d'un petit angle  $\delta$ . Si l'on place une photodiode après l'analyseur elle mesure une intensité  $I = |\vec{E}_m|^2$  où  $\vec{E}_m$  est le champ électrique en sortie de l'analyseur. Dans le cas d'une onde incidente  $s$  et en notant  $I_0 = |r_{ss} E_i \delta|^2$  l'intensité mesurée pour un échantillon non magnétique on a :

$$I \approx |r_{ss} E_i|^2 |\delta + \phi'_s + i\phi''_s|^2 \approx I_0 \left( 1 + \frac{2\phi'_s}{\delta} \right) \quad \text{avec} \quad \phi_s = \phi'_s + i\phi''_s = \frac{r_{ps}}{r_{ss}} \quad (2.8)$$

Cette méthode permet une bonne sensibilité mais impose de détecter une intensité lumineuse très faible en travaillant proche de l'extinction.

On peut envisager une autre méthode de mesure continue qui permet d'augmenter l'intensité lumineuse à mesurer sans diminuer la sensibilité. On place après l'échantillon un système séparateur de polarisation type Glan-Taylor avec ses deux axes à  $45^\circ$  des axes  $s$  et  $p$ . Ce séparateur équivaut à deux analyseurs  $A_+$  et  $A_-$  avec  $\alpha_+ = +\frac{\pi}{4}$  et  $\alpha_- = -\frac{\pi}{4}$ . On mesure ainsi les intensités  $I_+$  et  $I_-$  des deux composantes (+) et (-) réfléchies par l'échantillon puis on fait la différence  $I_\Delta = |I_+ - I_-|$ <sup>1</sup>. Dans le cas d'une onde incidente  $s$  ( $\alpha_p = 0$ ) et en notant  $I_0 = \frac{1}{2} |r_{ss} E_i|^2$  l'intensité mesurée pour chaque composante dans le cas d'un échantillon non magnétique on a :

$$I_\pm = \frac{1}{2} |r_{ss} E_i|^2 |1 \pm \phi_s|^2 \approx I_0 (1 \pm 2\phi'_s) \quad \text{et} \quad I_\Delta = 4 I_0 \phi'_s \quad (2.9)$$

---

<sup>1</sup>Si on est capable de mesurer la somme  $I_\Sigma = |I_+ + I_-|$  on peut alors mesurer le rapport  $\Phi = I_\Sigma / I_\Delta = 2 \phi'_s$  qui donne la valeur absolue de la rotation Kerr.

Remarquons que  $I_0$  est ici nettement augmenté par rapport au cas précédent ce qui permet une détection plus aisée. Cette méthode a aussi l'avantage de supprimer automatiquement les bruits de source. Une variante est de ne mesurer qu'une des composantes (+) et (-) et de lui soustraire une fraction de l'intensité incidente. La réalisation d'une telle soustraction peut se faire en évitant le bruit des amplifications électroniques en montant les deux photodiodes (+) et (-) têtes bèches comme schématisé sur la figure 2.5.

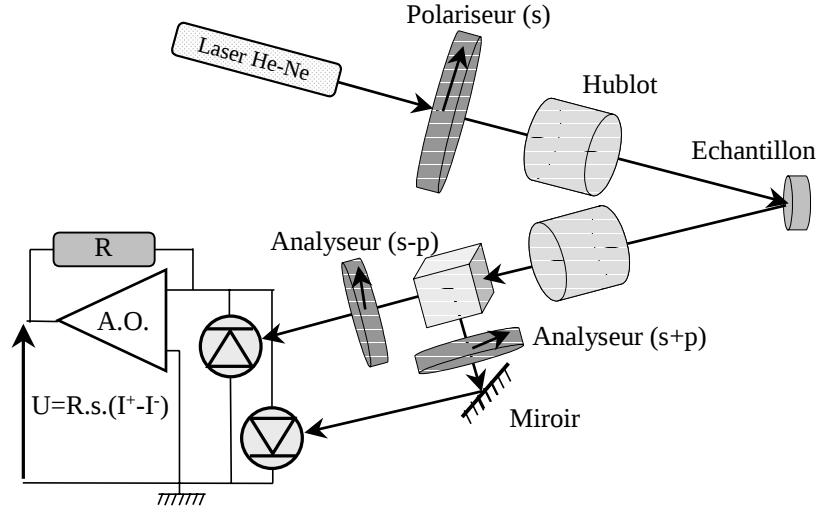


FIG. 2.5: Schéma de principe du montage. Les différents éléments optiques et le principe de détection sont représentés.

Les résultats (2.8) et (2.9) illustrent la mesure du terme de rotation Kerr  $\phi'_s$  mais nous pouvons remarquer qu'il est possible de mesurer le terme d'ellipticité  $\phi''_s$  en utilisant des lames biréfringentes. De telles lames sont aussi utiles pour compenser l'éventuelle biréfringence parasite des hublots ultra-vides.

#### Mesure en modulation de l'état de polarisation [Sato, 1981] :

Dans ce cas on ajoute un modulateur photo-élastique avant l'analyseur qui crée un déphasage  $\eta$  entre les deux composantes  $s$  et  $p$  de la lumière. Le modulateur fonctionne à une fréquence  $\omega$  si bien que  $\eta = \eta_0 \sin \omega t$ . En sortie du modulateur l'analyseur est orienté à  $45^\circ$  des axes  $s$  et  $p$  et l'intensité mesurée est donnée par :

$$I = \frac{1}{2} |r_{ss} E_i|^2 (1 + 2(\phi'_s \cos \eta - \phi''_s \sin \eta)) \quad (2.10)$$

En utilisant les premières fonctions de Bessel on obtient les signaux détectés aux fréquences  $\omega$  et  $2\omega$ . En notant  $I_0 = \frac{1}{2} |r_{ss} E_i|^2$  l'intensité mesurée pour un échantillon non magnétique on a :

$$I_\omega = -4I_0 J_1(\delta_0) \phi''_s \quad \text{et} \quad I_{2\omega} = +4I_0 J_2(\delta_0) \phi'_s \quad (2.11)$$

On peut donc mesurer soit la rotation soit l'ellipticité Kerr en choisissant de détecter le signal de manière synchrone à la fréquence simple ou double. Cette technique de modulation-détection synchrone permet une bonne sensibilité et ouvre de nombreuses possibilités de mesures [Sato, 1981]. Elle offre notamment l'avantage de pouvoir mesurer simplement la rotation et l'ellipticité Kerr.

## Résolution en épaisseur

La résolution en épaisseur de la mesure de l'aimantation par effet magnéto-optique est déterminée par l'effet de peau. Pour une onde électromagnétique de fréquence  $\omega$  et un matériau de conductivité  $\gamma$  elle vaut  $\delta = \sqrt{\frac{2}{\omega\gamma\mu_0}}$ . Pour des métaux comme l'argent, l'or ou le cobalt, les épaisseurs de peau dans le domaine visible sont de l'ordre de la centaine de nanomètres. L'effet Kerr magnéto-optique permet donc d'intégrer le signal magnétique en surface. Les nano-structures classiques (couche unique ou dépôt sub-monocouche) ont leur épaisseur très inférieure à la profondeur de la zone explorée et l'intensité du champ électrique qui les sonde est supposée constante.

Soulignons la possibilité d'utiliser l'effet Kerr avec une résolution en profondeur [Hamrle et al., 2002]. Cette particularité peut s'avérer très utile pour l'étude détaillée des multicouches magnétiques.

## Sensibilité

Dans l'idée de caractériser de très petits objets magnétiques une question cruciale est celle de la résolution de la mesure et de la quantité minimale de matière magnétique que l'on peut caractériser. Pour une mesure de cycle d'hystérésis en incidence normale l'amplitude du signal est donnée, d'après (2.4) par :

$$\frac{\Delta I}{I_0} = \frac{4\phi'_{sat}}{\delta} \quad (2.12)$$

Pour le système Fe/Cu l'amplitude de l'effet Kerr est de  $4.10^{-5}$  rad.nm<sup>-1</sup> [Qiu et Bader, 1999]. Si on utilise un angle de décroisement<sup>1</sup>  $\delta \approx 10^\circ \approx 0,17$  rad et que l'on travaille avec une source laser He-Ne classique donnant une intensité incidente de l'ordre du milli-Watt on obtient un effet de l'ordre de :

$$\frac{\Delta I}{I_0} \approx 10^{-3} \text{ nm}^{-1} \quad \text{avec} \quad I_0 \approx 3.10^{-5} \text{ W} \quad \text{et} \quad \Delta I \approx 3.10^{-8} \text{ W.nm}^{-1} \quad (2.13)$$

Une photodiode classique a une sensibilité de l'ordre de 0,7 A.W<sup>-1</sup> et on doit donc détecter des variations de courant de l'ordre de la dizaine de pico-Ampère sur

---

<sup>1</sup>Cet angle résulte d'un compromis entre le maintien d'un signal de fond suffisant et l'exaltation de l'effet magnéto-optique

un signal de fond de l'ordre de la dizaine de micro-Ampère pour des épaisseurs de l'ordre du nanomètre.

En utilisant un bon amplificateur opérationnel et une résistance de l'ordre du méga-Ohm on est ramené à mesurer des variations de tensions de l'ordre du milli-Volt pour des couches magnétiques d'épaisseurs quelques Å. Il est donc possible d'effectuer des mesures magnéto-optiques sur des dépôts sub-monocouches de matériaux ferromagnétiques.

### 2.4.3 Développement d'une enceinte de mesures magnéto-optiques en ultravide

Au cours de ce travail de thèse nous avons beaucoup utilisé l'effet Kerr magnéto-optique pour étudier les propriétés magnétiques des films de cobalt. Pour toutes ces études nous avons collaboré avec l'équipe de Jacques Ferré au Laboratoire de Physique des Solides de l'université Paris Sud. Nous avons utilisé une technique de modulation de la polarisation de la lumière par un modulateur photo-élastique et de détection synchrone du signal. Nous avons fait ces mesures à l'air, sur des sandwiches Au/Co/Au déposés dans notre bâti ultravide. La couche de passivation d'or a pour but d'éviter l'oxydation du cobalt mais elle a aussi des conséquences importantes sur les propriétés magnétiques du système [*Beauvillain et al.*, 1994; *Langer et al.*, 2002]. Par ailleurs, cette couche d'or est supposée inactive sur la structure de l'interface supérieure, i.e., on considère que cette interface est semblable à l'interface vide/Co avant son dépôt. Si cette hypothèse peut sembler raisonnable pour des films continus de plusieurs couches atomiques il n'en est pas de même lorsqu'il s'agit de dépôts sub-monocouches. Ajoutons à cela l'effet absorbant de cette couche de protection et l'on comprend combien il paraît intéressant de pouvoir effectuer des mesures magnéto-optiques sans couche de passivation. C'est dans ce but que nous avons voulu développer une enceinte de mesure d'effet Kerr ultravide couplée à notre bâti existant.

La mise en oeuvre d'une mesure d'effet Kerr magnéto-optique nécessite plusieurs éléments que l'on peut regrouper en trois parties principales :

- Une source de lumière incidente polarisée
- Une source de champ magnétique
- Un système optique d'analyse de la polarisation de la lumière réfléchie

La réalisation d'une telle mesure sur un échantillon en ultravide impose des contraintes supplémentaires :

- Degrés de liberté pour l'orientation de l'échantillon
- Contrainte spatiale pour la source de champ magnétique
- Utilisation de hublots optiques non contraints adaptés aux visées optiques

Nous présentons dans la suite les choix que nous avons fait pour développer notre propre dispositif expérimental.

## Les sources de champ et de lumière

### La source lumineuse :

Les mesures qui nous intéressent sont principalement des mesures de cycles d'hystérésis et nous utilisons donc une source monochromatique. Notre choix s'est porté dans un premier temps sur un laser He-Ne de table qui possède une stabilité et une puissance suffisante.

### La source de champ magnétique :

Il y a plusieurs priorités concernant la source de champ magnétique. Celle-ci doit produire le champ le plus fort et le plus homogène possible tout en prenant peu de place, sans consommer trop de courant, ni trop chauffer. En ce qui nous concerne nous avons choisi de réaliser une source de champ extérieure à notre bâti ultra-vide. Cette solution permet de préserver la qualité du vide ( $5.10^{-11}$  mbar) tout en obtenant des champs magnétiques intenses ( $\sim 0,3$  T).

Un point important est de pouvoir réaliser des mesures d'effets Kerr en configuration polaire et en configuration longitudinale ce qui nécessite de pouvoir appliquer un champ magnétique soit perpendiculaire à l'échantillon soit dans son plan. On doit donc soit tourner l'échantillon soit tourner le champ <sup>1</sup>. Nous avons préféré prévoir deux sources de champ distinctes : un bobinage simple pour le champ polaire et un électro-aimant pour le champ planaire. Dans un premier temps nous avons voulu nous concentrer sur les expériences en champ polaire et nous avons donc optimisé une bobine adaptée à notre géométrie.

Si l'on considère une bobine de diamètre intérieur  $a$ , de diamètre extérieur  $b$  et de longueur  $h$  avec un fil de section rectangulaire (pour optimiser le remplissage) de dimension  $(e_h \times e_r)$  et de résistivité  $\rho(T)$  on peut écrire le champ en son centre ainsi que sa résistance :

$$H = \frac{\mu_0 I h}{2 e_h e_r} \ln \left[ \frac{b(1 + \sqrt{1 + h^2/b^2})}{a(1 + \sqrt{1 + h^2/a^2})} \right] \quad \text{et} \quad R = \rho(T) \frac{\pi h (b^2 - a^2)}{4 (e_h e_r)^2} \quad (2.14)$$

L'optimisation d'une telle source de champ magnétique est un problème à multiples paramètres et il faut rapidement fixer quelques données. Nous travaillons avec une alimentation bipolaire (20 V ; 20 A) ce qui impose une résistance de  $R = 1 \Omega$  pour le bobinage. Le diamètre intérieur de la bobine est imposé par le tube qui la supportera et vaut  $a=42$  mm. Dans le but d'avoir la bobine de 1 ohm la plus efficace nous avons envisagé de diminuer la résistivité du bobinage de cuivre en le refroidissant à 100 K ( $\rho_{Cu}(100 \text{ K})=4,4.10^{-9} \Omega.m$ ). Le choix de  $R$  permet de relier la valeur du diamètre extérieur  $b$  à celle du diamètre intérieur  $a$  et les deux seuls paramètres

---

<sup>1</sup>Une autre possibilité est de fonctionner avec une source quadrupolaire qui autorise toute les orientations de champ au prix d'une perte en amplitude. Nous n'avons pas choisi cette option pour des problèmes d'encombrement.

ajustables sont la longueur  $h$  et le produit  $e_h \times e_r$ . La figure 2.6.a représente la carte d'intensité du champ magnétique au centre de la bobine en fonction de ces deux paramètres ajustables.

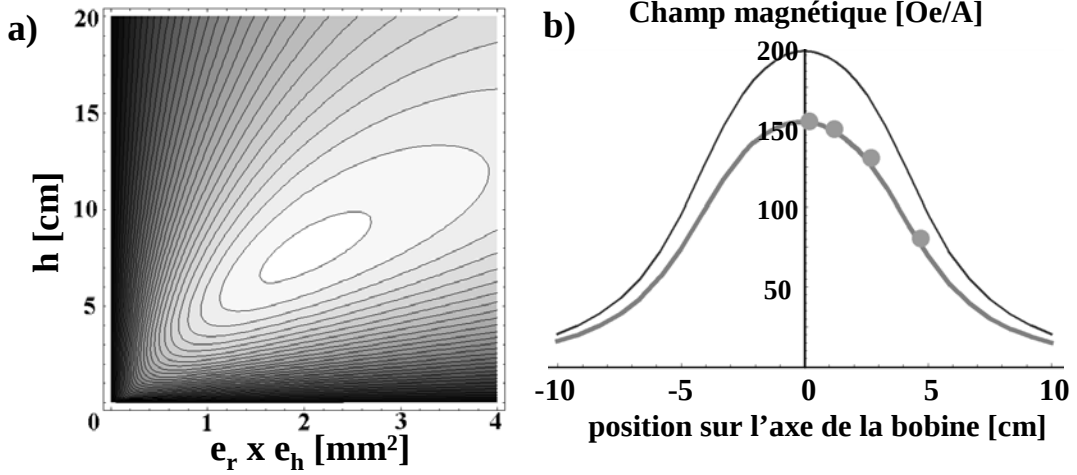


FIG. 2.6: a) Courbes de niveaux du champ magnétique créé pour un courant de 1 A au centre de la bobine en fonction des paramètres  $h$  et  $e_h \times e_r$ . Plus la teinte est claire plus le champ est élevé. b) Variation du champ magnétique obtenu pour un courant de 1 A sur l'axe de la bobine. En noir : le calcul pour un fil de cuivre de 2 mm<sup>2</sup> de section. En gris : les points expérimentaux mesurés sur la bobine et la courbe du calcul tenant compte du verni d'épaisseur  $\sim 0,15$  mm.

On voit qu'il existe un maximum de champ pour les valeurs  $e_h \times e_r \approx 2$  mm<sup>2</sup> et  $h \approx 8$  cm. On choisit donc de réaliser un bobinage de dimensions  $h=80$  mm,  $a=42$  mm et  $b=130$  mm avec un fil méplat de 2 mm<sup>2</sup> de section.

Le champ magnétique sur l'axe de la bobine est représenté sur la figure 2.6.b. Le calcul donne 190 Oe/A alors que la bobine réelle crée un champ de 155 Oe/A. La différence provient du volume de verni que l'on n'a pas pris en compte dans le premier calcul. Pour une tension de 20 V et un courant de 20 A cette bobine nous permet d'obtenir un champ de 3100 Oe. La self estimée de la bobine est  $L \approx 125$  mH ce qui donne un temps caractéristique  $\tau = L/R \approx 125$  ms suffisamment court pour les applications basses fréquences que nous envisageons.

### La mesure du signal

Nous avons vu qu'il existe plusieurs manières de mesurer un signal d'effet Kerr magnéto-optique. La mesure de l'état de polarisation de la lumière effectuée par une technique de modulation-détection synchrone est très performante car elle est sensible et permet plusieurs types de mesures. Nous avons cependant commencé par développer un système de mesure en continu avec une méthode de différence (cf.

Fig. 2.5). A plus long terme, nous serons sans doute amenés à utiliser un modulateur photo-élastique et une détection synchrone pour bénéficier des avantages de cette technique de mesure.

## L'enceinte ultravide

Le bâti ultravide que nous avons développé devait répondre à plusieurs contraintes. Nous avons déjà évoqué les degrés de liberté nécessaires pour l'échantillon. Ceux ci ont imposé une géométrie pour le porte échantillon et donc pour le bras manipulateur et la source de champ. Une autre contrainte est donnée par le bâti existant auquel nous avons voulu coupler cette enceinte de mesures d'effet Kerr. Le principal souci est alors de pouvoir transférer simplement l'échantillon d'une partie à l'autre de l'enceinte.

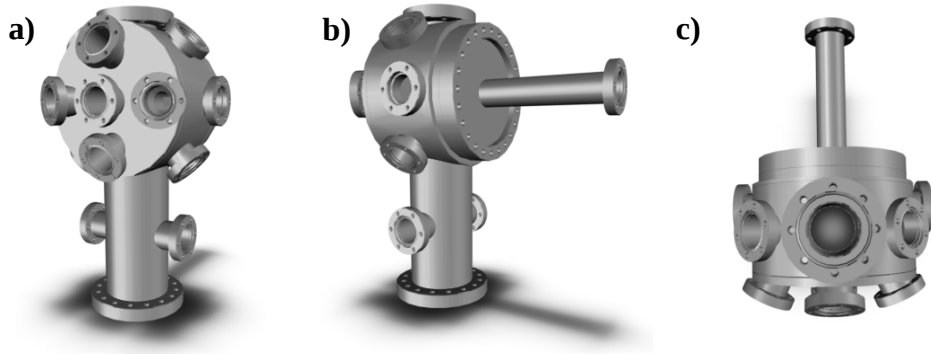


FIG. 2.7: Vues 3D de l'enceinte développée pour les mesures d'effet Kerr. a) Vue des piquages destinés aux hublots (3 piquages horizontaux), au canon ionique (piquage haut) et à l'évaporateur (piquage bas). b) Vue du tube de 40 mm qui supportera la bobine et qui contiendra le bras manipulateur. c) Vue de dessus.

Enfin, il faut adapter des visées optiques munies de hublots ultra-vide. Ces visées doivent permettre des mesures polaires en incidence normale et des mesures longitudinales en une incidence oblique. Une contrainte propre à nos échantillons vicinaux est l'importance de la rotation azimutale de l'échantillon. En d'autres termes, nous voulons pouvoir appliquer toutes les orientations de champ planaire. Nous avons donc opté pour un bras manipulateur avec un mouvement de translation longitudinale et une platine de translation latérale. Ce bras permet aussi une rotation continue autour de son axe qui est aligné avec la normale à l'échantillon. Le bras est logé dans un tube de petit diamètre (40 mm) qui s'ouvre sur une enceinte de forme cylindrique (cf Fig. 2.7). C'est autour de ce tube que la bobine est placée pour créer le champ polaire et que l'électro-aimant viendra créer le champ planaire. Nous avons prévu un bras manipulateur équipé d'un cryostat pour pouvoir mener des expériences à basse

température. La limite super-paramagnétique des nano-structures magnétiques impose que l'on puisse faire des mesures à des températures de quelques dizaines de Kelvin.

Tous ces aspects ont été pris en compte dans l'enceinte présentée sur la figure 2.7. Cette enceinte est aujourd'hui en place et les premières mesures magnétiques ont été réalisées avec succès. Ce dispositif, couplé au STM offre de grandes possibilités de mesures et sera, dans un avenir très proche, au centre des études de notre équipe.

#### **2.4.4 Conclusion**

Pour conclure nous pouvons dire que les effets magnéto-optiques apparaissent très bien adaptés à l'étude du nano-magnétisme. L'effet Kerr est une méthode de mesure relativement simple à mettre en oeuvre à faible coût et qui permet des applications variées (spectroscopie, imagerie, dynamique de renversement...). Cette technique s'adapte facilement à un dispositif ultra-vide et permet de mesurer de faibles quantités de matière magnétique. L'effet Kerr magnéto-optique est donc une méthode de choix pour la caractérisation des propriétés magnétiques des nano-structures. Nous verrons dans le chapitre 4 comment cette méthode permet en lien avec le STM de mesurer l'anisotropie magnétique de nano-plots de cobalt. Dans le chapitre 6 nous utiliserons l'effet Kerr pour suivre la transition de réorientation magnétique de films ultra-minces de cobalt sur des substrats vicinaux d'or.

## Chapitre 3

# Croissance organisée des nano-plots de cobalt sur les surfaces vicinales de Au(111)

### 3.1 Introduction

Obtenir une croissance ordonnée d'un réseau de particules nano-métriques identiques est un des grands défis actuels de la physique du solide. Dans cette optique, les mécanismes d'auto-organisation [Shchukin et Bimberg, 1999; Sun et al., 2000] permettent l'obtention simultanée d'un réseau de nano-structures organisées à des échelles macroscopiques avec une énorme densité. Les substrats qui présentent une structuration comme, par exemple, les réseaux de dislocations sont des candidats intéressants pour la croissance de nano-structures uniformes organisées en réseaux ordonnés [Brune et al., 1998; Voigtländer et al., 1991b; Voigtländer et al., 1991a; Chambliss et al., 1991; Altman et Colton, 1994; Stephenson et al., 1998]. Cependant, certains défauts intrinsèques comme les marches atomiques, limitent la cohérence des réseaux de dislocations de nombreux substrats et interdisent un ordre à grande échelle pour les nano-structures. Ces défauts peuvent être des sites privilégiés pour la croissance de gros objets et peuvent perturber la caractérisation des propriétés physiques des nano-structures par des méthodes macroscopiques (magnéto-optiques par exemple). Dans le but de s'affranchir de ces inconvénients, nous développons une nouvelle approche basée sur l'utilisation combinée d'une reconstruction de surface et d'un réseau de marches atomiques.

Les substrats Au(788) et Au(11,12,12), surfaces vicinales de Au(111) présentent une structuration à deux dimensions ordonnée à grande échelle et sont donc adaptés à la croissance de plots de cobalt organisés [Repain et al., 2002]. Dans un premier temps, nous montrons que la croissance du cobalt à température ambiante permet d'obtenir un réseau de nano-plots ordonnés à grande échelle. Nous présentons, en plus de l'étude STM, des mesures de réflectivité anisotrope (RAS) in-situ, réalisées

avec l'équipe d'Yves Borensztein du Laboratoire d'Optique des Solides de l'Université Paris 6. Dans un deuxième temps, nous menons une étude en température variable par microscopie à effet tunnel de l'ordre du réseau et de la morphologie des nano-plots de cobalt. Nous mettons en évidence l'existence d'une gamme de température propice à l'organisation de la croissance avec un bon ordre local. Pour terminer, nous détaillons les mécanismes atomiques mis en jeu dans la nucléation-croissance de Co/Au(788). Les mécanismes responsables de l'auto-organisation sont discutés et nos premiers résultats de simulations Monte-Carlo cinétique sont présentés.

## 3.2 Les substrats vicinaux et reconstruits : Au(788) et Au(11,12,12)

La surface Au(788) combine un réseau stable de marches et une reconstruction de surface. La figure 3.1.a est une image STM de la surface qui montre les marches et la reconstruction des terrasses. Le réseau de marches atomiques  $\{111\}$ , de hauteur 0,235 nm (cf. Fig. 3.1.b) délimite des terrasses (111) dont la largeur moyenne est de 3,9 nm. Les lignes de plus haute corrugation observées en clair au STM sont des lignes de fautes d'empilement qui séparent des domaines où les atomes du plan de surface sont situés soit en sites cfc soit en sites hcp comme dans le cas de la reconstruction  $22 \times \sqrt{3}$  de la surface Au(111) [Barth *et al.*, 1990]. La différence entre deux zones d'empilements différents est mise en évidence par la ligne en pointillés de la figure 3.1.b qui facilite l'observation de la distorsion des rangées denses.

On remarque dans un premier temps que les lignes de reconstruction sont perpendiculaires aux bords de marches et les traversent ce qui est en accord avec les résultats des études menées sur l'interaction entre reconstruction et bord de marche [Repain *et al.*, 1999]. Il faut cependant souligner que la présence des marches atomiques perturbe les lignes de reconstruction [Repain *et al.*, 2000b]. Les images STM (cf. Fig. 3.1) montrent que ces lignes ne sont pas rigoureusement parallèles et qu'elles forment plutôt un "V". Cet arrangement de la reconstruction est tel que la zone cfc de la surface voit sa largeur diminuer au voisinage du haut de la marche ce qui est en accord avec les observations sur la surface Au(111) [Repain *et al.*, 2000b]. L'élargissement de la zone cfc au pied de la marche est d'ailleurs cohérent avec le fait que l'empilement de volume du cristal d'or est de type cfc. La structure atomique précise au voisinage du bord de marche est une question ouverte qui nécessiterait des études approfondies mais on peut remarquer qu'aucune dislocation de surface n'est observable sur la surface Au(788). Ce point est important puisque c'est une dislocation de surface qui conduit à l'organisation de la croissance du cobalt sur la surface Au(111).

Finalement, la surface Au(788) est structurée selon deux directions perpendiculaires. Selon la direction  $[\bar{2}11]$  le réseau de marches structure la surface avec une période de 3,9 nm qui correspond à la largeur des terrasses. Selon la direction  $[01\bar{1}]$

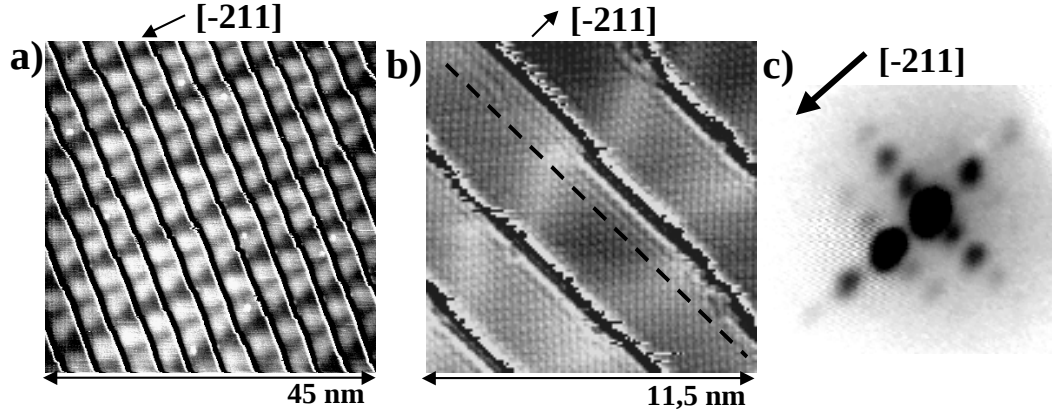


FIG. 3.1: a-b) Images STM de la surface Au(788). La corrugation due à l'escalier vicinal a été soustraite afin d'amplifier le contraste sur les terrasses. a) A grande échelle les lignes de reconstruction sont perpendiculaires aux bords de marche. b) Image de résolution atomique. La ligne en pointillés est un guide pour les yeux pour observer la transition entre zones cfc et hcp. Aucune dislocation de surface n'apparaît sur cette surface. c) Cliché LEED de la tâche spéculaire de la diffraction par Au(788).

la surface est structurée par la reconstruction dont la période est de 7,2 nm. L'observation, pour les deux directions  $[\bar{2}11]$  et  $[01\bar{1}]$ , de trois ordres de diffraction sur le cliché LEED de la surface Au(788) (cf. Fig. 3.1.c) indique clairement un bon ordre à grande distance du réseau de marches et de la reconstruction. Ce résultat fait de la surface Au(788) un substrat structuré très intéressant dans l'étude de la croissance auto-organisée.

Remarquons que la période due au réseau de marches peut être modulée en changeant l'angle de désorientation de la surface vicinale. La surface Au(11,12,12) dont une image STM est montrée dans le chapitre 1 est semblable à la surface Au(788) avec une largeur de terrasses qui vaut  $L \simeq 6$  nm sur Au(11,12,12). Comme sur Au(788), les lignes de reconstruction des terrasses de Au(11,12,12) sont perpendiculaires aux marches et la nano-structuration qui en résulte est bi-dimensionnelle avec une maille  $6 \times 7$  nm<sup>2</sup>.

### 3.3 Croissance organisée des plots de cobalt à température ambiante avec un ordre à grande distance

#### 3.3.1 Croissance organisée de Co/Au(788) étudiée par STM

Nous commençons notre étude par un dépôt à très bas taux de couverture ( $0,005 \text{ MC} < \theta < 0,07 \text{ MC}$ ) de cobalt sur Au(788) à température ambiante. On observe des points noirs correspondant à une déplétion de  $0,02 \text{ nm}$  que l'on interprète comme étant des atomes de cobalt insérés dans la surface d'or comme dans le cas de Co/Au(111). La situation est cependant différente de celle de Au(111) puisque la surface Au(788) ne présente aucune dislocation de surface. La figure 3.2.a montre une image STM avec un contraste atomique et chimique qui permet d'observer le site spécifique des atomes de cobalt insérés. Ce site est situé en bord de ligne de reconstruction, en zone cfc ou hcp, à quelques rangées atomiques du haut de la marche et à l'intérieur de la terrasse. La raison pour laquelle ces sites sont des sites préférentiels pour l'insertion du cobalt n'est pas élucidée. On peut relever qu'un travail théorique récent [Goyhenex et Bulou, 2001] a montré que les lignes de reconstruction de Au(111) constituent des sites favorables pour l'adsorption du cobalt.

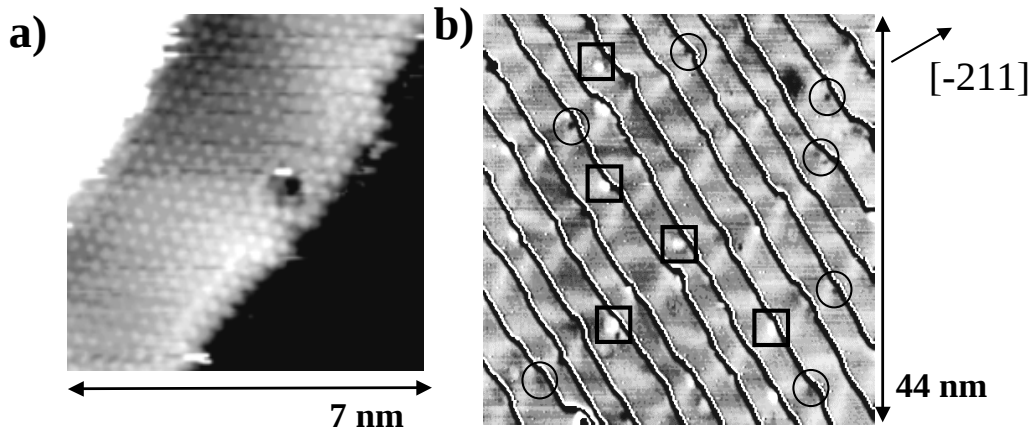


FIG. 3.2: a) Image de résolution atomique d'un dépôt de  $0,03 \text{ MC}$  de cobalt sur Au(788) à température ambiante. On observe un point noir correspondant à des atomes de cobalt insérés situés au bord de la ligne de reconstruction et à trois rangées atomiques du haut de la marche. b) Image STM d'un dépôt de  $0,07 \text{ MC}$  de cobalt sur Au(788) à température ambiante. Cette grande échelle montre la coexistence de germes de cobalt insérés (points noirs encadrés) et d'îlots déjà formés (points blancs encadrés).

Après cette étape de nucléation, on observe différentes étapes dans la croissance

des îlots de cobalt. Dans un premier temps, les germes insérés sont des centres pour la croissance. En plus des points noirs dus au cobalt inséré on observe sur la figure 3.2.b des taches blanches qui sont des petits îlots. Les points noirs deviennent donc blancs alors que l'îlot croît et que sa hauteur augmente en même temps que sa taille latérale jusqu'à une surface de  $4 \text{ nm}^2$ . La grande échelle de l'image 3.2.b montre que le processus d'insertion se fait de manière inhomogène sur l'ensemble des sites préférentiels. Notons que cette inhomogénéité est bien plus importante et perdure plus longtemps que sur la surface Au(111). Il est cependant probable que ce soit le même type de mécanisme (insertion par échange) qui intervienne pour la nucléation de Co sur Au(111) et Au(788) même si les paramètres énergétiques qui décrivent ce processus sur les deux surfaces sont différents.

Sur les figures 3.3.a et b on observe pour un taux de couverture supérieur (0,15 MC) des îlots en forme de cacahuètes qui indiquent clairement une coalescence d'îlots voisins. Alors que la croissance commence de manière isotrope sur les germes insérés, la plus faible largeur de la zone cfc en haut du bord de marche entraîne une coalescence plutôt sur cette zone que sur la zone hcp. Cependant, la répartition inhomogène des germes insérés sur les sites préférentiels est à l'origine de la coalescence de certains îlots sur les zones hcp de la surface ce qui perturbe localement l'organisation de la croissance. On peut voir sur les figures 3.3.a et b qu'il y a coexistence entre des petits îlots sur des sites préférentiels et des îlots plus gros issus de la coalescence des premiers. Ces deux populations d'îlots sont très clairement visibles dans la distribution de taille de la figure 3.3.c. C'est un indice supplémentaire de l'inhomogénéité de la croissance des plots de cobalt sur Au(788) à température ambiante.

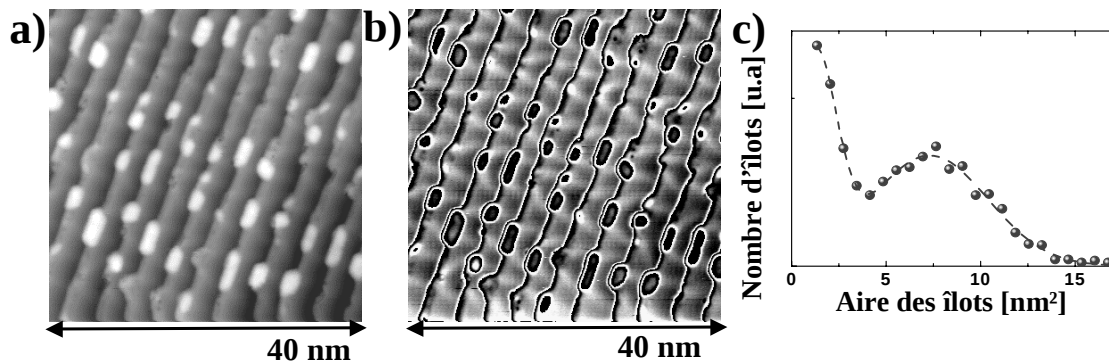


FIG. 3.3: a) Image STM d'un dépôt de 0,15 MC de cobalt sur Au(788) à température ambiante. b) Même image avec un traitement qui remet toutes les terrasses à un même niveau et qui augmente le contraste. c) Distribution d'aire des îlots pour un dépôt de 0,15 MC de cobalt sur Au(788) à température ambiante.

A un taux de couverture supérieur on observe un réseau bi-dimensionnel de plots

de cobalt. La figure 3.4.a montre une image STM d'un tel réseau obtenu pour un dépôt de 0,4 MC de cobalt sur Au(788) à température ambiante. La période du réseau parallèlement aux marches est celle de la reconstruction alors que la période perpendiculairement aux marches correspond à la largeur des terrasses. Ces deux directions sont conservées à l'échelle de l'échantillon et la croissance auto-organisée permet d'obtenir un réseau de plots de cobalt avec un ordre à grande échelle très bon sur une échelle macroscopique. Cet ordre est visible sur la figure 3.4.b qui montre la transformée de Fourier de l'image 3.4.a.

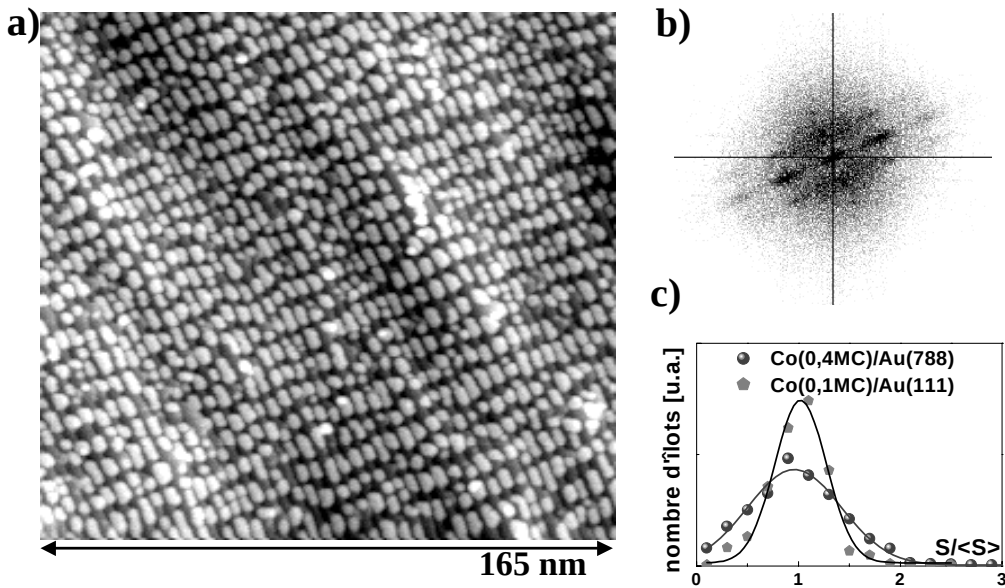


FIG. 3.4: a) Image STM d'un dépôt de 0,4 MC de cobalt sur Au(788) à température ambiante. b) Transformée de Fourier de l'image précédente. c) Distribution de taille des îlots pour 0,4 MC de Co sur Au(788) et 0,1 MC de Co sur Au(111). La statistique a été faite sur plus de 1000 îlots.

On doit, cependant, remarquer que l'ordre local du réseau de plots de cobalt de la figure 3.4.a n'est pas excellent et qu'il existe de nombreux défauts dans le réseau. On mesure, de plus, une distribution de taille des îlots relativement large. La figure 3.4.c montre les distributions d'aire des îlots pour les dépôts de 0,1 MC de Co/Au(111) et 0,4 MC de Co/Au(788) (ces deux systèmes correspondent à la même taille moyenne d'îlots ( $10 \text{ nm}^2$ ) et donc au même nombre d'atomes de cobalt par îlot). La comparaison entre ces deux distributions révèle une largeur plus grande pour la distribution d'aire des plots sur Au(788).

Les images de microscopie tunnel permettent d'observer plus en détail les îlots de cobalt et leurs localisations sur la surface. Sur la figure 3.5.a on voit que les îlots sont à cheval sur les bords de marche avec une moitié sur la terrasse du dessus et une

moitié sur la terrasse du dessous. La coupe de l'image, reproduite sur la figure 3.5.c, montre clairement que ces îlots sont bi-couches par rapport à la terrasse inférieure. Si l'on remarque qu'aucune discontinuité de hauteur n'est visible sur ces îlots on en déduit que du cobalt est inséré dans la terrasse d'or, à la base des plots. L'image 3.5.b est traitée pour augmenter le contraste sur les terrasses et sur les îlots. Elle permet d'observer que ces îlots sont assez rugueux ce qui est aussi visible sur le profil de la figure 3.5.c. Cette rugosité (0,02 nm) est sans doute due au grand désaccord paramétrique (14 %) entre l'or et le cobalt qui est en partie relaxé dès la formation des îlots. On peut donc invoquer un effet de Moiré mais il est délicat de conclure entre un tel effet et un éventuel mélange Co-Au au sein des îlots.

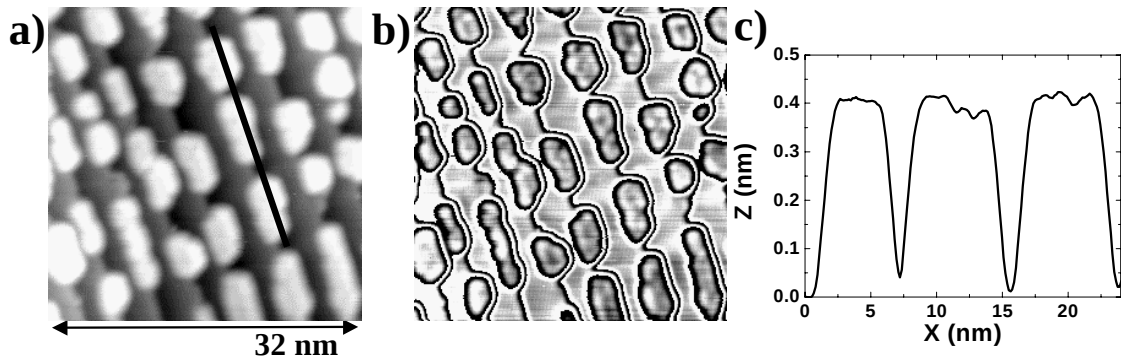


FIG. 3.5: a) Image STM d'un dépôt de 0,4 MC de cobalt sur Au(788) à température ambiante. b) Même image avec un traitement qui remet toutes les terrasses à un même niveau et qui augmente le contraste au sein des terrasses. c) Profil de la coupe selon la ligne noire sur l'image a).

Sur la figure 3.5.b, il est intéressant de noter que la reconstruction est toujours visible sur les terrasses. Puisqu'il est connu que cette reconstruction est très sensible aux contraintes de surface [Bach et al., 1997], cette observation indique que les plots de cobalt n'influencent pas cette contrainte de surface au sein des terrasses ce qui semble cohérent avec l'hypothèse d'îlots de cobalt complètement relaxés.

Si l'on regarde la localisation des plots sur la surface on note que la majorité est située sur les zones cfc. Les défauts du réseau de plots sont constitués d'îlots coalescés le long des bords de marche ou situés sur les zones hcp de la surface. On peut finalement conclure que ces défauts qui perturbent l'ordre local du réseau de plots résultent de l'inhomogénéité de la nucléation et des premiers stades de la croissance.

### Forme des îlots et coalescence

Une caractéristique importante des îlots de cobalt est leur forme. C'est la forme des îlots qui détermine comment ils coalescent lorsque le taux de couverture est

augmenté. Le réseau de sites de nucléation de Au(788) a une maille rectangulaire de  $3,9 \times 7,2 \text{ nm}^2$  et représente une limite maximum pour la taille des îlots. Pour des plots circulaires la coalescence doit intervenir lorsque leur diamètre atteint  $3,9 \text{ nm}^1$ . Le taux de couverture théorique qui correspond à la coalescence de plots bi-couches circulaires est proche de 0,9 ML. Si on envisage maintenant des îlots allongés le long des bords de marche, ils peuvent avoir une largeur inférieure à  $3,9 \text{ nm}$  et coalescer le long du bord de marche. Selon le rapport d'aspect des îlots, le taux de couverture de la coalescence varie. Pour des îlots bi-couches, il peut s'approcher de 2 ML.

La façon dont les îlots coalescent peut avoir une grande influence sur les propriétés physiques du réseau. Nous allons voir dans la suite que c'est particulièrement vrai pour les propriétés optiques des plots de Co/Au(11,12,12). Les propriétés magnétiques sont aussi influencées par la forme des plots de cobalt et il est capital de bien maîtriser la forme des plots et leur mode de coalescence [Padovani et al., 1999a].

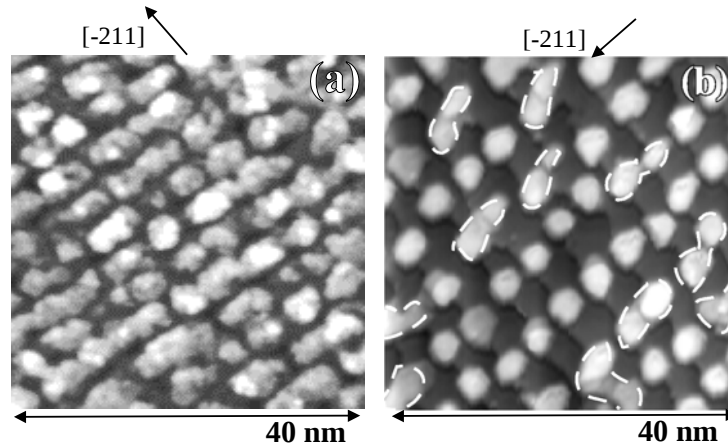


FIG. 3.6: a) Image STM d'un dépôt de 2,1 MC de cobalt sur Au(788) à température ambiante. b) Image STM d'un dépôt de 1,1 MC de cobalt déposé sur Au(788) par quatre étapes de dépôt de  $\simeq 0,25 \text{ MC}$  à  $130 \text{ K}$  et de recuit à  $300 \text{ K}$ .

Les plots de cobalt obtenus sur Au(788) à température ambiante sont relativement allongés dans la direction des bords de marche (cf. Fig. 3.5.a). Ceci est dû à la coalescence de deux îlots voisins situés sur deux sites de nucléation adjacents appartenant à la même maille. Le rapport d'aspect<sup>2</sup> des plots est alors de 0,5. Si l'on augmente le taux de couverture, toujours à température ambiante, on observe

<sup>1</sup>On envisage le cas d'un îlot par maille ce qui veut dire que la coalescence des deux îlots adjacents sur les deux sites d'une même maille a déjà eu lieu

<sup>2</sup>On définit le rapport d'aspect des îlots de Co sur Au(788) comme le rapport entre leur dimension perpendiculaire aux marches et leur dimension parallèle aux marches. Le rapport d'aspect varie donc entre 0 pour un fil infini le long du bord de marche et l'infini pour un fil infini perpendiculaire au bord de marche avec une valeur de 1 pour un plot sphérique

la croissance d'îlots de formes rectangulaires le long des bords de marche. La coalescence intervient lorsque deux îlots voisins ont leur grande dimension égale à la dimension de la maille parallèle aux bords de marche. La figure 3.6.a montre un dépôt de 2,1 MC effectué à température ambiante. On voit clairement que la coalescence bi-dimensionnelle complète est retardée par la forme très allongée des îlots qui correspond à un rapport d'aspect assez faible. Cette anisotropie des îlots va se répercuter dans les mesures d'anisotropie optique présentées ci-après.

Pour comparaison, la figure 3.6.b montre un dépôt de 1,1 MC de cobalt déposé sur la surface Au(788) par quatre étapes successives de dépôt de  $\simeq 0,25$  MC à 130 K et de recuit à 300 K. On observe alors une coalescence plus précoce dans la direction perpendiculaire aux marches avec des îlots qui ont un rapport d'aspect supérieur à 1.

### 3.3.2 Anisotropie des plots et suivi de la croissance par RAS

La spectroscopie de l'anisotropie optique en réflexion mesure la différence entre les réflectivités complexes pour des polarisations de la lumière incidente perpendiculaires à différentes énergies. Cette technique a été principalement utilisée sur des substrats semiconducteurs et elle a notamment permis la caractérisation de l'anisotropie de molécules assemblées de manière ordonnée en surface ainsi que le suivi des premiers stades de croissance et la détermination de la morphologie d'îlots tri-dimensionnels d'argent sur un substrat de silicium [Borensztein *et al.*, 94; Beitia *et Borensztein*, 1998]. Dans de tels systèmes, les plasmons de surface sont des modes dipolaires qui peuvent être excités par la lumière polarisée dans le domaine visible. Leur fréquence, leur intensité et leur forme dépendent fortement de l'anisotropie du système. Pour des particules de cobalt, la résonance plasmon est très atténuée par le caractère *d* de la bande de conduction. On peut cependant espérer utiliser ce mode de plasmon pour caractériser l'anisotropie des particules.

Nous avons collaboré avec Yves Borensztein et Nadine Witowski du Laboratoire d'Optique des Solides de l'Université Pierre et Marie Curie pour mener une étude combinée de microscopie à effet tunnel (STM) et de spectroscopie en réflexion anisotrope (RAS). Grâce à l'observation directe de la croissance en STM, nous interprétons la structure des spectres de RAS en lien avec la forme des plots de cobalt. Les mesures RAS s'avèrent très sensibles et très adaptées au suivi de la croissance des nano-plots.

#### Dispositif expérimental, présentation de la mesure

Pour réaliser les mesures RAS, nous avons utilisé le montage construit par Yves Borensztein et similaire au spectromètre développé par Aspnes [Aspnes *et al.*, 1988]. Ce dispositif est monté sur un banc d'optique mobile avec son électronique et son système d'acquisition. Nous avons accolé tout l'appareillage à notre dispositif ultra-

vide et, grâce à un hublot en quartz non contraint et à une lentille de focale adaptée, nous avons pu éclairer nos échantillons en incidence normale et analyser le signal réfléchi. Lorsque l'échantillon est en position de mesure RAS on peut effectuer des dépôts de cobalt sans le déplacer. La réalisation des images STM est faite dans une enceinte séparée et nécessite un déplacement de l'échantillon. Nous présentons ici les résultats d'une étude à température ambiante.

Nous mesurons l'anisotropie de la réflectivité optique donnée par :

$$\frac{\Delta r}{r} = 2 \frac{r_{[\bar{2}11]} - r_{[01\bar{1}]}}{r_{[\bar{2}11]} + r_{[01\bar{1}]}} \quad (3.1)$$

Avec  $r_{[\bar{2}11]}$  et  $r_{[01\bar{1}]}$  les réflectivités optiques pour une lumière polarisée rectilignement suivant les directions  $[\bar{2}11]$  et  $[01\bar{1}]$ . Ces deux directions correspondent, respectivement, à la direction perpendiculaire et parallèle aux bords de marche. Nous avons procédé en effectuant une phase de dépôt puis en enregistrant le signal RAS et, dans un troisième temps, en enregistrant les images STM de l'échantillon. Nous avons renouvelé ce cycle de mesures plusieurs fois pour suivre la croissance du réseau de plots de cobalt sur la surface Au(11,12,12).

### Anisotropie des plots de Co/Au(11,12,12) étudiée par RAS

Les images 3.7.a et b montrent le réseau de plots obtenus pour 0,3 MC et 0,6 MC de cobalt sur Au(11,12,12) à température ambiante. Comme sur Au(788) les plots sont bi-couches et ils ont une forme allongée le long des bords de marche. Leur taille moyenne est estimée à  $3,8 \times 3,1 \text{ nm}^2$  pour 0,3 MC et  $5,4 \times 4,4 \text{ nm}^2$  pour 0,6 MC ce qui correspond à un rapport d'aspect identique et égal à 0,8. Lorsque l'on augmente le taux de couverture, les îlots grandissent dans les deux directions mais ils s'allongent plus rapidement dans la direction parallèle aux marches et finissent par coalescer. Pour 1,2 MC (cf. Fig. 3.7.c), on ne distingue plus réellement de plots déconnectés mais on observe plutôt des bandes de cobalt discontinues et parallèles aux bords de marche. L'anisotropie du dépôt de cobalt est alors bien plus élevée que dans le régime précédent de plots allongés. Pour des taux de couverture plus importants les images STM sont plus délicates à interpréter. On voit sur la figure 3.7.d que le dépôt de 3,5 MC de cobalt présente une structure tri-dimensionnelle avec une connexion totale (percolation).

Les spectres d'anisotropie de réflectivité optique sont présentés sur la figure 3.7.e pour les différents taux de couverture des images 3.7.a-d. Sur le spectre de la surface Au(11,12,12) nue on observe un léger pic à 2,6 eV dû à la transition inter-bandes de l'or. Il existe une anisotropie de la réponse optique dû au caractère vicinal de la surface. Selon que le champ électrique de l'onde lumineuse incidente est polarisé suivant la direction perpendiculaire ou parallèle aux marches le coefficient de réflexion est différent. Cet effet a déjà été observé sur les surfaces vicinales de cuivre [Baumberger et al., 2003], sur la surface Au(110) [Mazine et Borensztein, 2002; Stahrenberg

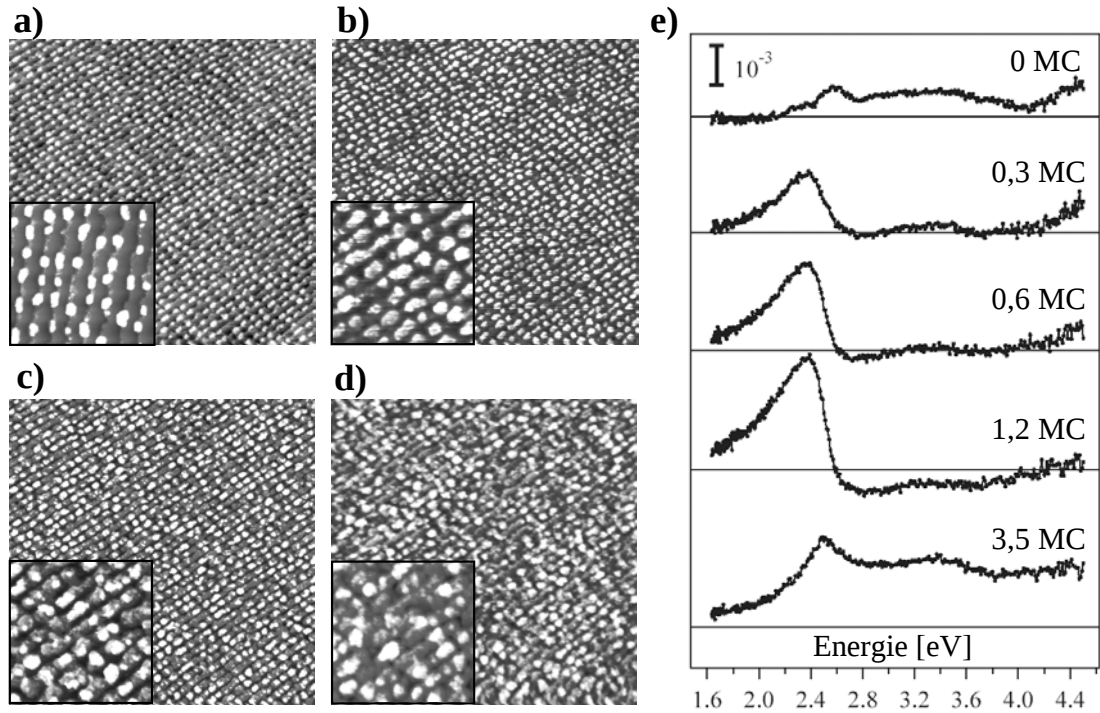


FIG. 3.7: a-d) Images STM à température ambiante. Les grandes images font 200 nm de côté et les petites (en encart) font 45 nm de côté. a) Dépôt de cobalt de 0,3 MC sur Au(11,12,12). b) Dépôt de cobalt de 0,6 MC sur Au(11,12,12). c) Dépôt de cobalt de 1,2 MC sur Au(11,12,12). d) Dépôt de cobalt de 3,5 MC sur Au(11,12,12). e) Spectres RAS de la surface Au(11,12,12) recouvertes de différents dépôts de cobalt. Les spectres, pris de haut en bas, correspondent aux systèmes imagés sur les images a-d).

*et al.*, 2001] qui présente une forte anisotropie due à une reconstruction  $2 \times 1$  (rangée manquante) et sur d'autres surfaces de métaux nobles [Hofmann *et al.*, 1995].

Sur les trois spectres correspondants aux dépôts de 0,3 MC ; 0,6 MC et 1,2 MC de cobalt on observe une structure à 2,35 eV dont l'amplitude croît avec le taux de couverture. Le reste des spectres ne montre quasiment aucun signal d'anisotropie. Le large pic dont le maximum est situé à 2,35 eV peut être expliqué par la présence des îlots anisotropes de cobalt sur la surface d'or. Nous discutons cet effet plus en détail dans la suite.

Le dernier spectre correspond au dépôt de 3,5 MC et il est assez surprenant de remarquer que le signal d'anisotropie est relativement semblable à celui de la surface d'or nue avec un pic déplacé à une énergie supérieure à celle du pic des spectres précédents. On peut interpréter cette observation en disant que, d'un point de vue optique, la couche de cobalt couvre continûment le substrat d'or et que le caractère anisotrope des nano-structures a disparu. L'anisotropie est alors localisée

uniquement à l'interface et donne une contribution au signal proche de celle du substrat nu.

## Calculs et interprétation du signal RAS

Afin de bien comprendre l'origine du pic d'anisotropie à 2,35 eV sur les spectres RAS des dépôts de cobalt de 0,3 MC ; 0,6 MC et 1,2 MC nous avons utilisé un modèle simple et calculé la réponse optique de la surface. Le signal optique est dû à la résonance de plasmon de surface mais est atténué par rapport au cas d'électrons libres à cause du caractère d des électrons. En supposant que l'interaction entre les îlots de cobalt et le substrat d'or est négligeable<sup>1</sup> le spectre RAS pour la surface recouverte de plots est la somme des signaux propres à la surface d'or nue et aux plots de cobalt. Sur la figure 3.8.a nous avons soustrait le signal du substrat nu aux spectres mesurés pour des taux de couverture de cobalt de 0,3 MC et 0,6 MC. Sur la même figure nous avons représenté le résultat du calcul pour des îlots de cobalt identiques disposés sur un réseau rectangulaire semblable au réseau de sites de croissance de Au(11,12,12). Ces spectres sont calculés en utilisant la formule ci-dessous :

$$\frac{\Delta r}{r} = \frac{r_x - r_y}{r} = -8i\pi \frac{\omega}{c} N \frac{\alpha_{xx}^* - \alpha_{yy}^*}{\epsilon_{Au} - 1} \quad (3.2)$$

Avec  $N$  la densité de particules en surface,  $\epsilon_{Au}$  la constante diélectrique massive de l'or [Johnson et Christy, 1972],  $\alpha_{xx}^*$  et  $\alpha_{yy}^*$  les polarisabilités effectives des particules de cobalt. Remarquons que ces polarisabilités prennent en compte l'interaction entre les îlots dans le cadre de l'approximation dipolaire [Yamaguchi et al., 1974; Barrera et al., 1991].

Dans le cas où les particules ont des dimensions très faibles devant la longueur d'onde de la lumière sonde le tenseur des polarisabilités d'une particule isolée est très dépendant de la forme de la particule et peut s'écrire :

$$\alpha_{ii} = \frac{V}{4\pi} \frac{\epsilon(\omega) - 1}{1 + [\epsilon(\omega) - 1] L_i} \quad (3.3)$$

Avec  $\epsilon(\omega)$  la fonction diélectrique complexe du cobalt [Lynch et Hunter, 1991],  $V$  le volume de la particule et  $L_i$  le facteur dépolarisant dans la direction  $i$  ( $i = x, y, z$  et  $0 < L_i < 1$ ) [Landau et Lifschitz, 1960].

Nous avons utilisé ce modèle pour calculer le signal d'anisotropie de réflectivité d'îlots bi-couches avec une forme ellipsoïdale de dimensions 3,8 nm×3,1 nm pour le cas du dépôt de 0,3 MC et 5,4 nm×4,4 nm pour le cas du dépôt de 0,6 MC<sup>2</sup>. On voit

---

<sup>1</sup>Dans le cas de nano-structures très aplaties comme nos plots de cobalt il a été démontré théoriquement que les interactions multipolaires avec le substrat sont compensées par l'interaction dipolaire avec pour résultat une interaction totale nulle [Bobbert et Vlieger, 1987].

<sup>2</sup>Ces paramètres sont extraits des observations STM des plots de cobalt (cf. Fig. 3.7.a et b).

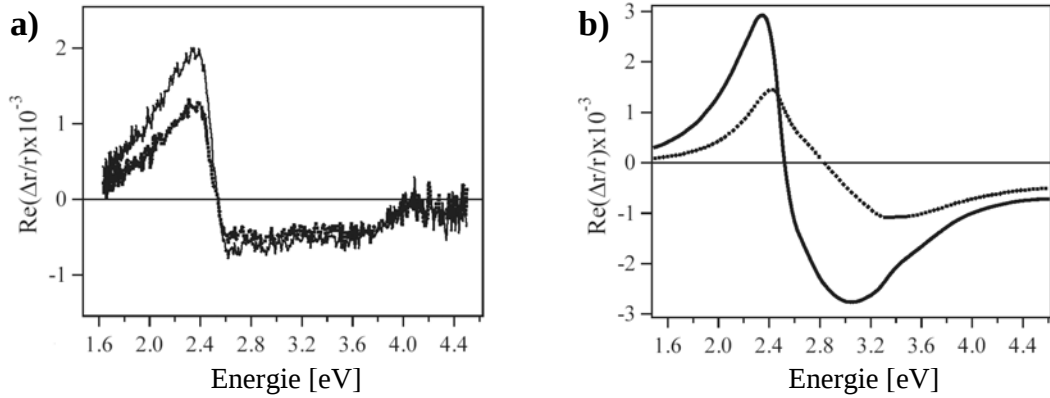


FIG. 3.8: a) Spectre RAS de la contribution du cobalt dans les systèmes  $\text{Co}(0,3 \text{ MC})/\text{Au}(11,12,12)$  et  $\text{Co}(0,6 \text{ MC})/\text{Au}(11,12,12)$ . Ces spectres sont le résultat de la soustraction du signal RAS de la surface  $\text{Au}(11,12,12)$  nue aux spectres mesurés in-situ sur  $\text{Co}(0,3 \text{ MC})/\text{Au}(11,12,12)$  et  $\text{Co}(0,6 \text{ MC})/\text{Au}(11,12,12)$  et représentés sur la figure 3.7.e. b) Spectres RAS calculés pour des îlots de cobalt de tailles identiques à ceux des dépôts de 0,3 MC et 0,6 MC de cobalt sur  $\text{Au}(11,12,12)$  imagés sur les figures 3.7.a et b.

sur la figure 3.8.b que ces spectres calculés reproduisent assez bien le pic à 2,35 eV observé expérimentalement sur la figure 3.8.a. Le signe du signal, l'intensité du pic et son augmentation avec le taux de couverture sont en accord avec l'expérience. On doit cependant remarquer que les spectres calculés présentent des différences notables avec les mesures expérimentales à plus haute énergie. Ces différences sont sans doute dues aux limitations du modèle simpliste que nous avons utilisé. Les îlots de cobalt sont en réalité moins réguliers que des ellipsoïdes et présentent une distribution de taille que nous n'avons pas intégrée dans notre description du système. Soulignons aussi que nous avons utilisé la constante diélectrique massive du cobalt pour le calcul du tenseur de polarisabilité alors que les nano-structures ont sans doute une réponse électrique modifiée par rapport au volume. Cependant, malgré ces limitations, le bon accord entre les spectres calculés et les mesures est la preuve que le pic observé à 2,35 eV trouve son origine dans la forme anisotrope des îlots de cobalt. Les spectres RAS sont donc un outil intéressant pour suivre le rapport d'aspect des plots au cours de la croissance. Cette technique est, de plus, simple à mettre en oeuvre pour le suivi en temps réel de la croissance.

### Suivi de la croissance de $\text{Co}/\text{Au}(11,12,12)$ par réflectivité anisotrope

Nous avons choisi de suivre le signal de réflectivité optique mesuré à 2,35 eV pour  $\text{Co}/\text{Au}(11,12,12)$  en fonction du taux de couverture. Pour cette énergie nous venons de voir que le signal est maximum et correspond au signal d'anisotropie de

réflectivité des plots de cobalt.

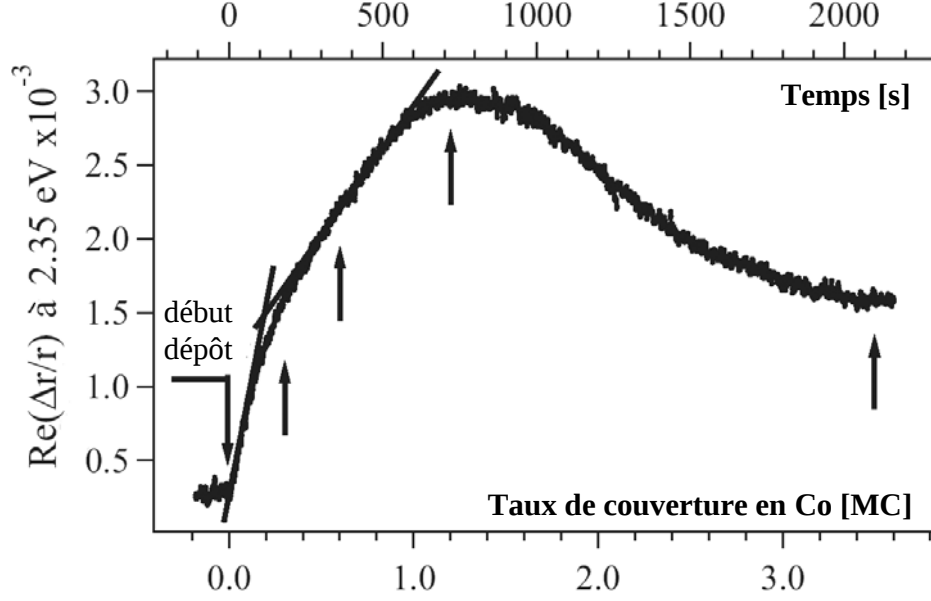


FIG. 3.9: *Signal d'anisotropie de réflectivité enregistré in-situ sur Au(11,12,12), à 2,35 eV et en fonction du taux de couverture en cobalt. Les flèches correspondent aux pauses dans le dépôt pour l'enregistrements des images 3.7.a-d et les spectres de la figure 3.7.e.*

La figure 3.9 montre l'évolution du signal au cours du dépôt de cobalt. Les flèches correspondent aux pauses dans le dépôt pour l'enregistrement des images des figures 3.7.a-d et les spectres de la figure 3.7.e. On voit clairement que l'on peut distinguer trois régimes sur la courbe. Dans un premier temps le signal d'anisotropie augmente pendant que la première monocouche de cobalt est déposée. Entre 1,1 MC et 1,6 MC la courbe montre un maximum assez plat puis, pour un taux de couverture supérieur le signal décroît lentement.

La phase d'augmentation du signal présente deux étapes distinctes. Pour un taux de couverture inférieur à 0,2 MC le signal augmente très rapidement puis, entre 0,2 MC et 1,1 MC, l'augmentation est plus lente. On peut interpréter ces deux étapes en remarquant qu'au début de la croissance des plots de cobalt il existe une phase où les atomes de cobalt décorent les bords de marches en formant des chaînes impossibles à imager au STM. Ces chaînes sont très anisotropes et donnent un signal de réflectivité important. Dès que le taux de couverture atteint 0,2 MC la majorité des îlots est bi-couche et l'augmentation de leur taille latérale est plus lente. La coalescence intervient à partir de 1,1 MC et explique le plateau de la courbe d'anisotropie de réflectivité. Si l'on observe l'image STM 3.7.c qui montre un dépôt de 1,2 MC il n'est pas facile de déterminer à quel niveau de coalescence on est

confronté. On voit que les îlots sont connectés pour former des rangées plus ou moins continues mais il est délicat de voir si les rangées de plots sont connectées entre elles. La mesure optique est donc plus précise pour le suivi de la coalescence entre îlots puisque c'est juste avant la coalescence inter-rangées que le rapport d'aspect des nano-structures de cobalt est le plus faible et que le signal d'anisotropie est le plus grand.

C'est l'inhomogénéité de la coalescence des îlots qui induit un étalement en taux de couverture du processus de connexion des îlots au sein des rangées puis des rangées entre elles. Cette distribution des taux de couverture de coalescence permet d'expliquer la constance du signal d'anisotropie optique entre 1,1 MC et 1,6 MC. Lorsque le taux de coalescence inter-rangées augmente, le taux de percolation du dépôt de cobalt augmente et le signal diminue doucement. Au delà de trois monocouches le dépôt de cobalt est complètement percolé (cf. Fig. 3.7.d) et, malgré son caractère discontinu, il donne un signal RAS assez semblable à celui mesuré sur le substrat d'or avec toutefois une exaltation de l'intensité de l'effet (cf. Fig. 3.7.e).

### 3.3.3 Conclusion

En conclusion, l'utilisation d'un substrat vicinal nous a permis de combiner un réseau de marches régulier et une reconstruction de surface pour structurer un substrat avec un très bon ordre à grande distance. Grâce à l'existence de sites de nucléation préférentiels la croissance du cobalt reproduit cet ordre et permet l'obtention d'un réseau de nano-plots métalliques ordonnés de manière cohérente sur un échantillon macroscopique. Il est possible de varier les paramètres du réseau de plots avec le choix de l'angle de désorientation par rapport à la face dense. Sur la surface Au(11,12,12) qui possède des terrasses de largeur  $L \simeq 6$  nm on obtient un réseau de plots quasiment carré avec une maille  $6 \text{ nm} \times 7 \text{ nm}$ . Cependant, lorsque les terrasses sont trop étroites il n'y a plus de reconstruction [Baudot *et al.*, 2003] et la croissance n'est pas organisée.

L'étude de la réflectivité anisotrope s'est avérée particulièrement adaptée à l'étude des premiers stades de la croissance qui impliquent de grandes variations de formes des nano-structures. Malgré le caractère peu propice du système Co/Au (caractère d de la bande de conduction des nano-structures), la résonance plasmon permet de détecter une signal d'anisotropie de réflectivité optique par un montage d'ellipsométrie dans le visible. Par ailleurs, la possibilité de varier le rapport d'aspect de la maille du réseau de nano-plots est un degré de liberté intéressant si l'on veut étudier des nano-structures en interaction (interaction électrostatique, interaction dipolaire magnétique, interaction élastique via le substrat...).

## 3.4 Optimisation de l'ordre local du réseau de plots : le rôle de la température

Dans le but d'améliorer la qualité du réseau il est primordial de bien analyser les causes de l'inhomogénéité de la nucléation et de comprendre quels sont les mécanismes atomiques sous-jacents. Puisque tous les processus mis en jeu dans la nucléation-croissance sont thermiquement activés il est très intéressant de varier la température du substrat pendant le dépôt. Nous avons réalisé ces mesures en effectuant des dépôts de cobalt à température variable (130 K à 450 K) dans notre enceinte de préparation. Après le dépôt, l'échantillon est transféré sur le STM où les images sont enregistrées à température ambiante. Dans toute cette partie les images STM révèlent des dépôts stables à température ambiante.

### 3.4.1 Croissance homogène à chaud

L'inhomogénéité de la nucléation du cobalt sur les sites préférentiels de Au(788) à température ambiante pourrait être due à une barrière d'activation relativement élevée pour le processus d'insertion. Dans cette hypothèse une augmentation de la température du substrat pendant le dépôt devrait être favorable à la croissance organisée à moins que d'autres processus, néfastes, soit activés à chaud. Sur Au(111) il a été montré que le dépôt de cobalt à 430 K conduit à une croissance mal organisée et à une baisse de la densité d'îlots [*Gentner et al.*, 1996]. Le recuit des îlots de cobalt sur Au(111) a aussi des conséquences dramatiques puisqu'il a été montré que le cobalt coule dans le volume de la surface d'or pour une température de recuit supérieure à 450 K [*Padovani et al.*, 1999b].

La figure 3.10.a montre une image STM faite à température ambiante d'un dépôt de 0,6 MC de cobalt effectué à  $T=480$  K sur Au(788). On observe de gros îlots de cobalt distribués sur la surface avec une densité 25 fois plus faible et une distribution de taille bien plus large que pour un dépôt à température ambiante. La forme des îlots est celle d'un triangle tronqué et il est intéressant de noter que cette forme de symétrie 3 est compatible avec la symétrie d'un empilement cubique à faces centrées et non avec celle d'un empilement hexagonal compact. Les différentes énergies d'interface mises en jeu peuvent cependant être à l'origine d'une telle forme et il est impossible de conclure sur la structure atomique des îlots.

La figure 3.10.b est une vue tri-dimensionnelle d'un îlot. La surface supérieure de cet îlot est structurée avec un réseau hexagonal de trous avec un paramètre  $\sim 2,5$  nm et une corrugation de l'ordre de 0,05 nm. On interprète cet réseau comme un réseau de dislocations de surface induit par le désaccord paramétrique entre l'or et le cobalt. La différence de paramètre de maille dans le plan (111) entre Co et Au est  $0.288 - 0.251 = 0.037$  nm ce qui donne une période de coïncidence entre les deux réseaux relaxés de  $(0.251 \times 0.288)/0.037 = 1.95$  nm ce qui est proche de la valeur mesurée sur la figure 3.10.b. Comme les îlots font le plus souvent plus de cinq

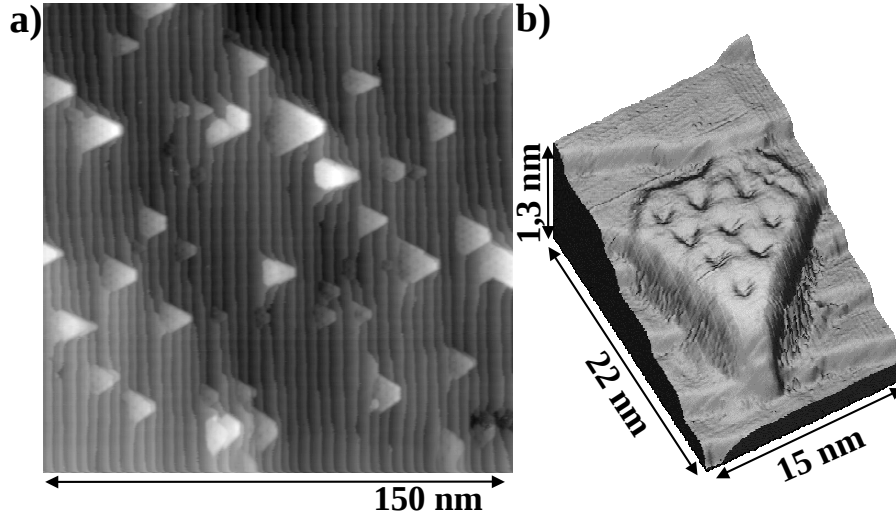


FIG. 3.10: a) Image STM à température ambiante d'un dépôt de 0,6 MC de cobalt sur Au(788) effectué à 480 K. b) Vue tri-dimensionnelle d'un îlot du même dépôt.

plans atomiques de hauteur il est peu probable que ce réseau de dislocations soit du à des îlots de cobalt pur (notons que la surface (0001) du cobalt n'est pas connue pour être reconstruite). Il est par contre envisageable qu'une couche mono-atomique d'or recouvre les îlots et soit à l'origine du réseau de dislocations. Cette hypothèse est en accord avec la faible énergie de surface de l'or comparée à celle du cobalt ( $E_s^{Co} \simeq 1,7 E_s^{Au}$ ) et avec des observations expérimentales de diffraction d'Hélium [Tolkes *et al.*, 1997].

La croissance que l'on observe à  $T=480$  K est finalement assez semblable à une croissance sur un substrat homogène, *i.e.* sans marches ni reconstruction. Cela indique clairement qu'à cette température la diffusion atomique permet la traversée des marches et des lignes de reconstruction. Il est intéressant de noter que les images STM ne permettent d'observer aucun germe de cobalt inséré aux sites préférentiels de nucléation ce qui indique qu'il existe un processus d'échange inverse à celui invoqué pour l'insertion du cobalt dans la couche de surface d'or.

### 3.4.2 Autour de la température ambiante

Nous venons de voir que l'augmentation de la température du dépôt ne permet pas une plus grande homogénéité de la nucléation sur le réseau des sites préférentiels. Ce résultat indique que la nucléation inhomogène sur les sites préférentiels de Au(788) à température ambiante n'est pas due à une limitation cinétique du processus d'insertion. Pour interpréter cette observation nous introduisons un deuxième mécanisme atomique, en compétition avec l'insertion, qui correspond à l'échange inverse de la nucléation, c'est-à-dire à la désinsertion de l'atome de cobalt de la

couche de surface d'or. Ce mécanisme a une énergie d'activation nécessairement plus grande que celle correspondant à l'insertion et permet d'expliquer l'existence d'une température maximum au delà de laquelle l'ordre de la croissance du réseau de plots se détériore. Si l'on poursuit le raisonnement on s'attend à observer une amélioration de l'ordre du réseau de plots de cobalt en abaissant la température du substrat Au(788) en dessous de la température ambiante.

Nous étudions ici l'influence d'une petite variation de la température autour de la température ambiante sur la croissance du cobalt sur Au(788). Il apparaît clairement sur la figure 3.11 que la qualité de la croissance organisée est très sensible à de petits changements de la température du substrat.

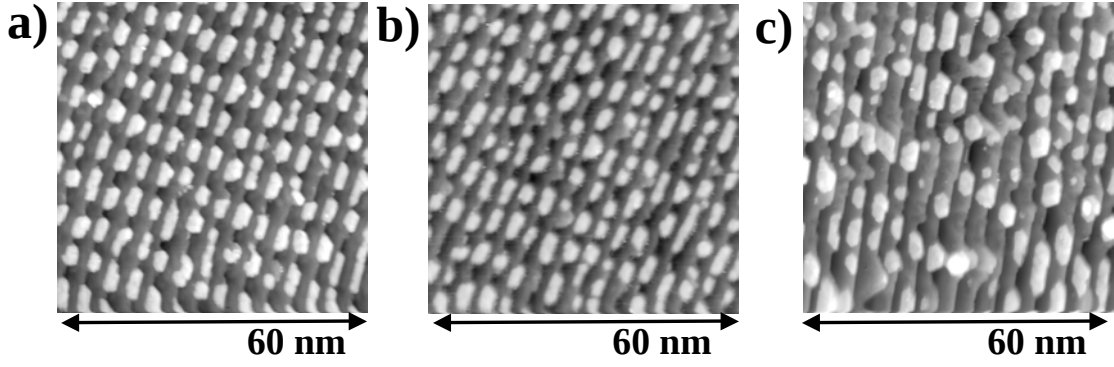


FIG. 3.11: Images STM à température ambiante de dépôt de cobalt de 0,4 MC effectués à différentes température sur Au(788). a)  $T=280$  K. b)  $T=310$  K. c)  $T=340$  K.

Sur la figure 3.11.c qui montre la croissance de 0,4 MC de cobalt à 340 K il est quasiment impossible de retrouver dans le réseau de plots la structuration du substrat et son réseau de sites préférentiels de nucléation. Alors qu'une légère augmentation de la température au-dessus de la température ambiante provoque une croissance moins bien organisée avec de nombreux défauts dans le réseau de plots (cf. Fig. 3.11.b), refroidir le substrat à 280 K permet d'améliorer l'ordre du réseau de plots (cf. Fig. 3.11.a).

### 3.4.3 Dépôts à froid étudiés à température ambiante

La figure 3.12 montre le résultat de la croissance des plots de cobalt à 130 K sur Au(788) imagé à température ambiante. Sur la figure 3.12.a on voit bien la qualité du réseau de plots de cobalt qui est quasiment parfait avec très peu de défauts. Sur cette image STM on peut compter une dizaine de défauts (principalement des plots manquants) sur un total de près de 800 îlots ce qui représente un peu plus de 1% de défauts. Cette excellente organisation est conservée sur tout l'échantillon et est observable au STM sur des zones de quelques microns. Les trois ordres de

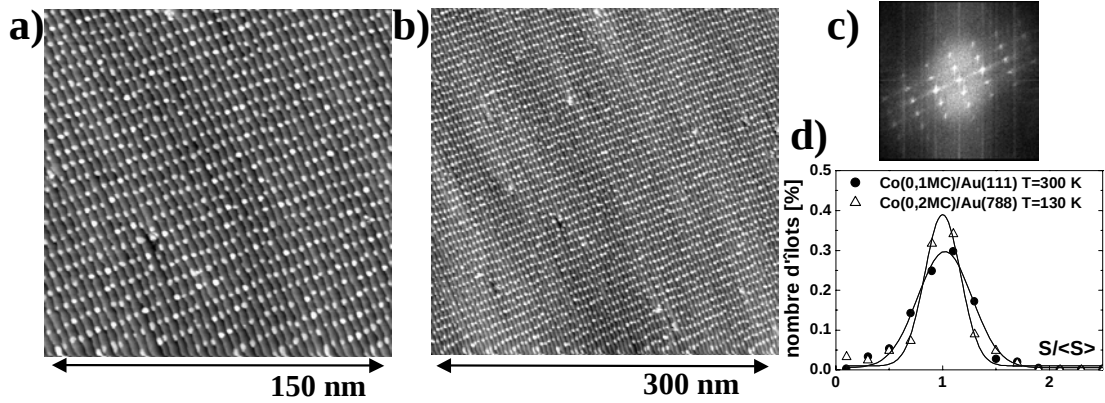


FIG. 3.12: a) Image STM à température ambiante d'un dépôt de 0,2 MC de cobalt déposé sur Au(788) à 130 K. b) Image grande échelle du même système. c) Transformée de Fourier de l'image précédente. d) Distribution normalisée des aires d'îlots pour le même dépôt et pour un dépôt de 0,1 MC déposé à température ambiante sur Au(111). La taille moyenne des plots est  $5 \text{ nm}^2$  et  $10 \text{ nm}^2$  pour les substrats Au(788) et Au(111), respectivement.

diffraction de la transformée de Fourier de l'image 3.12.b (reproduite sur la figure 3.12.c) traduisent un ordre à grande échelle extraordinaire alors que la distribution de taille des îlots montrée sur la figure 3.12.d reflète la qualité de l'ordre local du réseau à travers la monodispersité des plots. La largeur à mi-hauteur du fit gaussien de la distribution de taille des îlots est  $\delta S / \langle S \rangle = 0,4$  avec  $\langle S \rangle = 5 \text{ nm}^2$  l'aire moyenne des îlots. On obtient donc une monodispersité des plots meilleure que pour le système Co/Au(111) et proche des meilleurs résultats obtenus sur des particules colloïdales.

L'image de la figure 3.13.a révèle l'existence d'îlots plus hauts (plus clairs) que la majorité. La dispersion des hauteurs de plots, sans doute renforcée par l'effet de convolution de la pointe sur de tels nano-objets, rend difficile la détermination absolue des hauteurs de plots. La largeur de la distribution de hauteur des plots est supérieure à  $0,03 \text{ nm}$  qui est la différence de hauteur entre une marche de cobalt et d'or. On ne peut donc pas dire si les plots sont bi-couches ou tri-couches et s'il y a une base de cobalt inséré sous le plot.

Pour un taux de couverture de 0,2 MC on peut remarquer à quel point l'in-homogénéité de la nucléation des plots observé pour la croissance à température ambiante sur la figure 3.3.a à laisser place à une distribution homogène des îlots sur les sites préférentiels de la surface. Alors que pour un taux de couverture inférieur on observe une répartition moins homogène de petits îlots l'augmentation du taux de couverture au delà de 0,2 MC conduit à une croissance des îlots puis à un début de coalescence aléatoire des îlots le long des bords de marche pour 0,6 MC. La figure

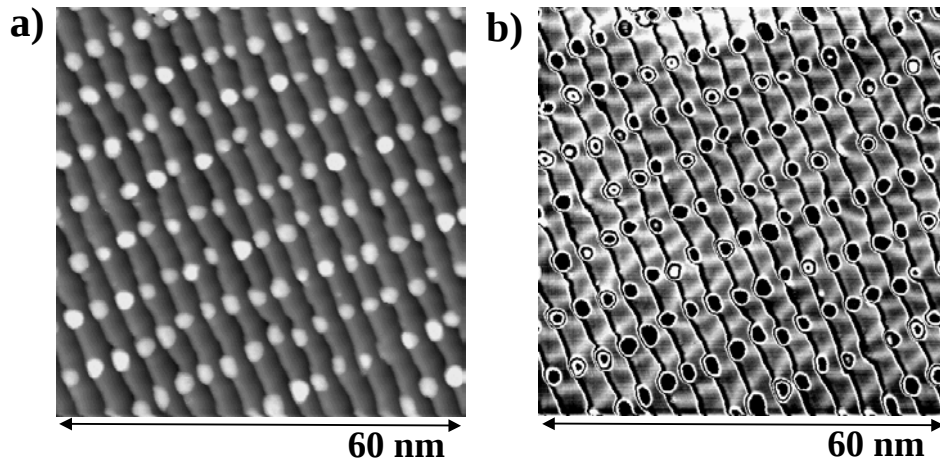


FIG. 3.13: a) Image STM à température ambiante d'un dépôt de 0,2 MC de cobalt déposé sur Au(788) à 130 K. b) Même image traitée pour augmenter le contraste au sein des terrasses

3.13.b permet de localiser plus précisément les îlots sur la surface. On observe que les plots sont principalement situés sur les zones cfc de la surface entre deux lignes de reconstruction.

Cette étude de la croissance du cobalt déposé sur Au(788) à 130 K et imagé à l'ambiante nous a permis d'observer une réseau d'îlots de cobalt avec un ordre local excellent et un très bon ordre à grande échelle. Une différence notable par rapport aux résultats de la croissance à température ambiante est la forme arrondie des îlots et leur disposition sur la terrasse supérieure. L'existence d'un germe de cobalt inséré n'est donc plus aussi évidente qu'à température ambiante. Les images que nous avons réalisées à température ambiante ne permettent pas de conclure sur les mécanismes de nucléation du cobalt à 130 K. En conséquence, et même si le mécanisme d'insertion semble bien expliquer les résultats expérimentaux nous pouvons proposer l'existence de processus d'adsorption préférentielle et de désadsorption qui entrent en jeu dans la croissance de Co/Au(788) en dessous de la température ambiante. Il est en effet probable que la barrière énergétique à franchir pour le processus de nucléation du cobalt par insertion dans la couche d'or soit relativement élevée et que la probabilité de ce mécanisme soit très faible à 130 K.

Il reste cependant des questions en suspend dont la principale est de savoir si le mécanisme d'insertion, responsable de l'organisation à température ambiante, peut être aussi à l'origine de la croissance organisée à froid. Pour continuer notre étude et tenter d'élucider tous les mécanismes mis en jeu nous avons menés des expériences complémentaires de dépôt in-situ permettant de déposer et d'imager le système sans changement de température.

## 3.5 Détermination des mécanismes atomiques de la croissance organisée

Afin de comprendre les mécanismes atomiques de la croissance, en particulier la compétition entre une insertion et une adsorption préférentielle, nous avons réalisé des dépôts de cobalt à température variable et enregistré des images STM in-situ à la température de dépôt entre 35 K et 300 K. Nous utilisons pour ces dépôts un évaporateur de cobalt placé sous le microscope nous permettant d'effectuer des dépôts et des images à une même température. Nous présenterons ensuite une mesure quantitative de l'organisation de la croissance en utilisant la variation de la densité critique d'îlots en fonction de la température. Dans un deuxième temps nous présentons les premiers résultats d'une étude de simulations Monte-Carlo cinétique de la croissance de Co/Au(788). Ces simulations nous permettent de tester les processus atomiques de la croissance déterminés par les observations expérimentales et de quantifier les paramètres énergétiques de ces mécanismes.

### 3.5.1 Etude STM in-situ de la croissance organisée à froid

Pour quantifier la croissance du réseau de plots de cobalt la quantité pertinente est la densité critique de plots qui est directement reliée au libre parcours moyen des adatoms et est couramment utilisée pour ce type d'études [Venables, 1973; Venables, 1987; Brune, 1998; Brune *et al.*, 1999]. Celle-ci correspond au taux de couverture critique qui maximise la densité d'îlots à température donnée. Expérimentalement on doit donc étudier, pour chaque température l'évolution de la densité d'îlots en fonction du taux de couverture. Tous les dépôts imagés dans la suite correspondent au taux de couverture critique.

Nous présentons d'abord des images STM pour discuter l'évolution du réseau de plots en fonction de la température. A 35 K, le libre parcours moyen des adatoms sur la surface est quasiment nul et on observe des atomes individuels disposés aléatoirement sur la surface (cf. Fig. 3.14.a). L'image à très bas taux de couverture de l'encart de la figure 3.14.a a été traitée pour augmenter le contraste au sein des terrasses. On voit que la position des adatoms ne semble pas influencée par la reconstruction de la surface. Comme à chaud ( $T=480$  K : cf. Fig. 3.10), on voit que la croissance à 35 K est comparable à une croissance sur substrat homogène. Remarquons que la densité critique d'îlots est ici très élevée (elle tend vers la densité de site atomique à température nulle) alors que dans le cas de la croissance à chaud la densité d'îlots est très faible (elle tend vers 0 à température infinie).

La figure 3.14.b montre qu'à 60 K la croissance est déjà organisée. Toutes les mailles du réseau de sites de nucléation préférentielle sont occupées par au moins un îlot. On observe cependant de nombreux îlots au milieu des terrasses qui perturbent le réseau de plots.

A 90 K, on observe sur la figure 3.14.c des chaînes d'îlots non connectés, en bord

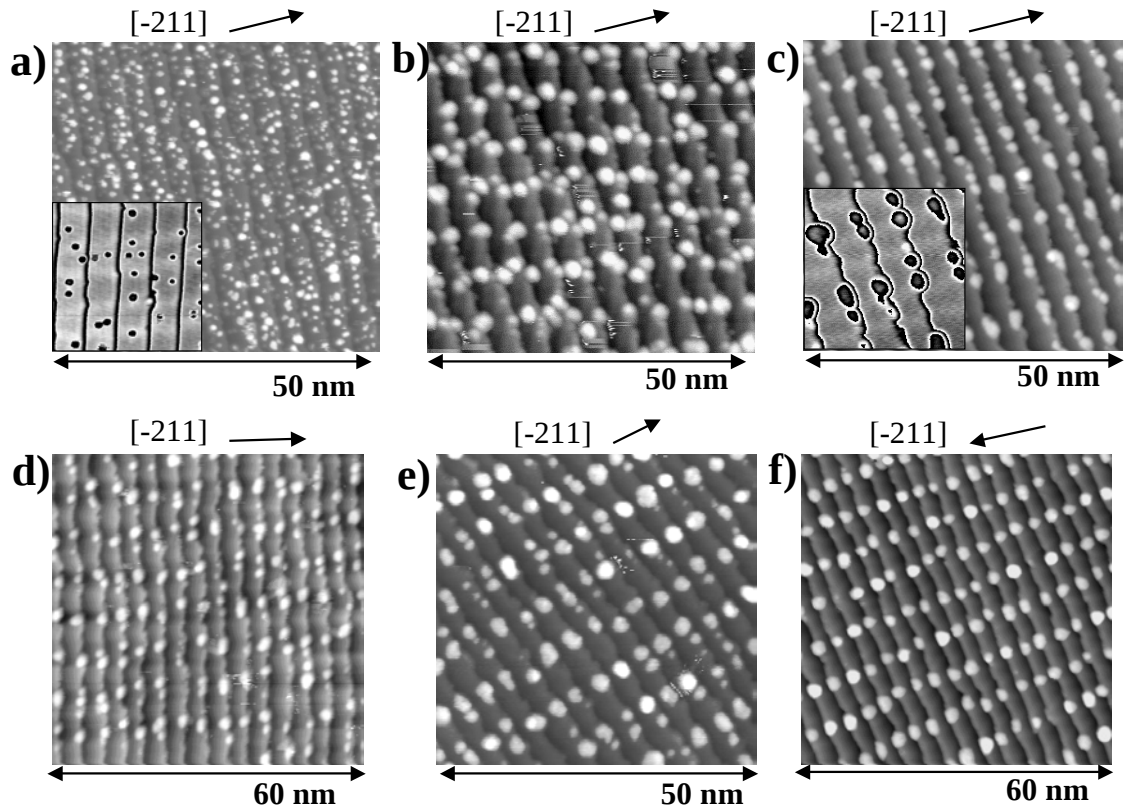


FIG. 3.14: a) Image STM d'un dépôt de 0,05 MC de cobalt déposé et imagé à 35 K sur Au(788). En insert une image STM (15 nm×15 nm) traitée d'un dépôt très bas taux de couverture ( $\sim 0,01$  MC) de cobalt déposé et imagé à 35 K. b) Image STM d'un dépôt de 0,3 MC de cobalt déposé et imagé à 60 K sur Au(788). c) Image STM d'un dépôt de 0,3 MC de cobalt déposé et imagé à 90 K sur Au(788). En insert une image STM traitée du même dépôt. d) Image STM d'un dépôt de 0,15 MC de cobalt déposé et imagé à 130 K sur Au(788). e) Image STM d'un dépôt de 0,4 MC de cobalt déposé et imagé à 165 K sur Au(788). f) Image STM à température ambiante d'un dépôt de 0,2 MC de cobalt déposé sur Au(788) à 130 K (*idem* figure 3.13.a).

de marche, et centrées sur un ou deux îlots, légèrement plus gros situés à l'extrémité d'une ligne de reconstruction. La densité d'îlots est assez élevée puisqu'en plus des îlots en sites il y a de nombreux îlots hors sites. Qualitativement on peut dire que l'organisation du réseau de plots est cependant meilleure qu'à 60 K car les îlots en milieu de terrasses ont disparus.

L'image STM de la figure 3.14.d, réalisée à 130 K, montre, qu'à cette température, tous les sites de nucléation sont occupés par de petits îlots qui cohabitent avec d'autres îlots situés sur les bords de marche. On observe donc encore quelques triplets ou quadruplets d'îlots en bord de marche. Il semble que 130 K est une tem-

pérature qui permet aux adatoms de cobalt de nucléer sur les sites préférentiels de la surface Au(788) et de diffuser suffisamment pour ne pas nucléer en d'autres sites de la surface.

Pour une température de 165 K la figure 3.14.e montre que l'organisation du réseau de plots s'améliore encore. Cependant, une observation attentive de l'image révèle que à l'issue de la baisse de la population d'îlots hors sites observée entre 60 K et 130 K de nombreux sites de nucléation sont, ici, non peuplés et perturbe l'organisation de la croissance.

Les images STM donnent une vision cohérente de la croissance à froid du système Co/Au(788). A très basse température, le libre parcours moyen des adatoms de cobalt sur la surface d'or est inférieur à la distance moyenne entre les sites de nucléation préférentielle et la croissance est homogène<sup>1</sup>. Lorsque la température est plus élevée, la diffusion permet aux adatoms d'atteindre les sites de nucléation et de s'y fixer<sup>2</sup>. Si la température n'est pas trop grande, le processus de détachement du site préférentiel est très improbable et la croissance présente un caractère organisée. Si la température est très élevée l'adatome n'est pas stable dans le puits énergétique du site de nucléation et la croissance n'est plus organisée et tend vers une croissance homogène.

Comme nous l'avons remarqué il est peu probable que le mécanisme d'insertion préférentielle intervienne à basse température et nous proposons donc l'existence d'un mécanisme de nucléation sans barrière énergétique d'activation (supérieure à l'énergie de diffusion) pour expliquer l'apparition de l'organisation de la croissance dès 60 K. Nous envisageons l'existence d'une adsorption préférentielle des atomes de cobalt sur les mêmes sites que ceux qui interviennent dans l'insertion préférentielle. L'observation d'îlots situés entièrement sur la terrasse supérieure (cf. Fig 3.14.c, d, e et f) est cohérente avec l'hypothèse d'une adsorption préférentielle suivie d'une croissance de l'îlot alimentée par des adatoms de la terrasse supérieure. Rappelons que cette adsorption préférentielle au voisinage du bord de marche et sur un site proche de la ligne de reconstruction est aussi cohérente avec un résultat théorique récent qui prédit une énergie d'adsorption abaissée pour le cobalt sur les lignes de la reconstruction de Au(111) [*Goyhenex et Bulou*, 2001].

## Etude de la densité d'îlots en fonction de la température

Nous allons maintenant détailler quantitativement l'évolution du réseau de plots de cobalt en fonction de la température. Une analyse de la densité critique des

---

<sup>1</sup>Le flux du dépôt influence le libre parcours moyen des adatoms mais de manière bien moins forte que la température qui intervient exponentiellement.

<sup>2</sup>Dans le cas où il existe une barrière d'activation élevée pour la nucléation (cas probable de l'insertion) la croissance reste homogène alors que les adatoms ont un libre parcours moyen supérieur à la distance entre sites de nucléation

îlots en fonction de la température permet, via un tracé d'Arrhénus, de déterminer une barrière de diffusion moyenne en surface et d'analyser les différents régimes de croissance sur le substrat pré-structuré [Brune, 1998].

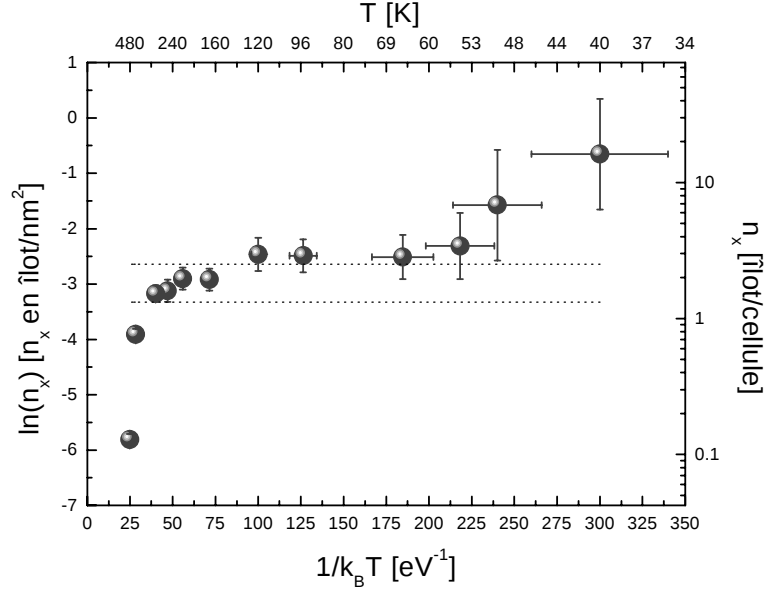


FIG. 3.15: Tracé d'Arrhénus de la densité critique d'îlots de cobalt sur la surface Au(788) en fonction de la température. Le plateau correspond à une densité de 2 îlots par cellule soit 1 îlot par site préférentiel de croissance.

La figure 3.15 montre l'évolution de la densité critique d'îlots de cobalt sur la surface Au(788) en fonction de la température. On voit très clairement sur la courbe qu'il existe un plateau entre 50 K et 250 K. Ce plateau correspond à une stagnation de la densité d'îlots à une valeur égale à la densité de sites préférentiels de la surface. Il traduit donc la croissance organisée des plots de cobalt sur les sites de nucléation de Au(788). A température plus élevée, la courbe illustre les observations qualitatives faites sur les images STM : la densité d'îlots baisse très fortement. Le détachement des îlots des sites de nucléation est un processus activé et on observe un phénomène de murissement comme lors d'une croissance homogène. A basse température il est difficile d'analyser la densité critique d'îlots puisque celle-ci devient très élevée. On voit quand même clairement que la baisse du libre parcours moyen des adatoms empêche l'organisation de la croissance et augmente la densité d'îlots. On retrouve, là aussi, une croissance homogène lorsque les adatoms ne diffusent plus suffisamment pour visiter les sites de nucléation préférentielle.

## Distributions de tailles

Si l'on veut obtenir des réseaux de nano-structures dans le but de mener des études de propriétés physiques de ces nano-objets avec des méthodes de mesures macroscopique il faut être exigeant sur leur distribution de taille. Les techniques macroscopiques sont en effet des techniques qui intègrent les contributions de chaque particule au signal (optique, magnétique,...) et il est nécessaire d'avoir des distributions de taille très étroites pour extraire de ce signal global les propriétés d'une particule unique.

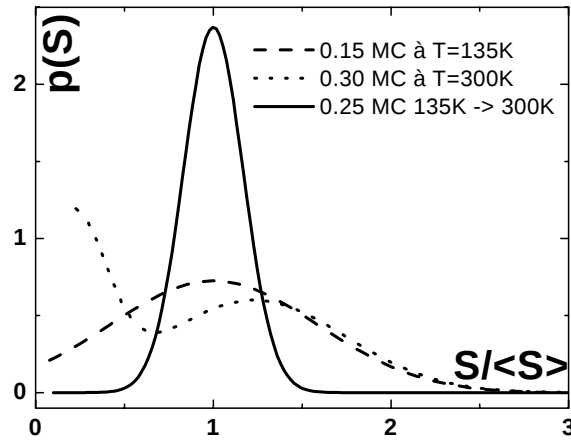


FIG. 3.16: *Fits gaussiens des distributions des surfaces des îlots de cobalt sur Au(788) obtenus à 130 K, à 300 K et à 130 K recuit à 300 K.*

La figure 3.16 présente les distributions normalisées des aires des îlots correspondants au dépôt effectué à 130 K (figure 3.14.d), à celui effectué à 300 K (figure 3.3) et à celui effectué à 130 K et recuit à température ambiante (figure 3.14.f). Pour le dépôt à température ambiante on observe clairement deux populations d'îlots. Les plus petits correspondent à des îlots qui commencent à croître sur des germes de cobalt insérés. Les îlots plus gros sont des îlots qui résultent de la coalescence des deux îlots sur deux sites de nucléation adjacents. Au final la taille moyenne vaut  $\bar{S}_{300} = 4 \text{ nm}^2$  et la distribution des aires est assez large. Le refroidissement du substrat à 130 K permet la croissance de plots plus petits en densité plus grande ( $\bar{S}_{135} = 2 \text{ nm}^2$ ) mais n'améliore pas la largeur de la distribution de tailles. On observe sur la troisième distribution de taille que le recuit d'un dépôt de 0,2 MC de cobalt déposé à 130 K permet d'obtenir une distribution de taille très piquée. Nous avons déjà souligné que la mono-dispersité est ici meilleure que pour le système Co/Au(111). La taille moyenne des îlots vaut  $\bar{S}_{135 \rightarrow 300} = 5 \text{ nm}^2$  et la largeur à mi-hauteur de la distribution est  $WHHM_{135 \rightarrow 300} = 0,2$ .

Finalement, on peut dire que cette étude de la croissance à froid de Co/Au(788) permet de comprendre quelle est l'évolution de la morphologie du dépôt. C'est l'augmentation du libre parcours moyen qui permet, d'abord, la nucléation d'îlots sur les sites préférentiels et, ensuite, le regroupement de tout le cobalt déposé sur ces sites. Lorsque la température approche 165 K certains sites préférentiels ne sont plus peuplés ce qui traduit le détachement des îlots de certains sites préférentiels. Même si la distribution de taille semble s'améliorer lorsque la température de dépôt augmente c'est en recuisant à température ambiante un dépôt effectué à 130 K que l'on améliore le plus l'ordre du réseau de plots et sa distribution de taille. Nous discutons l'effet d'un tel recuit dans le paragraphe suivant.

### Effet du recuit à température ambiante

Si l'on compare les images des réseaux de plots déposés et imagés à 130 K et déposés à 130 K puis recuit et imagés à température ambiante, on voit clairement que l'effet du recuit est une baisse de la densité d'îlots par un processus de murissement local. Partant de deux (ou plus) îlots par maille du réseau de sites de nucléation à 130 K on obtient, à température ambiante, un seul plot par maille. Ces plots sont alors très isotropes (cf. Fig. 3.13), situés sur les zones cfc de la terrasse, proche du bord de marche et entre les extrémités de deux lignes de reconstruction.

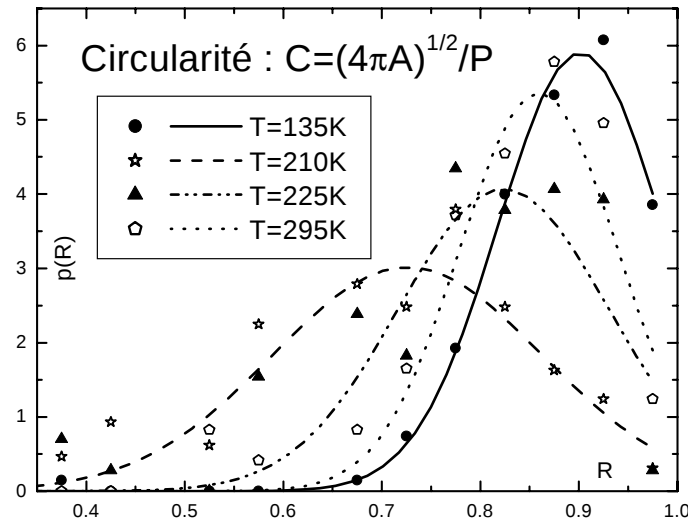


FIG. 3.17: Distributions des circularités des plots de cobalt sur Au(788) au cours du recuit du réseau de plots entre 130 K et la température ambiante.

Nous allons maintenant détailler cet effet du recuit sur la forme des îlots. Pour bien comprendre la modification du réseau de plots de cobalt obtenu à 130 K (cf. Fig. 3.14.d) lorsqu'on le recuit à température ambiante (cf. Fig. 3.14.f) nous avons fait des mesures de forme des îlots. On définit la circularité d'un plot, grandeur

proportionnelle au rapport de la racine carrée de la superficie du plot et de son périmètre. La circularité a une valeur comprise entre 0 et 1. Elle vaut 1 pour un plot circulaire et tend vers 0 pour un plot très allongé sans distinction de la direction de l'anisotropie. La figure 3.17 illustre l'effet de murissement qui intervient pendant le recuit. Il est remarquable d'observer des circularités proches de 1 pour 135 K et 295 K. Entre ces deux températures la circularité des plots diminue ce qui s'explique par un phénomène de coalescence.

A 135 K le fit gaussien de la distribution de circularité des îlots donne une valeur moyenne  $\langle C \rangle_{135} = 0,90$ . Cette valeur élevée correspond à de petits îlots bien définis comme ceux de la figure 3.14.d. Il est important de remarquer qu'il n'y a, *a priori*, pas de lien entre cette valeur de circularité et la distribution de taille des îlots si bien qu'on peut mesurer une circularité proche de 1 pour une assemblée d'îlots très dispersés en taille.

Lorsque le dépôt précédent est recuit à 210 K on observe une baisse de la valeur moyenne de la circularité combinée avec un net élargissement de la distribution. Cet effet peut être expliqué par l'activation de la diffusion en bord d'îlots qui permet la diffusion des petits îlots en bord de marches et la coalescence d'îlots voisins. Il y a alors formation d'îlots en forme de cacahuètes dont la circularité est peu élevée. Finalement la valeur moyenne observée est de  $\langle C \rangle_{210} = 0,73$  avec une largeur à mi-hauteur  $\Delta C_{210} = 0,14$ . Les mesures de circularité faites à plus haute température montrent que ces îlots très anisotropes adoptent une forme plus circulaire lorsque la température augmente. C'est sans doute encore la diffusion en bord d'îlots qui est responsable de cet effet. Une fois le stade de coalescence passé ce processus permet en effet que la forme des îlots soit modifiée et on observe d'ailleurs une baisse de la largeur de la distribution de circularité. A 225 K on mesure  $\langle C \rangle_{225} = 0,83$  et  $\Delta C_{225} = 0,10$ . A la fin du recuit les plots ont une forme très isotrope et on obtient une valeur élevée et bien définie de la circularité :  $\langle C \rangle_{295} = 0,86$  et  $\Delta C_{295} = 0,08$ .

Finalement, il semble que le changement de morphologie des îlots au cours du recuit soit dû à une étape de coalescence suivie d'une redistribution de la matière au sein des îlots. D'une manière différente, ces deux processus mettent en jeu la diffusion des atomes en bordure d'îlot.

### 3.5.2 Simulations Monte Carlo

Nous voulons maintenant mieux comprendre quels sont les mécanismes responsables de la croissance organisée du cobalt sur Au(788). Certes il faut prendre en compte le mécanisme d'insertion observé à température ambiante mais il faut aussi se demander si d'autres processus comme une adsorption préférentielle, déjà envisagée, ne sont pas mis en jeu. Nous avons collaboré avec Laurent Proville<sup>1</sup> qui a développé un code de Monte-Carlo cinétique (KMC pour Kinetic Monte-Carlo) basé sur l'algorithme de Bortz, Kalos et Lebowitz [Bortz *et al.*, 1975] et inspiré

---

<sup>1</sup>L. Proville, Service de Recherches de Métallurgie Physique CEA/Saclay

des travaux de P. Jensen [*Jensen et al.*, 1994]. Les simulations KMC sont un outil très puissant pour identifier les mécanismes mis en jeu dans la croissance organisée puisqu’elles permettent de simuler un dépôt et une croissance avec différentes hypothèses, du substrat homogène au substrat structuré. Ce type de simulations a déjà été largement employées dans le cadre d’études de croissance et sont décrites par Brune [*Brune*, 1998].

Pour nos simulations, nous utilisons une surface de  $500 \times 500$  atomes avec des conditions périodiques aux bords. Pour reproduire la situation expérimentale, nous traitons le dépôt d’atomes en surface comme un événement de probabilité lié au flux et avec une localisation aléatoire. Tous les autres événements interviennent en fonction de la probabilité qui leur est associée. Pour un événement dont l’énergie d’activation est  $E$  la probabilité qu’il soit observé par unité de temps est donnée par :

$$p_i = \nu_0 \exp(-E/k_B T) \quad (3.4)$$

où  $\nu_0$  est la fréquence d’essai que l’on considère commune à tous les mécanismes [*Brune*, 1998]. On voit donc qu’il est nécessaire de connaître les barrières énergétiques correspondantes à tous les processus atomiques que l’on veut simuler. Nous avons donc collaboré avec Hervé Bulou et Christine Goyhenex<sup>2</sup> pour les calculs, par dynamique moléculaire, des énergies de liaison et de diffusion nécessaires à nos simulations.

Pour décrire les mécanismes de diffusion, d’adsorption et d’insertion préférentielles nous utilisons plusieurs paramètres énergétiques. Sur la figure 3.18, les profils énergétiques des deux mécanismes sont représentés. On envisage ici l’insertion comme une étape qui suit l’adsorption préférentielle mais cette hypothèse n’est pas déterminante.  $E_d$  est la barrière de diffusion (et d’adsorption),  $E_i$  est la barrière d’insertion,  $\Delta G_a$  est le gain énergétique à l’adsorption et  $\Delta G_i$  est le gain énergétique à l’insertion<sup>1</sup>. Pour les processus inverses, de détachement des sites de nucléation on doit envisager la désadsorption dont l’énergie d’activation est  $E_{da} = E_d + \Delta G_a$  et la désinsertion dont l’énergie d’activation est  $E_{di} = E_i + \Delta G_i - \Delta G_a$ . L’énergie de liaison entre atomes de cobalt est décrite avec une évolution linéaire à travers l’énergie de cohésion (qui intègre la barrière de diffusion)  $E_{Co-nCo} = 0,12 + n \times 0,44$  eV. C’est la barrière énergétique que doit franchir un atome de cobalt pour se détacher de  $n$  voisins.

Dans le cadre de nos simulations nous avons négligé les effets des marches sur la diffusion en surface. Même s’il est certain que la barrière Schwoebel a une certaine importance on peut se convaincre facilement que celle-ci n’intervient qu’à chaud, lorsque la croissance n’est plus organisée. La courbe de la figure 3.15 montre, en

---

<sup>2</sup>H. Bulou et C. Goyhenex, Institut de Physique et Chimie de Strasbourg

<sup>1</sup>Toutes ces énergies sont repérés par rapport à l’énergie d’un adatome de cobalt isolé sur un site atomique quelconque. Remarquons que  $E_i$  n’est pas rigoureusement la barrière à franchir pour passer de l’état adsorbé à l’état inséré

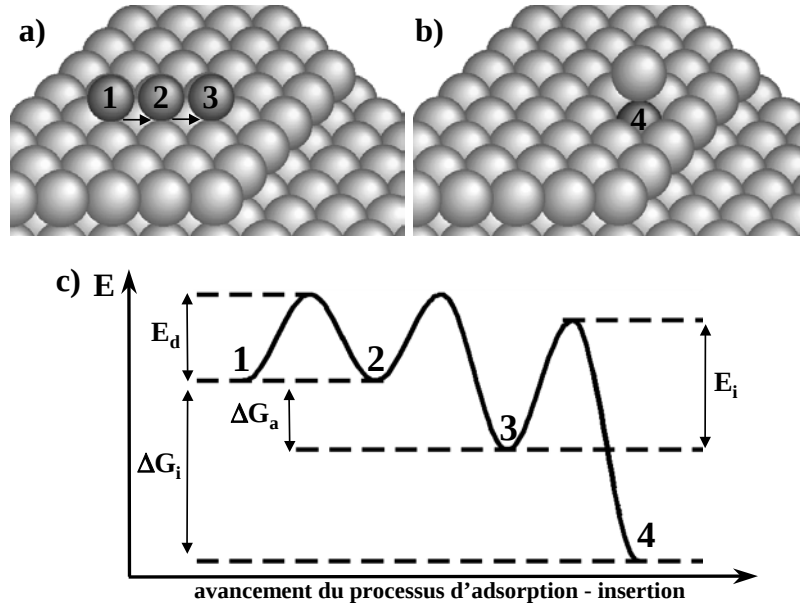


FIG. 3.18: Mécanismes d'adsorption et d'insertion. a) Schéma de l'atome de cobalt (en sombre) qui diffuse sur la surface d'or et qui arrive sur le site d'adsorption préférentielle (position 3). b) Schéma de l'atome de cobalt après insertion au site préférentiel. L'atome d'or est expulsé et devient adatome. c) Graphe de l'énergie de l'atome de cobalt en fonction de l'avancement du processus d'adsorption-insertion. Les quatre paramètres énergétiques nécessaires à la description des mécanismes sont indiqués.

effet, clairement qu'en dessous de 250 K, c'est à dire tant que les îlots sont stables aux sites préférentiels, le libre parcours moyen des adatoms est égal à la distance moyenne entre sites. Puisque la largeur des terrasses est de l'ordre de la distance entre sites la diffusion des atomes de cobalt n'est alors pas trop perturbée par les marches atomiques. L'influence des lignes de reconstructions sur les barrières de diffusion ont aussi été négligées et la seule structuration que nous avons introduit est un réseau de sites spécifiques disposés comme les sites préférentiels de Au(788), en réseau rectangulaire avec deux sites par maille. Un atome qui veut s'adsorber sur un site spécifique n'a aucune barrière supplémentaire à franchir mais il y est stabilisé car pour le quitter il doit franchir la barrière  $E_{di} > E_d$ . Il peut alors s'insérer dans la couche de surface d'or en franchissant une barrière d'insertion. Une fois inséré il est stabilisé et doit franchir la barrière  $E_{di} > E_{da} > E_d$  pour en sortir. Les valeurs des paramètres énergétiques d'insertion et d'adsorption sont difficiles à calculer car ils nécessitent la connaissance de la structure atomique précise du substrat. Nous avons commencé par utiliser des valeurs issues des travaux de Hervé Bulou et Christine Goyhenex sur Au(111) [Goyhenex et Bulou, 2001; Goyhenex et Bulou, 2001; Bulou et al., 2003] puis nous les avons ajusté pour essayer de reproduire nos résultats

expérimentaux.

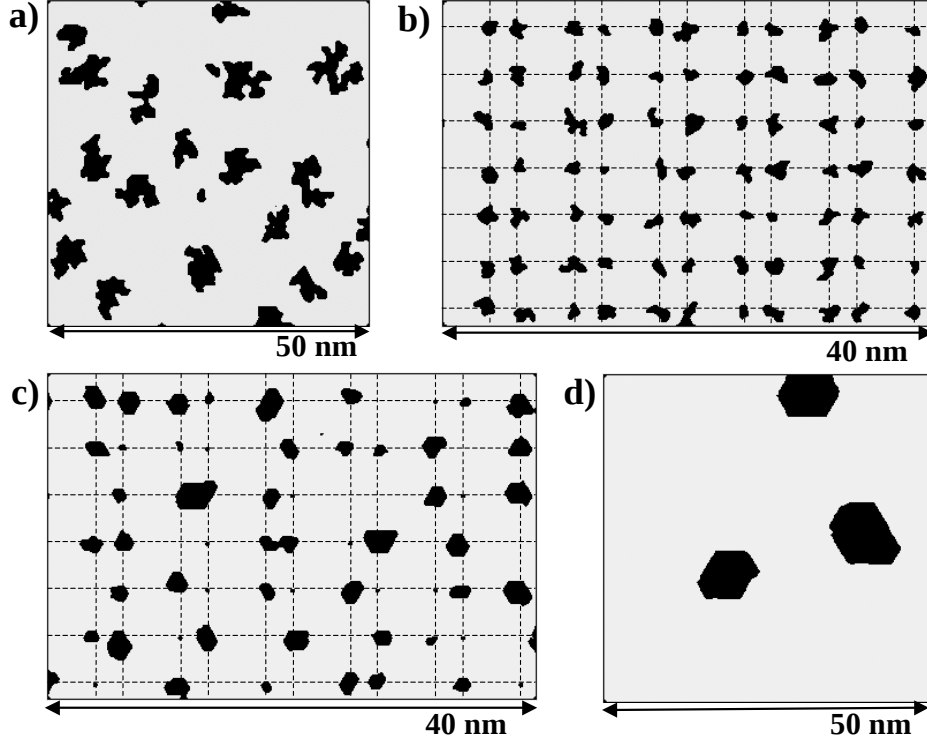


FIG. 3.19: Images de simulations KMC. a) Croissance à 120 K sur une surface homogène avec  $\nu_0=10^{12}$  Hz et  $E_d=0,15$  eV. b-d) Croissance sur une surface avec des sites de nucléation préférentielle organisés sur un réseau similaire au réseau de sites préférentiels de Au(788). Les lignes en pointillés verticales représentent les lignes de reconstruction alors que les horizontales symbolisent les bords de marches. Ces simulations ont été réalisées avec les paramètres  $\nu_0=3,2 \cdot 10^{12}$  Hz,  $E_d=0,12$  eV,  $E_i=0,32$  eV,  $\Delta G_a=0,16$  eV et  $\Delta G_i=0,46$  eV. b)  $T=90$  K c)  $T=300$  K d)  $T=450$  K.

La figure 3.19 montrent des images qui illustrent le résultat de simulations de croissance. Sur l'image 3.19.a la surface est homogène et les îlots nucléent de manière aléatoire. Sur les images 3.19.b, c et d la structure présente des sites de nucléation préférentiels répartis comme sur la surface Au(788) (maille 25 atomes  $\times$  16 atomes avec 2 sites distants de 9 atomes). Sur cette surface structurée on observe une croissance organisée et l'accord avec les images STM de la figure 3.14 est plutôt satisfaisant. On voit clairement l'influence de la température sur la croissance. Comme pour les résultats expérimentaux l'organisation apparaît vers 60 K, commence à se détériorer légèrement avant la température ambiante et la croissance redevient comparable à celle sur substrat homogène à plus haute température.

Pour être plus quantitatif nous avons tracé la courbe d'évolution de la densité critique d'îlots en fonction de la température issue de la simulation. La figure 3.20

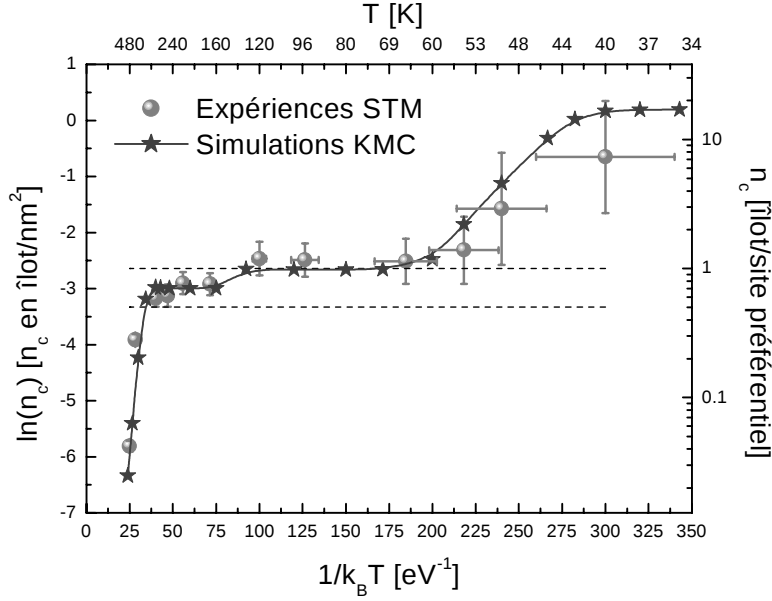


FIG. 3.20: Tracé d'Arrhénius de la densité critique d'îlots de cobalt sur la surface Au(788) en fonction de la température et ajustement des points expérimentaux par simulation Monte-Carlo cinétique. Les paramètres énergétiques choisis pour la simulation sont  $\nu_0=3,2 \cdot 10^{12}$  Hz,  $E_d=0,12$  eV,  $E_i=0,32$  eV,  $\Delta G_a=0,16$  eV et  $\Delta G_i=0,46$  eV.

montre la courbe 3.15 ajustée grâce aux simulations KMC. Pour chaque température nous simulons la croissance et traçons la courbe de densité d'îlots en fonction du taux de couverture puis nous relevons la valeur de la densité critique. On voit que les simulations permettent de reproduire parfaitement les observations expérimentales. Le large plateau de 60 K à 280 K qui correspond au régime de croissance est bien reproduit. Il est particulièrement intéressant de noter que la décroissance de la densité critique d'îlot en fin de plateau (entre 150 K et 280 K) est aussi reproduite par les simulations. Cet accord est obtenu avec les mêmes paramètres que les images 3.19.b-d, à savoir :  $\nu_0=3,2 \cdot 10^{12}$  Hz,  $E_d=0,12$  eV,  $E_i=0,32$  eV,  $\Delta G_a=-0,28$  eV et  $\Delta G_i=-0,78$  eV ce qui donne une valeur de l'énergie de désadsorption  $E_{da}=0,40$  eV et une valeur de l'énergie de désinsertion  $E_i=0,82$  eV.

La fréquence d'essai est tirée de la référence [Bulou et al., 2003]. La barrière de diffusion est voisine de celle que l'on trouve dans la littérature [Goyhenex et al., 2002; Liu et al., 2003]. La barrière d'insertion est relativement faible. Cette barrière vaut 0,6 eV pour le processus d'échange d'un atome de cobalt au sommet des lignes de reconstruction de Au(111) [Goyhenex, 2003]. Dans notre cas les sites d'insertion sont à l'intersection d'une ligne de reconstruction et d'un bord de marche ce qui peut expliquer notre valeur inférieure. Le gain à l'adsorption est assez élevée comparée à la valeur de 0,1 eV calculé par C. Goyhenex et H. Bulou [Goyhenex et Bulou, 2001] ce qui peut aussi être du à l'environnement atomique particulier de nos sites

d'adsorption. Le gain à l'insertion est du même ordre de grandeur que celui calculé pour l'échange sur une zone cfc de Au(111) ( $\simeq 1$  eV) [Goyhenex et al., 2002] et pour l'échange sur une ligne de reconstruction de Au(111) ( $\simeq 0,6$  eV) [Goyhenex, 2003].

Il est intéressant de remarquer que lorsque l'on réalise des simulations de la croissance avec uniquement le processus d'adsorption avec des paramètres réalistes on reproduit bien la partie de la courbe jusqu'à environ 160 K. Pour des températures supérieures la densité d'îlots décroît fortement et la courbe rejoint celle de la croissance homogène. Nous avons aussi essayé de simuler la croissance organisée de Co/Au(788) avec le seul mécanisme d'insertion préférentielle ( $\Delta G_a = 0$ ). Dans ce cas on ne trouve pas de valeurs raisonnables des paramètres énergétiques qui conduisent à une organisation de la croissance. Les simulations que l'on fait avec  $E_i = 0,32$  eV, et  $\Delta G_i = 0,78$  eV ne reproduisent pas la croissance organisée car, dans ce cas, la barrière d'insertion élevée inhibe la nucléation même si les adatoms ont un libre parcours moyen supérieur à la distance entre sites de nucléation. Finalement, il est légitime de se demander pourquoi l'introduction du processus d'adsorption permet d'observer une croissance organisée au delà de 160 K. En fait, le gain énergétique à l'adsorption  $\Delta G_a$  augmente le temps de séjour de l'adatome sur le site préférentiel et accroît la probabilité d'insertion. A 160 K le rapport entre le temps de séjour sur un site "normal" et celui sur une site préférentiel est de l'ordre de  $10^{-9}$ . On peut donc dire, qualitativement que l'insertion "prend le relais" de l'adsorption jusqu'à 280 K.

Ce très bon accord entre simulations et expériences est très encourageant. Dans le cadre de sa thèse Stanislas Rohart poursuit activement ces études en collaboration avec Laurent Proville, Christine Goyhenex et Hervé Bulou.

### 3.6 Conclusions et perspectives

A travers les études présentées dans ce chapitre nous venons de montrer qu'il est possible de faire croître, en parallèle, une assemblée de nano-structures organisées avec un ordre à grande échelle et un ordre local excellents. La pré-structuration du substrat est répliquée lors de la croissance et elle gouverne la symétrie du réseau de nano-structures. Un choix judicieux des paramètres de croissance (température et flux de dépôt) permet d'obtenir des nano-structures de tailles régulières et de morphologies contrôlées. Dans le cas de la croissance à température ambiante nous avons obtenu des nano-structures anisotropes que nous avons caractérisé par STM et par RAS. La mesure de l'anisotropie de réflectivité optique s'est révélée un moyen adapté au suivi de la croissance des nano-structures métalliques auto-organisées. En abaissant la température de dépôt nous avons pu obtenir un réseau de nanoplots avec une distribution de taille très étroite. Cette monodispersité nous a permis de mener une étude du super-paramagnétisme de ces plots que nous présentons dans le chapitre 4. La combinaison de mesures STM in-situ à température variable

et de simulations Monte-Carlo cinétique nous a permis d'identifier les mécanismes atomiques responsables de l'auto-organisation de la croissance sur une large gamme de température.

L'utilisation des substrats auto-organisés pour la croissance de réseaux de nanostructures bien définies est généralisable à tous les substrats pré-structurés par des réseaux de reconstruction ou des adsorbats. Nous avons voulu montrer qu'il est assez astucieux de combiner une reconstruction de surface à grande maille et un réseau régulier de marches. On peut imaginer utiliser des surfaces vicinales de tous les systèmes qui présentent des réseaux de dislocations comme 2Ag/Pt(111) ou Cu/Ru(0001) par exemple. Dans la pratique chaque système nécessite une étude structurale complète pour déterminer les mécanismes atomiques qui permettent la réplique de la structuration du substrat et l'obtention d'une croissance organisée.



## Chapitre 4

# Super-paramagnétisme des plots de cobalt auto-organisés sur les vicinales de Au(111) : étude couplée STM et MOKE

### 4.1 Introduction

Les propriétés magnétiques des nano-structures sont un sujet de recherche actif tant du point de vue fondamental que du point de vue technologique. Le phénomène de super-paramagnétisme qui correspond au basculement du macrospin d'une nano-structure au dessus de sa barrière d'anisotropie est capital puisque c'est lui qui limite la stabilité du moment des nano-objets magnétiques. Alors que certaines propriétés magnétiques d'objets 0D peuvent être étudiées sur des nano-structures isolées [Wernsdorfer *et al.*, 1997] ou des particules non supportées [Billas *et al.*, 1994], il est intéressant de mener des études magnétiques sur des assemblées de nano-structures supportées. Au delà de l'intérêt fondamental évident de la caractérisation des propriétés magnétiques de nano-structures il est technologiquement très prometteur de développer des assemblées de nano-objets possédant un axe d'anisotropie commun, une énergie d'anisotropie élevée et présentant une distribution d'énergie d'anisotropie la plus étroite possible.

Les phénomènes d'auto-organisation offrent des possibilités uniques d'obtenir des systèmes de nano-structures organisées. La voie chimique permet la synthèse d'assemblées de nano-particules colloïdales avec une très bonne monodispersité de taille [Petit *et al.*, 1999; Sun *et al.*, 2000; Plumer *et al.*, 2001]. Malheureusement, ces particules quasi-sphériques ont une anisotropie magnétique dominée par leur surface [Jamet *et al.*, 2000] et sont très sensibles aux effets d'orientation cristallographique. Finalement, la synthèse chimique ne permet pas de contrôler facilement l'orientation des nano-particules lors de leur croissance [Black *et al.*, 2000; Held *et al.*, 2001] et

la monodispersité en taille n'induit pas une monodispersité en énergie d'anisotropie [Woods et al., 2001; Held et al., 2001]. Notre maîtrise de la croissance du cobalt sur la surface Au(788) nous a permis d'obtenir un réseau de plots avec un ordre local excellent et une longueur de cohérence macroscopique. Le caractère bi-dimensionnel des plots de cobalt sur Au(788) a, *a priori*, l'avantage de favoriser une direction d'anisotropie uniaxiale commune dominée par les effets d'interfaces [Padovani et al., 1999a; Fruchart et al., 1999]. Finalement, ce système est un système idéal pour mener des études magnétiques de nano-structures auto-organisées. Grâce à la très faible dispersion de taille des particules nous avons pu utiliser des techniques magnéto-optiques qui moyennent les propriétés individuelles de chaque particule.

Dans une première partie nous présentons de manière théorique comment la mesure de la courbe de susceptibilité en fonction de la température permet de remonter à la distribution d'anisotropie d'une assemblée de nano-particules magnétiques. Dans un deuxième temps nous présentons les mesures de susceptibilité magnétique que nous avons menées sur les plots de cobalt sur Au(788) en collaboration avec l'équipe d'Harald Brune de l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne. Nous déterminons une distribution d'anisotropie très étroite et l'absence de couplage dipolaire significatif entre les plots. Dans une troisième partie, nous discutons la modification des cycles d'hystérésis due à la cinétique du retournement du moment magnétique des nano-plots. Enfin, nous présentons les mesures de susceptibilité en champ nul et de courbes d'aimantation des nano-plots de cobalt organisés sur Au(11,12,12) menées en collaboration avec l'équipe de Jacques Ferré du Laboratoire de Physique des Solides d'Orsay.

## 4.2 Super-paramagnétisme de nano-particules à anisotropie uniaxiale

On se propose d'étudier de manière théorique le comportement magnétique d'une petite particule ferromagnétique<sup>1</sup> de moment  $\vec{\mu}$  présentant une anisotropie magnétique uniaxiale. Lorsque l'on applique un champ magnétique extérieur à cette particule on s'attend, de manière générale, à ce que son moment  $\vec{\mu}$  voit sa direction modifiée. Ainsi si l'on mesure la composante  $\mu_z$  du moment de la particule selon la direction du champ en fonction de l'intensité du champ on obtient une caractéristique de la réponse magnétique de cette particule.

Les mesures expérimentales réalisées sur des nano-structures montrent une augmentation de l'anisotropie magnétique lorsque la taille des nano-structures diminue (cf. chapitre 1). Dans le cas d'une nano-particule on peut être confronté à des anisotropies magnétiques très grandes dont l'étude nécessite des champs magnétiques

---

<sup>1</sup>Dans tout ce chapitre, on appelle petite particule ferromagnétique une particule au sein de laquelle on a toujours une forte interaction d'échange qui aligne tous les spins parallèlement entre eux. On a donc une particule monodomaine dont le moment résultant est  $\vec{\mu} = \sum \vec{\mu}_{at}$

importants. On préfère alors étudier la susceptibilité initiale de la particule. Nous allons donc regarder comment une telle particule répond à un champ très faible et nous allons voir que la mesure de la courbe de susceptibilité magnétique en fonction de la température permet de caractériser l'anisotropie d'une particule unique et de déterminer la distribution d'énergies d'anisotropie pour une assemblée de particules magnétiques.

### 4.2.1 Présentation du système

On considère le cas d'une particule présentant une anisotropie uniaxiale d'axe  $z$  caractérisée par la constante d'anisotropie  $K$  (ici  $K > 0$ ). Le champ extérieur  $\vec{H}$  est appliqué selon l'axe  $z$ . L'énergie d'une particule de moment  $\vec{\mu}$  repéré par l'angle  $\theta$  avec l'axe  $z$  est représentée sur la figure 4.1.

$$E = -\mu H \cos \theta + K \sin^2 \theta \quad (4.1)$$

Le calcul des extrema d'énergie de l'expression (4.1) (cf. figure 4.1) permet de

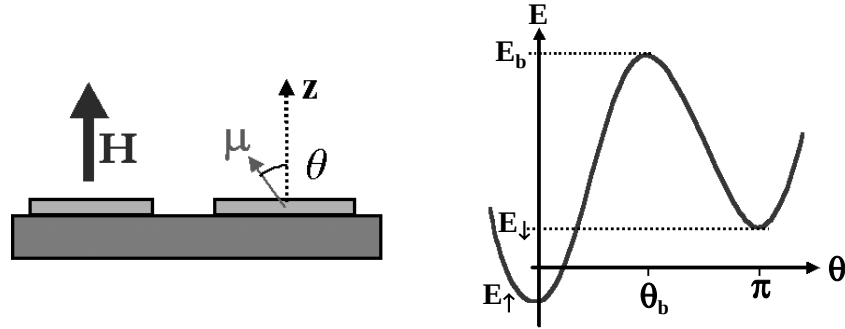


FIG. 4.1: *Représentation schématique du système et graphe de l'énergie d'une particule.*

caractériser les états stables  $\uparrow$  et  $\downarrow$  du moment magnétique et la barrière qui les sépare. En annulant  $\partial_\theta E$ , et en utilisant le champ d'anisotropie d'une particule  $H_{an} = \frac{2K}{\mu}$ , on trouve :

$$\begin{aligned} \theta_\uparrow &= 0 & \text{et} & & E_\uparrow &= -\mu H \\ \theta_\downarrow &= \pi & \text{et} & & E_\downarrow &= +\mu H \\ \cos \theta_b &= -H/H_{an} & \text{et} & & E_b &= K[1 + (H/H_{an})^2] \end{aligned}$$

A température non nulle la transition est thermiquement activée d'un état stable

à l'autre par le franchissement des barrières énergétiques :

$$E_{\uparrow\downarrow} = E_b - E_{\uparrow} = K \left( 1 + \frac{H}{H_{an}} \right)^2 \quad (4.2)$$

$$E_{\downarrow\uparrow} = E_b - E_{\downarrow} = K \left( 1 - \frac{H}{H_{an}} \right)^2 \quad (4.3)$$

Avant de rentrer dans l'étude complète de la réponse magnétique d'un tel système on peut remarquer quelques cas limites intéressants pour une particule à l'équilibre.

- Dans le cas d'une température très élevée par rapport à la barrière d'anisotropie ( $k_B T \gg E_b$ ) on est en présence d'un système isotrope pour lequel on doit retrouver un comportement paramagnétique avec une loi de Langevin :

$$\mu_z = \mu L[\mu H/k_B T] \quad \text{avec} \quad L[x] = \coth x - \frac{1}{x} \quad (4.4)$$

$$\text{et} \quad \chi_{eq}^{iso} = \left( \frac{\partial \mu_z}{\partial H} \right)_{H=0} = \frac{\mu^2}{3k_B T} \quad (4.5)$$

Le moment  $\mu$  est le moment de la particule, c'est un super-moment et c'est la raison du terme super-paramagnétisme.

- Dans le cas d'une température très faible par rapport à la barrière d'anisotropie ( $k_B T \ll E_b$ ) on est en présence d'un système à deux niveaux du type Ising avec

$$\mu_z = \mu \tanh(\mu H/k_B T) \quad \text{et} \quad \chi_{eq}^{\uparrow\downarrow} = \left( \frac{\partial \mu_z}{\partial H} \right)_{H=0} = \frac{\mu^2}{k_B T} \quad (4.6)$$

## 4.2.2 Susceptibilité à l'équilibre

Pour une température intermédiaire (entre les deux cas limites envisagés ci-avant) on doit considérer toutes les orientations possibles du moment  $\vec{\mu}$  de la particule et faire un calcul complet de la susceptibilité à l'équilibre.

La fonction de partition de la particule peut se calculer de manière analytique [Fruchart et al., 2002]. Le calcul détaillé est présenté dans l'annexe A. On peut ensuite écrire la composante  $\mu_z$  du moment de la particule selon la direction du champ. La susceptibilité de la particule est alors donnée par la dérivée à champ nul du moment  $\mu_z$  par rapport au champ magnétique (cf. § A). On obtient :

$$\chi_{eq} = \left( \frac{\partial \mu_z}{\partial H} \right)_{H=0} = \frac{\mu^2}{k_B T} \left[ \sqrt{\frac{k_B T}{K}} \frac{e^{\frac{K}{k_B T}}}{\sqrt{\pi} \operatorname{Erfi} \left( \sqrt{\frac{K}{k_B T}} \right)} - \frac{k_B T}{2K} \right] \quad (4.7)$$

On peut remarquer que si la barrière est très élevée par rapport à la température on retrouve le résultat du système à deux niveaux et que si la barrière est très faible par rapport à la température on retrouve la susceptibilité d'une particule isotrope.

### 4.2.3 Susceptibilité dynamique

Puisque la mesure de la réponse magnétique d'une particule ne peut se réaliser expérimentalement qu'avec un champ magnétique variable on doit considérer une particule hors d'équilibre et on doit prendre en compte la cinétique du retournement de son moment magnétique.

Pour introduire ces effets dynamiques on commence par regarder le cas du système à deux niveaux pour lequel on intègre l'équation maîtresse linéarisée pour une particule proche de l'équilibre. On met ainsi en évidence une température de blocage pour la particule et deux comportements magnétiques différents. Finalement, on établit l'expression de la susceptibilité dynamique valable à toute température.

#### Mise en évidence des effets dynamiques

Les probabilités par unité de temps que le moment magnétique de la particule transite d'un état stable à l'autre sont données par :

$$p_{\uparrow\downarrow} = \nu_{\uparrow\downarrow} e^{-\beta E_{\uparrow\downarrow}} \quad \text{et} \quad p_{\downarrow\uparrow} = \nu_{\downarrow\uparrow} e^{-\beta E_{\downarrow\uparrow}} \quad (4.8)$$

Avec  $\nu_{\uparrow\downarrow}$  la fréquence d'essai du franchissement de la barrière d'anisotropie dans les deux sens. L'équation maîtresse qui régit l'évolution des populations des deux états du moment magnétique s'écrit :

$$\dot{x}_{\uparrow} = (1 - x_{\uparrow})p_{\downarrow\uparrow} - x_{\uparrow}p_{\uparrow\downarrow} \quad (4.9)$$

Avant de calculer la susceptibilité de la particule, il est très intéressant de regarder la relaxation en champ nul d'une particule initialement dans l'état  $\uparrow$  que l'on laisse relaxer en champ nul. L'intégration de l'équation 4.9 donne :

$$\mu_z(t) = \mu e^{-t/\tau} \quad \text{avec} \quad \tau = \frac{1}{2\nu_{\uparrow\downarrow}} e^{\beta K} \quad (4.10)$$

On retrouve la loi de Arrhenius-Néel avec un temps de relaxation caractéristique donné par :  $\frac{1}{\tau} = \nu_0 e^{-\beta K}$  avec  $\nu_0 = 2\nu_{\uparrow\downarrow}$  une fréquence d'essai de relaxation, d'abord estimée par Néel comme  $\nu_0 \simeq 10^9 \text{ s}^{-1}$  mais déterminée récemment comme valant  $\nu_0 \simeq 10^{10} \text{ s}^{-1}$  [Wernsdorfer, 2001]<sup>1</sup>. Pour une particule de 500 atomes de cobalt avec une énergie d'anisotropie  $E_a = 0,1 \text{ meV/atome}$  on obtient un temps caractéristique

---

<sup>1</sup>Nous considérons que  $\nu_0$  est une constante même si, rigoureusement, cette fréquence d'essai dépend du champ et de la température [Coffey et al., 1998; Hänggi et al., 1990] et varie selon le système considéré.

de relaxation :  $\tau(20 \text{ K})=6 \text{ min } 30 \text{ s}$  ;  $\tau(25 \text{ K})=1,2 \text{ s}$  et  $\tau(30 \text{ K})=25 \text{ ms}$ .

Pour calculer la susceptibilité dynamique de la particule on se place dans l'hypothèse d'un champ faible<sup>1</sup> et on linéarise l'équation 4.9 pour obtenir :

$$\dot{\mu}_z = \nu_0 e^{-\beta E_b} (-\mu_z + \beta \mu^2 H) \quad (4.11)$$

Pour résoudre cette équation différentielle, on écrit le champ extérieur sous la forme  $H = h_0 e^{-i\omega t}$  et on cherche une solution de la forme  $\mu_z = \mu_{z0} e^{-i\omega t}$ . On calcule ensuite la susceptibilité complexe de la particule comme étant la dérivée à champ nul du moment  $\mu_z$  par rapport au champ magnétique<sup>2</sup>. On obtient :

$$\underline{\chi}^{\uparrow\downarrow} = \left( \frac{\partial \mu_z}{\partial H} \right)_{H=0} = \frac{\mu^2}{k_B T} \frac{1}{1 - i\omega\tau}$$

La susceptibilité mesurée en prenant la pente à l'origine de  $\mu_z(H)$  correspond à la partie réelle de la susceptibilité complexe.

$$\chi^{\uparrow\downarrow} = \frac{\mu^2}{k_B T} \frac{1}{1 + (\omega\tau)^2} \quad (4.12)$$

Finalement, ce résultat permet de déterminer le facteur multiplicatif de correction dynamique  $f(\omega\tau)$  qui décrit le franchissement de la barrière d'anisotropie<sup>3</sup>. Cette fonction  $f(\omega\tau)$  varie de 0 dans l'état bloqué (ferromagnétique) à 1 dans le régime super-paramagnétique.

$$\chi^{\uparrow\downarrow} = \chi_{eq}^{\uparrow\downarrow} f(\omega\tau) \quad \text{avec} \quad f(\omega\tau) = \frac{1}{1 + (\omega\tau)^2} \quad \text{et} \quad \tau = \tau_0 e^{K/k_B T} \quad (4.13)$$

La figure 4.2.a montre l'évolution de la susceptibilité dynamique  $\chi^{\uparrow\downarrow}$  pour une particule de cobalt de 500 atomes de cobalt avec un moment atomique égal à celui du cobalt en volume ( $\mu_{at} = \mu_{Co} = 2,3\mu_B$ ) et une énergie d'anisotropie  $E_a = 0,1 \text{ meV/atome}$ . Le calcul est fait avec une fréquence  $\omega = 2 \text{ Hz}$ . On distingue très bien deux régimes de susceptibilité dynamique qui correspondent à deux états de la particule. Dans le premier état, à basse température, la réponse magnétique de la particule en champ nul est nulle, c'est le régime bloqué. A plus haute température, la réponse magnétique de la particule en champ nul est typique d'un système paramagnétique, c'est le régime super-paramagnétique.

<sup>1</sup>La limite des faibles champs correspond à  $\beta\mu H \ll 1$ . Pour une particule de cobalt de 500 atomes avec  $\mu_{at} = \mu_{Co} = 2,3\mu_B$  cette condition impose  $H \ll 13 \text{ T}$  ce qui correspond à  $H \ll 200 \text{ G}$  pour une température minimale de 15 K. On voit donc que les mesures de susceptibilités en champ nul correspondent tout à fait à ce cas limite.

<sup>2</sup>On pourrait s'étonner que la susceptibilité obtenue ne dépende pas de l'excursion en champ  $h_0$  mais uniquement de la fréquence. En fait, c'est l'hypothèse de champ faible qui nous a permis de linéariser l'équation différentielle et qui conduit à ce résultat.

<sup>3</sup>Ce résultat peut être obtenu dans le cadre de la théorie de la réponse linéaire [Kubo et al., 1991].

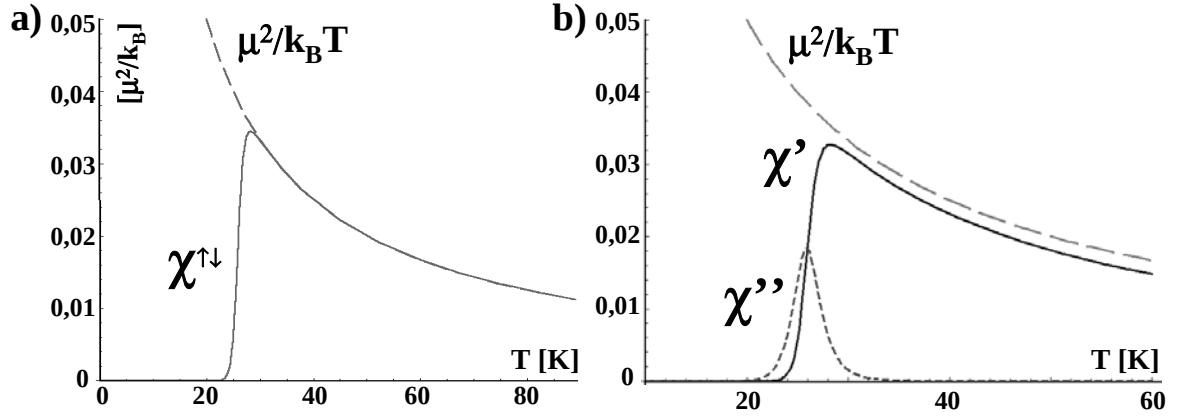


FIG. 4.2: a) Susceptibilité  $\chi^{\uparrow\downarrow}$  d'une particule de cobalt de 500 atomes de cobalt pour une fréquence  $\omega = 2$  Hz. b) Susceptibilités réelle  $\chi'$  et imaginaire  $\chi''$  selon l'expression 4.15 pour une particule de cobalt de 500 atomes de cobalt et une fréquence  $\omega = 2$  Hz.

### Température de blocage

La variation rapide de  $\tau$  avec la température permet de distinguer deux états de comportement magnétique distinct. C'est la valeur du produit  $\omega\tau$  qui détermine si une particule est dans un état bloqué ou dans un état super-paramagnétique. On définit une température de "transition" entre ces deux états que l'on appelle température de blocage et que l'on note  $T_B$ .

Cette température de blocage est telle que  $\omega\tau(T_B) = 1$ . On peut aussi obtenir la largeur  $\Delta T_B$  de la "transition" en écrivant que  $\Delta T_B^{-1} = \partial_T f(\omega\tau)_{T=T_B}$ . On obtient :

$$T_B = \frac{K}{k_B \ln(\nu_0/\omega)} \quad \text{et} \quad \Delta T_B = 2k_B T_B^2 / K \quad (4.14)$$

Lorsque  $\frac{1}{\omega} > \tau$  cela signifie que la transition entre les états  $\uparrow$  et  $\downarrow$  du moment de la particule se fait plus vite que la période du champ extérieur. Dans ce cas l'état magnétique de la particule est modifié pendant le temps de l'expérience et cela correspond à un état super-paramagnétique.

Au contraire, si  $\frac{1}{\omega} < \tau$  cela signifie que la période du champ extérieur est plus petite que le temps de transition moyen entre les états  $\uparrow$  et  $\downarrow$  du moment de la particule. Aucune modification de l'état de la particule n'est alors observée pendant l'expérience, cela correspond alors à un état bloqué.

La température de blocage n'est pas une caractéristique intrinsèque d'une particule de taille donnée d'un métal ferromagnétique donnée. La notion de super-paramagnétisme est une notion relative qui met en jeu la comparaison d'un temps de mesure expérimentale et d'un temps de relaxation du moment magnétique de la particule. Ainsi pour un même matériau des particules très différentes pourront

être super-paramagnétiques selon que l'échelle de temps considérée est géologique, humaine (mémoire magnétique) ou de l'ordre de  $10^{-8}$  s (mesure XMCD).

Dans le cas de la particule de cobalt de 500 atomes considérée dans la figure 4.2.a la température de blocage est  $T_B(2Hz) = 26$  K.

### Susceptibilité dynamique d'une nano-particule magnétique à anisotropie uniaxiale

Dans le paragraphe précédent nous avons considéré la particule comme un système à deux niveaux ce qui n'est justifié qu'en dessous de la température de blocage. Pour une température plus élevée, la susceptibilité dynamique de la particule est obtenue en combinant le facteur dynamique  $f(\omega\tau)$  du résultat 4.13 et la susceptibilité à l'équilibre  $\chi_{eq}$  exprimée en 4.7.

Il est intéressant de noter que lorsque l'on effectue une mesure de susceptibilité avec un champ alternatif de fréquence  $\omega$  et une détection synchrone on peut mesurer, à la fréquence  $\omega$ , le signal en phase qui donne la partie réelle ( $\chi'$ ) de la susceptibilité complexe ainsi le signal en quadrature qui donne la partie imaginaire ( $\chi''$ ). On obtient finalement les susceptibilités dynamiques  $\chi'$  et  $\chi''$  valables à toute température :

$$\chi' = \chi_{eq} \left[ \frac{1}{1 + (\omega\tau)^2} \right] \quad \text{et} \quad \chi'' = \chi_{eq} \left[ \frac{\omega\tau}{1 + (\omega\tau)^2} \right] \quad (4.15)$$

avec

$$\chi_{eq} = \frac{\mu^2}{k_B T} \left[ \sqrt{\frac{k_B T}{K}} \frac{e^{\frac{K}{k_B T}}}{\sqrt{\pi} \operatorname{Erfi} \left( \sqrt{\frac{K}{k_B T}} \right)} - \frac{k_B T}{2K} \right] \quad \text{et} \quad \tau = \tau_0 e^{K/k_B T}$$

La figure 4.2.b montre l'évolution des susceptibilités  $\chi'$  et  $\chi''$  pour une particule de cobalt de 500 atomes de cobalt avec un moment atomique égal à celui du cobalt en volume ( $\mu_{at} = \mu_{Co} = 2,3\mu_B$ ) et une énergie d'anisotropie  $E_a = 0,1$  meV/atome. Le calcul est fait avec une fréquence  $\omega = 2$  Hz.

Le résultat 4.15 nous montre que l'étude de la susceptibilité magnétique peut être faite en température et en fréquence. Expérimentalement le système idéal est celui qui permet une large gamme de température (cryostat) et une large gamme de fréquence de champ (bobines supraconductives).

L'expression 4.15 permet d'ajuster une mesure de susceptibilité en fonction de la température (pour une fréquence donnée) avec comme seul paramètre ajustable l'anisotropie  $K$  de la particule (son moment  $\mu$  n'intervient que comme un offset). On voit donc bien l'intérêt de mesurer ce type de caractéristique magnétique dans l'étude des propriétés des nano-particules magnétiques.

Une étude couplée en température et en fréquence peut notamment permettre de considérer la fréquence  $\nu_0$  comme un paramètre inconnu que l'on peut déterminer expérimentalement. Mesurer  $\nu_0$  reste un challenge intéressant car cette fréquence d'essai de relaxation a seulement été estimée par Néel mais jamais déterminée avec précision.

#### 4.2.4 Super-paramagnétisme d'une assemblée de particules

##### Super-paramagnétisme d'une assemblée de particules sans interaction

Le but de cette partie est de prendre en compte une distribution d'anisotropie au sein de l'assemblée de particules magnétiques. Une telle distribution d'anisotropie peut avoir différentes causes (distributions de formes, d'orientations, de tailles...). On se concentre ici sur le cas d'une assemblée de particules de mêmes formes et d'axes d'anisotropie identiques présentant une certaine distribution de taille des particules.

Lorsque l'on mesure la réponse magnétique d'une telle assemblée on a accès à la somme des susceptibilités de chaque particule. On décrit la distribution d'anisotropie des particules par le nombre  $N(K)$  de particules d'anisotropie  $K$ . Si on considère maintenant qu'un nombre  $n_a$  d'atomes sont responsables de l'anisotropie de la particule et qu'on leur attribue une énergie atomique d'anisotropie  $E_a$  on peut écrire pour chaque particule  $K(n_a) = E_a n_a$  et donc  $N(K) = E_a N(n_a)$ .

$$\chi_{tot} = \sum_K N(K) \chi(K) = E_a \sum_{n_a} N(n_a) \chi(n_a) \quad (4.16)$$

L'hypothèse la plus simple est que tous les atomes de la particule jouent le même rôle vis à vis de l'anisotropie magnétique. Dans cette hypothèse :  $n_a = n$  avec  $n$  le nombre d'atomes de la particule. Suite aux travaux récents de Brune et al. [Rusponi et al., 2003], on peut aussi envisager que seuls les atomes périphériques soient responsables de l'anisotropie magnétique. Dans cette hypothèse :  $n_a = \sqrt{4\pi n}$ .

Pour illustrer ce cas on envisage deux assemblées d'îlots avec des distributions de tailles gaussiennes centrées sur la taille moyenne de 500 atomes par îlot et de variance, soit  $\sigma_1 = 100 \text{ atomes}$ , soit  $\sigma_2 = 200 \text{ atomes}$ . Les figures 4.3.a et b montrent les distributions du nombre d'atomes total et de périmètre de ces assemblées. La figure 4.3.c montre les susceptibilités des deux assemblées d'îlots dans les deux hypothèses  $n_a = n$  et  $n_a = \sqrt{4\pi n}$ . On a fait en sorte que l'énergie d'anisotropie des îlots correspondant aux centres des distributions soit la même dans les deux hypothèses (50 meV). On voit que l'élargissement de la courbe est supérieure dans le cas où tous les atomes de l'îlot sont à l'origine de l'anisotropie magnétique.

Finalement, la connaissance de la structure des nano-particules couplée à une hypothèse sur le type d'atomes "porteurs" de l'anisotropie permet de déterminer

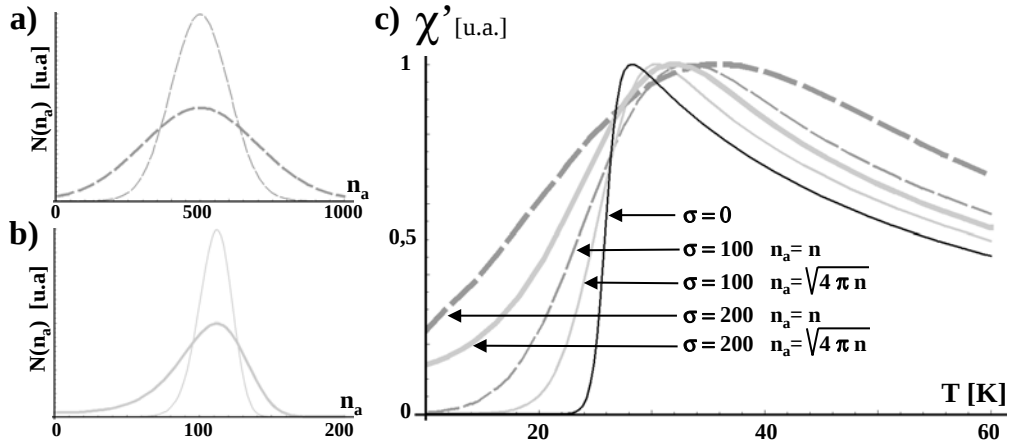


FIG. 4.3: a) Distributions de tailles d'îlots (hypothèse  $n = n_a$ ). La courbe fine (épaisse) correspond au cas d'une assemblée de particules avec une distribution de tailles gaussiennes centrée en 500 atomes et avec une variance  $\sigma_1=100$  ( $\sigma_2=200$ ). b) Distribution des périmètres d'îlots (hypothèse  $n_a = \sqrt{4\pi n}$ ) dérivées des distributions de tailles. c) Courbes de susceptibilités calculées pour les assemblées d'îlots monodisperses ou avec les distributions a) et b) dans les deux hypothèses  $n_a = n$  et  $n_a = \sqrt{4\pi n}$ . Les calculs sont faits pour une fréquence  $\omega=2$  Hz. Pour le cas  $n_a = n$   $E_a = 0,1$  meV/atome et  $\langle K_{500} \rangle = 50$  meV. Pour le cas  $n_a = \sqrt{4\pi n}$ ;  $E_a = 0,45$  meV/atome et  $\langle K_{112} \rangle = 50$  meV.

la distribution  $N(n_a)$ . Connaissant l'expression de la susceptibilité on peut alors envisager de faire un fit des mesures expérimentales de  $\chi(T)$  avec pour seul paramètre ajustable l'énergie atomique d'anisotropie  $E_a$ . Ce type d'ajustement permet, à la fois, de valider l'hypothèse faite sur les atomes porteurs de l'anisotropie de l'îlot et de mesurer l'énergie d'anisotropie  $E_a$ .

### Super-paramagnétisme d'une assemblée de particules en interaction dipolaire

Dans le cas où les particules sont en interaction dipolaire leur comportement magnétique est modifié. Remarquons que l'effet d'un couplage dipolaire est différent pour une particule qui ressent un champ dipolaire moyen qui s'ajoute ou qui se retranche au champ extérieur appliqué. Il est donc, *a priori* délicat de comparer les effets du couplage dipolaire dans une assemblée tri-dimensionnelle de particules, dans un réseau bi-dimensionnel de plots à anisotropie planaire et dans un même réseau 2D de plots à anisotropie perpendiculaire.

Expérimentalement des études sur des assemblées de particules de Fe-C montrent que le couplage dipolaire augmente le temps de relaxation du système [Djurberg et al., 1997]. Des résultats de simulations montrent, quant à eux, que l'on observe

un affaissement de la courbe de susceptibilité et une décroissance moins rapide que  $\frac{1}{T}$  pour  $\chi'(T)$  dans le régime super-paramagnétique [Chantrell et al., 2000] .

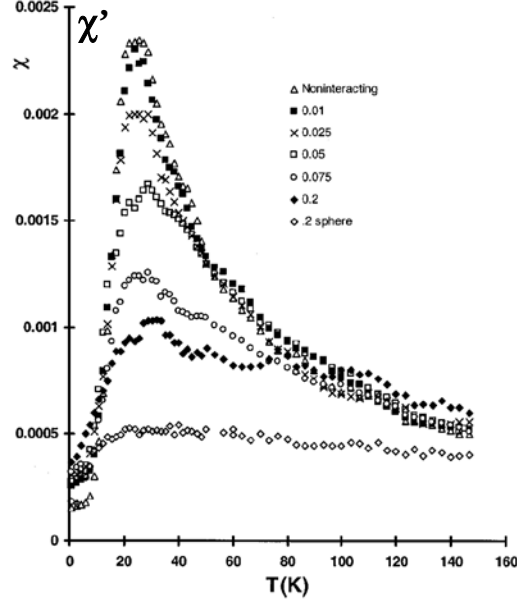


FIG. 4.4: Résultats de simulations pour la susceptibilité magnétique d'une assemblée de particules en interaction dipolaire avec différentes densités. D'après [Chantrell et al., 2000]

## 4.3 Susceptibilité magnétique des plots de cobalt organisés sur Au(788)

Nous présentons maintenant les résultats de l'étude des propriétés magnétiques des plots de cobalt sur Au(788) que nous avons menée en collaboration avec l'équipe d'Harald Brune de l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne.

### 4.3.1 Dispositif expérimental, présentation de la mesure

Ces expériences ont été réalisées dans le dispositif ultra-vide de cette équipe qui est assez similaire au nôtre mais qui permet de faire des images STM et des mesures d'effets Kerr magnéto-optiques à température variable pour une même position de l'échantillon. Nous avons donc mené une étude in-situ de la morphologie et des propriétés magnétiques des plots sans craindre des effets inhérents à un transfert d'échantillon ou à une couche de passivation. D'un point de vue magnéto-optique, le dispositif expérimental permet des mesures d'effet Kerr en réflexion sur la surface

avec une incidence à  $45^\circ$ . Le champ magnétique extérieur appliqué est soit perpendiculaire à la surface soit transverse (planaire et perpendiculaire au plan d'incidence).

Dans le but de caractériser les propriétés magnétiques des nano-plots et pour étudier leur régime super-paramagnétique il est nécessaire de mesurer leur réponse à un champ magnétique extérieur en fonction de la température. Nous avons vu dans la partie précédente qu'une méthode particulièrement adaptée à ce type d'étude est la mesure de la susceptibilité magnétique initiale (en champ très faible). Nous mesurons donc  $\chi'(T)$  comme la dérivée par rapport au champ du signal Kerr polaire à champ nul. Ces mesures sont réalisées avec un champ extérieur alternatif de fréquence  $\omega \approx 2 \text{ sec}^{-1}$  et d'amplitude 50 Oe.

#### 4.3.2 Caractérisation structurale par STM

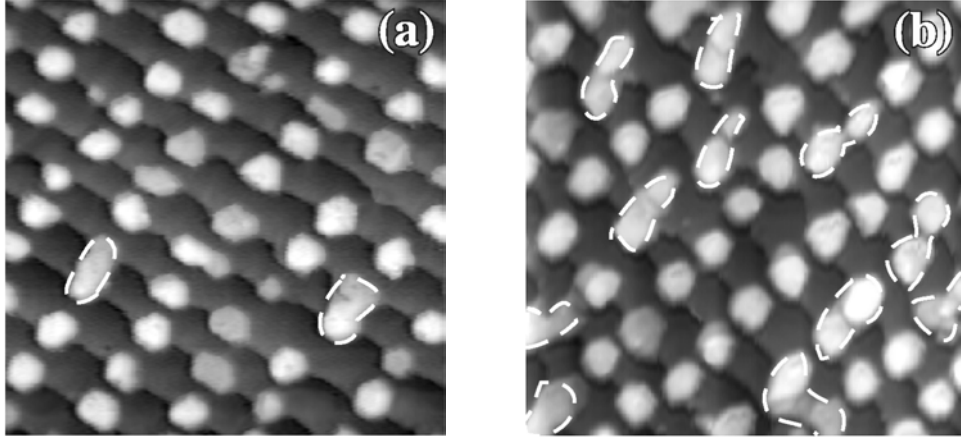


FIG. 4.5: Images STM ( $40 \times 40 \text{ nm}^2$ ) des dépôts de cobalt sur Au(788) effectués par succession de cycles de dépôts ( $\leq 0,3 \text{ MC}$ ) à 130 K et de recuits à température ambiante. a)  $\theta = 0,75 \text{ MC}$ . b)  $\theta = 1,1 \text{ MC}$ .

Les conditions optimales pour la croissance d'un réseau de plots de cobalt sur Au(788) sont un dépôt à 130 K et un recuit à température ambiante (cf. Fig. 3.13). On obtient ainsi des îlots très bien ordonnés et très isotropes avec une forme circulaire qui garantit une coalescence plus tardive que la forme allongée observée lors de la croissance à température ambiante (cf. Fig. 3.4). Pour pouvoir obtenir des îlots déconnectés de taille maximale nous avons donc effectué la croissance par succession de cycles de dépôts ( $\leq 0,3 \text{ MC}$ ) à 130 K et de recuits à température ambiante. Dans ces conditions la distribution de taille d'îlots voit sa valeur moyenne croître linéairement avec le taux de couverture et elle conserve une largeur normalisée constante et égale à 40%. Comme prévue pour des îlots bicouches et circulaires sur Au(788) la coalescence intervient vers 0,8 MC.

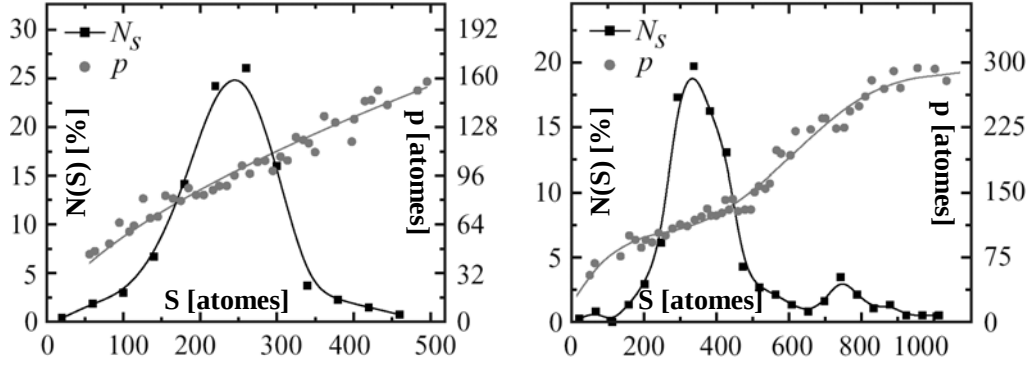


FIG. 4.6: *Distributions de taille des îlots et évolution du nombre d'atomes en périphérie en fonction de la taille des îlots pour 0,75 MC et 1,1 MC.*

La figure 4.5 montre les images STM réalisées sur les dépôts de cobalt pour des taux de couverture de 0,75 MC et 1,1 MC. La figure 4.6 montre les distributions de taille et les périmètres des îlots <sup>1</sup> pour les mêmes taux de couverture. Pour 0,75 MC, on observe des îlots isotropes et de taille régulière. La distribution de tailles est centrée sur 250 atomes avec une largeur à mi hauteur qui correspond à  $\pm 70$  atomes<sup>2</sup>. Les rares îlots coalescés, entourés de pointillés blancs sur l'image STM 4.5.a ne perturbent pas le système et n'élargissent que très peu la distribution de tailles des îlots. Pour un taux de couverture de 1,1 MC on observe beaucoup d'îlots coalescés (voir les îlots entourés de pointillés blancs sur la figure 4.6.b) et une distribution de tailles bimodale. On distingue nettement les deux populations d'îlots avec des tailles de 330 atomes pour les îlots simples et de 750 atomes pour les îlots doubles. Si l'on accroît encore le taux de couverture on atteint un stade de coalescence multiple avec une distribution de tailles très large et peu adaptée à des mesures magnétiques moyennées.

### 4.3.3 Susceptibilité des plots de cobalt sur Au(788)

Lorsque l'on effectue des essais de détection de signaux Kerr polaire et transverse en faible champ ( $H < 100$  Oe) pour un taux de couverture en cobalt inférieure à 0,6 MC on ne détecte aucun signal quelle que soit la température. Pour des taux de couverture supérieurs à 0,6 MC, on mesure un signal Kerr en appliquant un champ polaire alors qu'aucun effet n'est détecté en appliquant un faible champ transverse. On en déduit que l'aimantation des plots ne présente aucune composante planaire et

<sup>1</sup>Le nombre d'atomes dans les îlots et le périmètre des îlots sont obtenus en considérant le paramètre de maille du cobalt massif et en prenant en compte le caractère bi-couche des îlots

<sup>2</sup>On peut remarquer que des îlots circulaires bi-couches de 250 atomes répartis sur un réseau de maille unitaire  $3 \text{ nm} \times 7 \text{ nm}$  correspondent à un taux de couverture de 0,65 MC ce qui illustre notre incertitude sur le taux de couverture.

que les plots possèdent donc une anisotropie uniaxiale perpendiculaire à la surface. On est donc dans le cas d'une assemblée de particules présentant une anisotropie uniaxiale telle que celles que nous avons étudiées de manière théorique dans la partie précédente. Pour une telle particule on a la susceptibilité en champ nul qui est donnée par l'expression 4.15.

Si l'on se place à un taux de couverture de 0,75 MC on observe une courbe de susceptibilité en fonction de la température qui présente trois régimes (cf. Fig. 4.7.a). A basse température, le système est bloqué et on ne mesure aucune réponse magnétique. Lorsque la température augmente la susceptibilité augmente brusquement puis atteint son maximum et décroît avec une évolution en  $1/T$ . Cette courbe de susceptibilité est typique d'un système super-paramagnétique (cf. Fig 4.2). La figure 4.7.a permet d'estimer la température de blocage et la largeur de la "transition" bloqué/super-paramagnétique. On obtient :

$$T_B(\omega = 2 \text{ Hz}) \approx 40 \text{ K} \quad \text{et} \quad \Delta T_B(\omega = 2 \text{ Hz}) \approx 15 \text{ K} \quad (4.17)$$

Si l'on utilise l'expression 4.14 pour la température de blocage on obtient une estimation de l'énergie d'anisotropie moyenne par particule :  $\langle K \rangle \approx 77 \text{ meV}$ . On peut comparer cette valeur à l'anisotropie de surface déterminée à partir de  $K_s \simeq 0,2 \text{ meV/atome}$  [Chappert et Bruno, 1988; Grolier et al., 1993]. On obtient, pour 125 atomes à l'interface Co/Au, une énergie d'anisotropie de 0,25 meV qui est trois fois trop faible. La largeur de la transition est plus large que la valeur prédite pour une particule unique, par l'expression 4.14 ce qui est un effet de la distribution d'anisotropie des particules.

Pour un taux de couverture de 1,1 MC, on observe une courbe de susceptibilité en fonction de la température qui présente un double pic (cf. Fig. 4.7.b) ce qui est cohérent avec la distribution de taille bimodale observée sur la figure 4.6.b.

La susceptibilité d'une particule est une fonction du moment magnétique  $\mu$  de la particule et de son énergie  $K$  d'anisotropie magnétique. Le moment magnétique de la particule monodomaine est la somme des moments atomiques des atomes de cobalt qui la composent. Le moment magnétique atomique est la somme d'une contribution orbitale et d'une contribution de spin. Il se trouve que la contribution de spin est dominante et est indépendante de la coordination de l'atome [Gambardella et al., 2003] ce qui nous permet de faire l'approximation que pour une particule de  $n$  atomes  $\mu = n \mu_{Co}$  avec  $\mu_{Co} = 2,3 \mu_B$  [Koide et al., 2001].

Contrairement au moment magnétique, la coordination des atomes est une donnée très importante en ce qui concerne l'anisotropie magnétique. Il est bien connu que l'énergie d'anisotropie des atomes de basse coordination est très augmentée par rapport à la valeur du volume [Gambardella et al., 2002a]. Cet effet de coordination a été observé et étudié en détail pour des îlots de cobalt déposés sur un substrat de Pt(111) par l'équipe de Harald Brune. Leurs résultats montrent clairement que

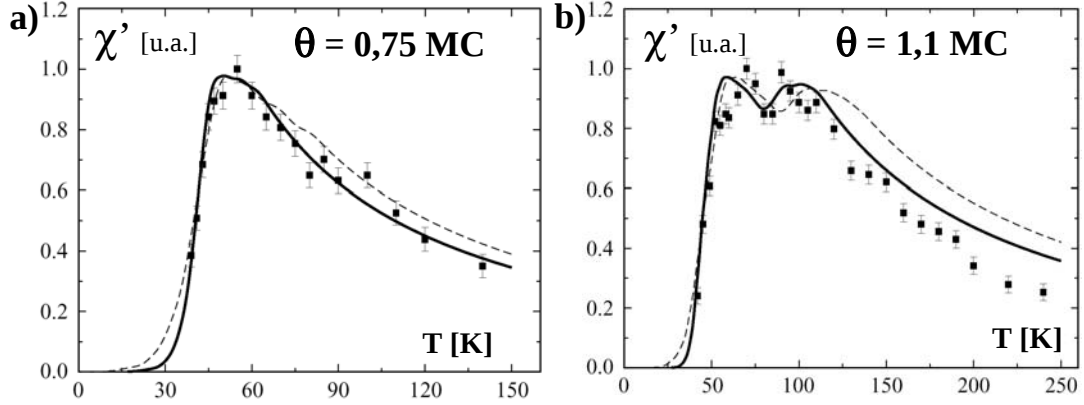


FIG. 4.7: Courbes de susceptibilités  $\chi'(T)$  mesurées a) pour  $\theta=0,75$  MC; b) pour  $\theta=1,1$  MC. Les lignes pleines correspondent au calcul de la susceptibilité dans l'hypothèse ou l'anisotropie des îlots n'est due qu'aux atomes de bord. Les lignes en pointillés correspondent au calcul de la susceptibilité dans l'hypothèse ou l'anisotropie des îlots est due à tous les atomes.

pour des îlots contenant entre 100 et 10 000 atomes l'anisotropie est due aux atomes en périphérie des îlots [Rusponi et al., 2003]. Dans le cas présent de Co/Au(788), l'étroite distribution de taille de plots rend délicate l'identification des effets de périmètre. Quoi qu'il en soit, nous faisons l'hypothèse que seuls les atomes de périphérie des plots sont responsables de l'anisotropie magnétique des plots et nous écrivons  $K = n_p E_a$  avec  $n_p$  le nombre d'atomes en bord d'îlot et  $E_a$  l'énergie d'anisotropie atomique. Nous faisons, de plus, l'hypothèse que les îlots sont bi-couches et on ne distingue pas les deux couches.

Nous avons extrait les distributions de taille et de périmètre des plots grâce à une étude statistique des images STM. Ces distributions nous ont permis de calculer la courbe de susceptibilité en sommant la contribution de chaque îlot. L'énergie  $E_a$  d'anisotropie magnétique atomique est le seul paramètre libre du calcul et on peut donc ajuster sa valeur en ajustant la courbe calculée aux points de mesure. La figure 4.7 reproduit les ajustements des données et on voit que l'accord est très bon. Les courbes mesurées pour les deux taux de couverture sont reproduites avec la même valeur de l'énergie d'anisotropie magnétique atomique, on obtient  $E_a = 0,8 \pm 0,1$  meV/atome. Si on corrige cette valeur de l'anisotropie de forme ( $E_a^{dip} \simeq -0,09$  meV/atome) on obtient une valeur d'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline atomique  $E_a^{mc} \simeq 0,9$  meV/atome. Cette valeur est très grande par rapport à l'anisotropie magnéto-cristalline de volume du cobalt  $K_v^{mc} \simeq 0,4 - 0,5$  meV/atome [Chappert et Bruno, 1988; Grolier et al., 1993] et elle est plus élevée que l'anisotropie de surface du cobalt  $K_s \simeq 0,2$  meV/atome [Chappert et Bruno, 1988; Bruno, 1989a;

[Grolier *et al.*, 1993]. Ce résultat correspond bien à l'effet de baisse de la coordinence sur l'exaltation de l'anisotropie. Pour comparaison, rappelons que, pour le système Co/Pt(111), Gambardella *et al.* ont mesuré  $E_a \simeq 9,3$  meV/atome pour des adatoms isolés,  $E_a \simeq 2$  meV/atome pour des chaînes monoatomiques,  $E_a \simeq 0,34$  meV/atome pour des chaînes biatomiques et  $E_a \simeq 0,13$  meV/atome pour une monocouche complète [Gambardella *et al.*, 2002a; Gambardella *et al.*, 2003]. Pour confirmer l'hypothèse de l'anisotropie localisé à la périphérie des îlots nous avons fait un ajustement des mesures avec l'hypothèse d'une anisotropie portée par tous les atomes. On voit que les courbes, en pointillés sur la figure 4.7, reproduisent moins bien les résultats expérimentaux.

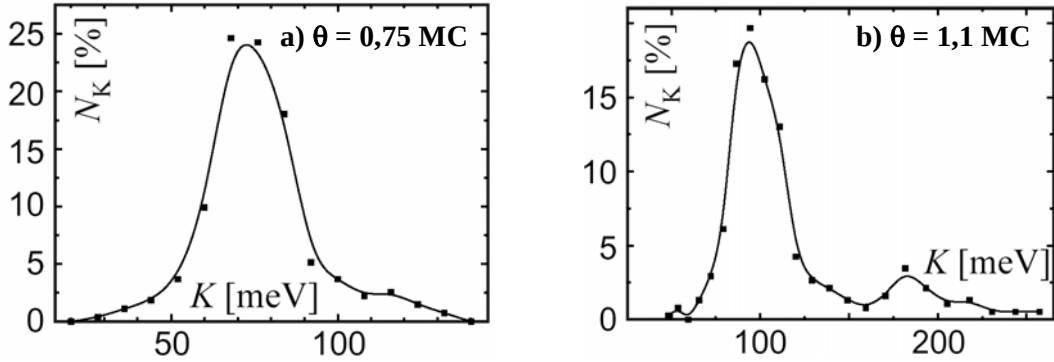


FIG. 4.8: Distribution  $N_K$  de l'énergie d'anisotropie des îlots dans l'hypothèse ou l'anisotropie des îlots n'est due qu'aux atomes de bord. a)  $\theta = 0,75$  MC. b) pour  $\theta = 1,1$  MC. Pour  $0,75$  MC le fit gaussien de la distribution d'anisotropie est centré en  $\bar{K} = 75$  meV et a une variance très faible, de l'ordre de 17%.

La figure 4.8 montre les distributions d'énergie d'anisotropie des plots. Ces distributions correspondent finalement aux distributions de périmètre avec un facteur multiplicatif  $E_a$  près. Pour  $0,75$  MC, le fit gaussien de cette distribution est centré en  $\bar{K} = 75$  meV et a une variance très faible, de l'ordre de 17%.

#### 4.3.4 Coupage dipolaire des nano-plots de cobalt sur Au(788)

Pour un réseau de plots tel que celui que nous étudions il est capital de savoir s'il existe un couplage dipolaire au sein de l'assemblée. En l'absence de couplage la susceptibilité de chaque particule évolue comme  $1/T$  lorsque la température est supérieure à la température de blocage. Des simulations Monte-Carlo [Chantrell *et al.*, 2000] ont permis de montrer que les interactions entre plots magnétiques a pour effet de faire diminuer la susceptibilité plus lentement que  $1/T$  au dessus de  $T_B$  ce qui n'est pas le cas de la susceptibilité que l'on mesure expérimentalement. On peut aussi remarquer que le double pic de la courbe de susceptibilité obtenue

pour 1,1 MC ne s'explique que si les deux populations d'îlots de tailles différentes gardent leur comportement propre.

Les résultats de la figure 4.7 sont donc cohérents avec une très faible interaction entre les plots magnétiques. Pour justifier cette absence d'interaction on peut comparer le champ d'anisotropie des particules  $H_{an} = \frac{2K}{\mu}$  et le champ dipolaire induit par l'assemblée d'îlots. Pour 0,75 MC, une particule moyenne contient 250 atomes dont 90 atomes de bord<sup>1</sup>. On a donc  $H_{an} = \frac{2 \times 180 E_a}{250 \mu_{Co}} \approx 4,3 \times 10^4$  Oe alors que le champ dipolaire créé par les autres plots peut être estimé à 500 Oe. L'intensité du couplage est donc très faible devant le champ d'anisotropie des îlots et l'on peut faire l'approximation que les plots sont non couplés.

On peut remarquer qu'à haute température les derniers points expérimentaux sont plutôt sous la courbe calculée. Cette décroissance de la susceptibilité peut-être interprétée par une dépendance en température du moment magnétique des particules. Ainsi, on peut penser qu'à haute température, l'interaction d'échange ne suffit pas à maintenir un alignement parfait des moment atomiques et, en conséquence :  $\mu < n \mu_{Co}$  [Zhang et al., 1998].

### 4.3.5 Conclusion

Dans cette partie, nous avons utilisé la mesure de susceptibilité magnétique initiale pour caractériser les propriétés d'anisotropie magnétique des plots de cobalt sur Au(788). Grâce à la croissance auto-organisée des plots de cobalt sur cette surface nous avons obtenu un réseau de plots avec une très faible dispersion de taille. Cette monodispersité nous a permis d'utiliser une mesure magnéto-optique pour déterminer les propriétés magnétiques de l'assemblée d'îlots et remonter aux propriétés des nano-structures individuelles.

La distribution d'anisotropie que nous déterminons présente une dispersion très faible (deux fois plus faible que le meilleur résultat obtenu sur des particules colloïdales [Woods et al., 2001]. Remarquons pour finir que notre étude démontre clairement l'intérêt des nano-particules bi-dimensionnelles. Leur anisotropie élevée est gouvernée par leur périmètre [Rusponi et al., 2003] que l'on peut contrôler par différents paramètres (flux de dépôt, température) et le couplage spin-orbite des plots avec le substrat entraîne une anisotropie uniaxiale d'axe de facile aimantation commun à toutes les particules.

---

<sup>1</sup>La loi continue  $n_p = \sqrt{4\pi n}$ , valable pour des îlots parfaitement circulaires, donne 80 atomes de bord pour un îlot bicouche de 250 atomes.

## 4.4 L'importance des effets dynamiques pour la mesure des cycles d'hystérésis de nano-particules magnétiques.

Dans la première section de ce chapitre nous avons calculé la susceptibilité pour une nano-particule magnétique et nous avons mis en évidence l'importance de la dynamique du retournement de son moment magnétique. Dans cette partie nous présentons les résultats de calculs de courbes d'aimantation complètes pour une particule unique ou une assemblée de particules. Nous montrons que la dynamique du retournement du moment magnétique d'une particule à anisotropie uniaxiale permet d'observer, dans une certaine gamme de température et de fréquence, des cycles d'hystérésis originaux. Cette étude sera une base pour l'interprétation des cycles d'hystérésis mesurés sur les plots de cobalt organisés sur Au(11,12,12) et présentés dans la dernière partie de ce chapitre.

### 4.4.1 Relaxation et retournement d'une nano-particule magnétique

L'intégration de l'équation maîtresse 4.9 permet de caractériser la relaxation d'une particule de moment initial  $\mu_z^o = \mu(2x_\uparrow^o - 1)$  ( $x_\uparrow^o$  est la probabilité de trouver la particule dans l'état initial  $\uparrow$ ) dans un champ  $H$  constant :

$$\mu_z(t) = \mu \left[ -1 + 2 \frac{e^{\beta\mu H} + [(x_\uparrow^o - 1) e^{\beta\mu H} + x_\uparrow^o e^{-\beta\mu H}] e^{-t/\tau^*}}{e^{\beta\mu H} + e^{-\beta\mu H}} \right] \quad (4.18)$$

avec  $\frac{1}{\tau^*} = \frac{\nu_0}{2} [e^{-\beta E_{\uparrow\downarrow}} + e^{-\beta E_{\downarrow\uparrow}}]$

Dans le cas où l'on plonge une particule orientée dans l'état  $\downarrow$  ( $x_\uparrow^o = 0$ ) dans un champ  $H$  l'expression ci-dessus se simplifie et on obtient :

$$\mu_z(t) = \mu \left[ -1 + 2 \frac{e^{\beta\mu H}}{e^{\beta\mu H} + e^{-\beta\mu H}} (1 - e^{-t/\tau^*}) \right] \quad (4.19)$$

Pour un champ  $H > 0$  et assez élevé, on peut négliger la transition de l'état  $\uparrow$  vers l'état  $\downarrow$  ce qui revient à considérer :  $e^{-\beta\mu H} \ll e^{\beta\mu H}$  et  $e^{-\beta E_{\uparrow\downarrow}} \ll e^{-\beta E_{\downarrow\uparrow}}$ . Dans ce cas,  $\tau^* = \frac{\nu_0}{2} e^{-\beta E_{\downarrow\uparrow}}$  et on obtient l'expression du champ de retournement de la particule en fonction du temps. Si on appelle  $H_c(t)$  le champ qui annule  $\mu_z$  au temps  $t$  on obtient une expression comparable à celle de la référence [Wernsdorfer, 2001] :

$$H_c(t) = H_{an} \left[ 1 - \sqrt{\frac{k_B T}{K}} \sqrt{\ln \left( \frac{\nu_0 t}{2 \ln 2} \right)} \right] \quad (4.20)$$

avec  $H_{an} = \frac{2K}{\mu}$  le champ d'anisotropie de la particule.

#### 4.4.2 Cycles d'hystérésis et effets dynamiques

On souhaite maintenant saturer la particule dans un champ magnétique supérieur au champ d'anisotropie et obtenir la courbe d'aimantation complète de la particule. Expérimentalement, on utilise pour cela un champ magnétique alternatif de fréquence  $\omega$ . L'équation maîtresse 4.9 n'est pas facile à intégrer avec un champ magnétique variable. On peut cependant construire numériquement la courbe d'aimantation complète de la particule en utilisant le résultat 4.18. Pour cela, on considère une rampe de champ magnétique discrète et un état de départ connu (par exemple l'état  $\uparrow$  avec un champ  $H \geq H_{an}$ ). Ensuite, à chaque pas de temps  $\Delta t$ , on incrémente le champ de  $\Delta H$  et on laisse relaxer la particule pendant le temps  $\Delta t$  et ainsi de suite. La vitesse de balayage du champ est alors donnée par  $v = \Delta H / \Delta t$ .

On peut, *a priori*, distinguer deux cas limites pour la courbe d'aimantation complète de la particule. Lorsque la particule est bloquée ( $T \ll T_B(\omega)$ ) on s'attend à observer un cycle d'hystérésis carré correspondant au basculement d'un état stable à l'autre. Lorsque la particule est super-paramagnétique ( $T \gg T_B(\omega)$ ) on s'attend à observer une courbe d'aimantation de Langevin typique d'un système paramagnétique. Entre ces deux régimes, pour une température au voisinage de la température de blocage (ou pour une fréquence de champ proche de la fréquence de retournement de la particule), la courbe d'aimantation présente une forme originale due aux effets dynamiques.

Dans la suite on considère une particule de cobalt de 500 atomes de cobalt avec un moment magnétique  $\mu = 500 \mu_{at}$  ( $\mu_{at} = \mu_{Co} = 2,3 \mu_B$ ) et une anisotropie  $K = 500 E_a$  ( $E_a = 0,1$  meV/atome). Le champ d'anisotropie de cette particule est  $H_{an} = 1,5$  T et nous avons vu dans la première partie de ce chapitre que sa température de blocage est  $T_B(2Hz) = 26$  K.

##### En dessous de la température de blocage

La figure 4.9 montre le résultat du calcul numérique de la courbe d'aimantation de la particule pour différentes températures et vitesses de balayage de champ. Les cycles 4.9.a, b et c sont calculés pour  $T=0,1$  K,  $T=2$  K et  $T=6$  K et pour  $v=0,1$  T.s<sup>-1</sup>. Le cycle 4.9.d est calculé pour  $T=6$  K et pour  $v=10$  T.s<sup>-1</sup>. On voit que la courbe d'aimantation de la particule est un cycle carré. Le champ de basculement correspond au champ pour lequel la particule a une probabilité 1/2 de basculer d'un état à l'autre en un temps  $\Delta t$ <sup>1</sup>. Ce champ coercitif de la particule est donné, grâce à l'expression 4.20, par  $H_c(\Delta t)$  et on comprend bien que c'est une quantité qui varie avec la température mais aussi avec la vitesse de balayage du champ.

---

<sup>1</sup>On considère le cas où l'échantillonnage de la mesure est tel que l'on suit le signal instantanément.

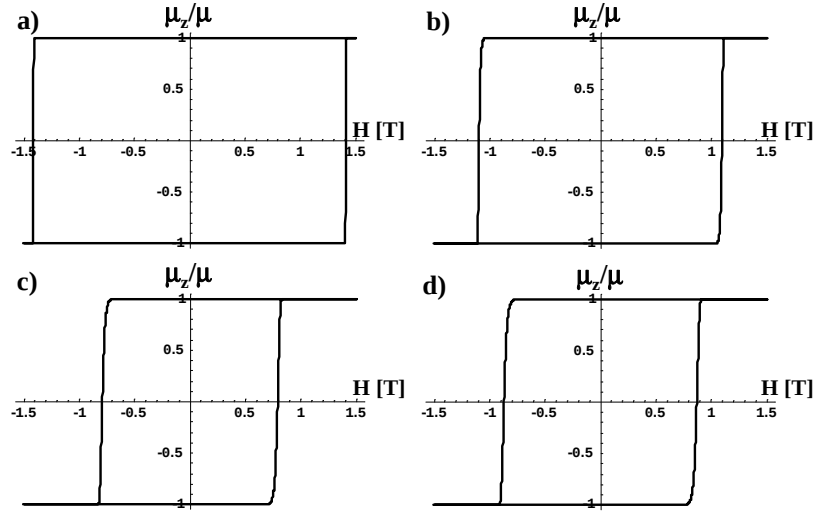


FIG. 4.9: Courbes d'aimantation complètes calculées pour : a)  $T=0,1$  K et  $v=0,1$   $T.s^{-1}$ ; b)  $T=2$  K et  $v=0,1$   $T.s^{-1}$ ; c)  $T=6$  K et  $v=0,1$   $T.s^{-1}$ ; d)  $T=6$  K et  $v=10$   $T.s^{-1}$ .

#### Au dessus de la température de blocage

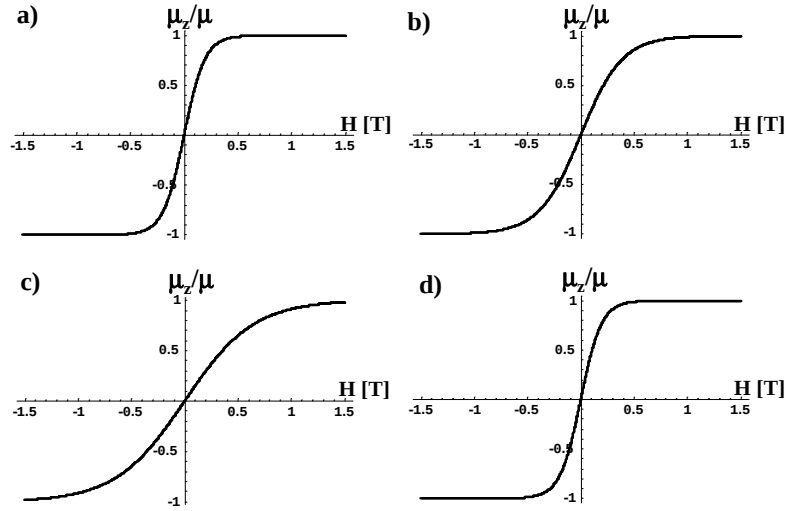


FIG. 4.10: Courbes d'aimantation complètes calculées pour : a)  $T=150$  K et  $v=0,1$   $T.s^{-1}$ ; b)  $T=300$  K et  $v=0,1$   $T.s^{-1}$ ; c)  $T=500$  K et  $v=0,1$   $T.s^{-1}$ ; d)  $T=150$  K et  $v=10$   $T.s^{-1}$ .

La figure 4.10 montre le résultat du calcul numérique de la courbe d'aimantation de la particule pour différentes températures et vitesses de balayage de champ. Les

cycles 4.9.a, b et c sont calculés pour  $T=150$  K,  $T=300$  K et  $T=500$  K et pour  $v=0,1$  T.s<sup>-1</sup>. Le cycle 4.9.d est calculé pour  $T=150$  K et pour  $v=10$  T.s<sup>-1</sup>. On voit que la courbe d'aimantation est une courbe de type Langevin, typique d'un système paramagnétique, avec une forme qui varie avec la température et la vitesse de balayage du champ.

### Autour de la température de blocage

Un vrai système paramagnétique qui obéit à une loi de Langevin ne présente jamais de phénomène d'hystérésis de même qu'un système ferromagnétique à anisotropie uniaxiale présente toujours un basculement très abrupte entre deux états lorsque le champ est appliqué selon l'axe d'anisotropie. Les effets dynamiques du retournement d'une petite particule ferromagnétique permettent l'observation de courbes d'aimantation originales (ni des cycles carrés ni des courbes de Langevin) pour des températures voisines de la température de blocage de la particule.

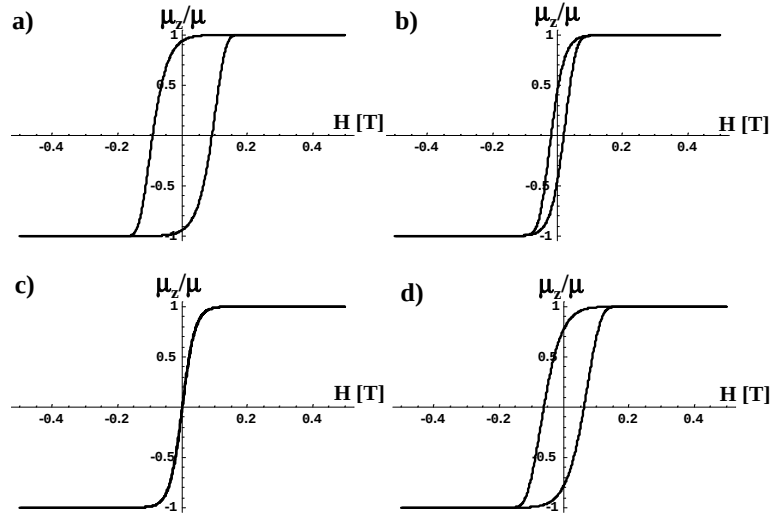


FIG. 4.11: *Courbes d'aimantation complètes calculées pour : a)  $T=23$  K et  $v=0,1$  T.s<sup>-1</sup>; b)  $T=26$  K et  $v=0,1$  T.s<sup>-1</sup>; c)  $T=30$  K et  $v=0,1$  T.s<sup>-1</sup>; d)  $T=30$  K et  $v=10$  T.s<sup>-1</sup>.*

La figure 4.11 montre le résultat du calcul numérique de la courbe d'aimantation de la particule pour différentes températures et vitesses de balayage de champ. Les cycles 4.9.a, b et c sont calculés pour  $T=23$  K,  $T=26$  K et  $T=30$  K et pour  $v=0,1$  T.s<sup>-1</sup>. Le cycle 4.9.d est calculé pour  $T=30$  K et pour  $v=10$  T.s<sup>-1</sup>. On voit clairement qu'au voisinage de la température de blocage il faut être très prudent lorsque l'on souhaite faire des mesures des courbes d'aimantation de petites particules ferromagnétiques. La différence nette qui existe entre les cycles 4.9.c et 4.9.d est la preuve que les effets de la dynamique de retournement sont notamment très

importants lorsque l'on souhaite comparer des mesures magnétiques menées avec des vitesses de balayage de champ différentes.

Remarquons que la vitesse de balayage de champ  $v$  est un paramètre différent de la fréquence du champ  $\omega$  utilisé pour le calcul de la susceptibilité dynamique dans la première partie de ce chapitre. Dans le cas d'une particule unique, on peut relier ces deux paramètres de la manière suivante : si l'amplitude de champ correspondant à l'extrapolation du régime linéaire de l'aimantation lors du tracé du cycle d'hystérésis est  $H_{lin}$  (cette amplitude peut être estimée grâce à la tangente à la courbe d'aimantation à champ nul) alors  $\omega \equiv v/H_{lin}$ .

Finalement, la mesure expérimentale des courbes d'aimantation permet de bien caractériser les propriétés magnétiques de la particule mais ne remplace pas la mesure de la susceptibilité en champ nul pour la détermination de son anisotropie magnétique.

#### 4.4.3 Courbe d'aimantation d'une assemblée de particules sans interactions

Dans un modèle de Stoner-Wolfarth à 0 K le champ de basculement d'une particule est donné par son champ d'anisotropie  $H_{an} = 2K/\mu$ . Avec l'hypothèse que tous les atomes de l'îlot sont responsables de l'anisotropie magnétique avec une énergie atomique  $E_a$  on obtient le même champ de basculement pour tous les îlots quelle que soit leur taille :  $H_{an} = 2E_a/\mu_{at}$ .<sup>1</sup>

Pour une température non nulle, les effets dynamiques du retournement de l'aimantation induisent une modification de la réponse magnétique avec la taille de la particule. On se concentre ici sur l'hypothèse que tous les atomes de la particule sont responsables de l'anisotropie magnétique ( $n_a = n$ ). La figure 4.12 montre les courbes d'aimantation calculées pour différentes températures et différentes distributions de tailles de particules avec  $v=0,1 \text{ T.s}^{-1}$ .

Pour chaque température on étudie le cas d'une particule de 500 atomes de cobalt avec un moment magnétique  $\mu = 500 \mu_{at}$  ( $\mu_{at} = \mu_{Co} = 2,3\mu_B$ ) et une anisotropie  $K = 500 E_a$  ( $E_a = 0,1 \text{ meV/atome}$ ). Nous savons que le champ d'anisotropie de cette particule vaut  $H_{an} = 1,5 \text{ T}$ . Pour chaque température on a aussi représenté la courbe d'aimantation normalisée calculée pour des assemblées de particules avec des distributions gaussiennes de tailles de particules. On voit clairement que la distribution de taille étale les basculements des îlots d'anisotropie différente. Pour une distribution de taille suffisamment large les îlots les plus petits commencent même

---

<sup>1</sup>Dans l'hypothèse d'une anisotropie localisée aux bords de l'îlot on obtient un champ d'anisotropie  $H_b \propto 1/\sqrt{n}$  et on observe une modification de la courbe d'aimantation de l'assemblée de particules par rapport à celle de la particule unique en présence d'une distribution de taille même à température nulle

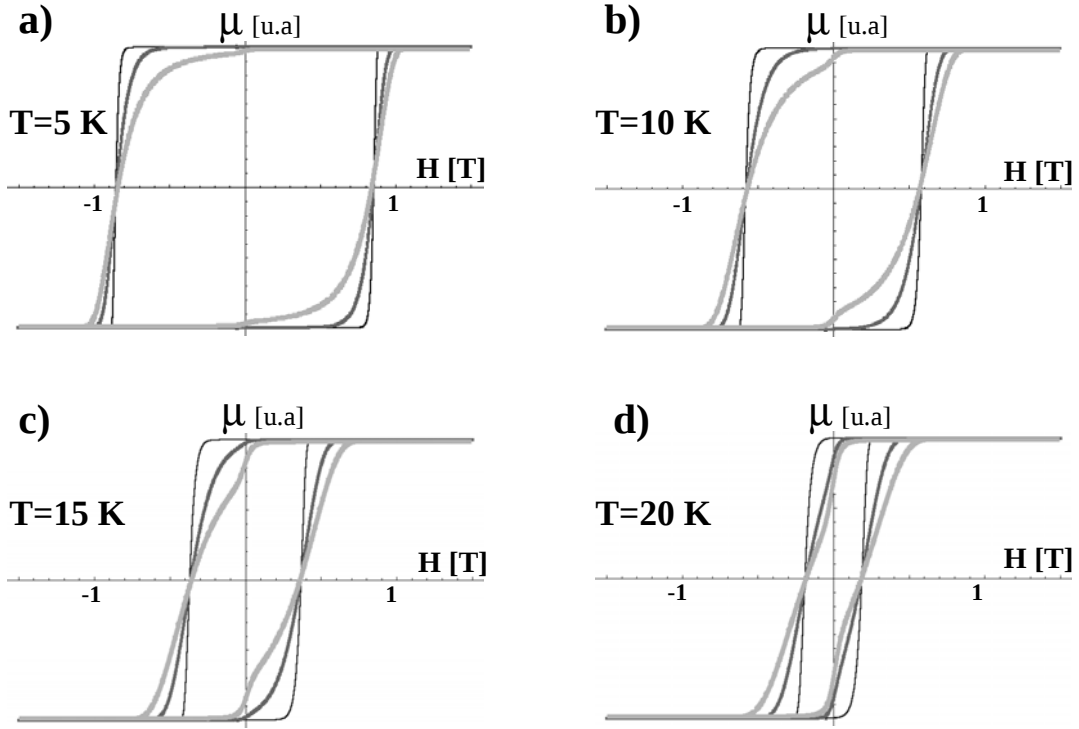


FIG. 4.12: *Courbes d'aimantation complètes calculées dans l'hypothèse  $n_a = n$  pour différentes températures. La courbe noire et fine correspond au cas d'une assemblée de particules monodisperses de 500 atomes. La courbe grise foncée (claire) correspond au cas d'une assemblée de particules avec une distribution de tailles gaussiennes centrée en 500 atomes et avec une variance  $\sigma_1=100$  ( $\sigma_2=200$ ).*

à basculer en champ nul. Ces effets dynamiques sont d'autant plus importants que la température est proche de la température de blocage.

## 4.5 Super-paramagnétisme des plots de cobalt organisés sur Au(11,12,12)

Nous présentons maintenant les résultats de l'étude des propriétés magnétiques des plots de cobalt sur Au(11,12,12) que nous avons menée en collaboration avec l'équipe de Jacques Ferré du laboratoire de Physique des Solides d'Orsay.

### 4.5.1 Dispositif expérimental, présentation de la mesure

Nous avons vu que la surface Au(11,12,12) présente un réseau de sites de croissance répartis avec une maille quasiment carré dont les dimensions sont 6 nm selon la

direction  $[\bar{2}11]$  perpendiculaire aux marches et 7 nm selon la direction  $[01\bar{1}]$  parallèle aux marches.

Le dépôt de cobalt sur Au(11,12,12) a été fait à l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, par l'équipe d'Harald Brune en procédant par étapes de dépôt de  $\sim 0,3$  MC et de recuit à 350 K pour augmenter l'isotropie des plots. Sur Au(11,12,12) la coalescence des plots ainsi obtenus a lieu dans la direction  $[\bar{2}11]$  pour un taux de couverture de 1,2 MC. Après avoir déposé 1 MC de cobalt nous avons recouvert le réseau de plots d'une couche de passivation d'or de 8 MC afin d'empêcher l'oxydation du cobalt lors de l'exposition à l'air de l'échantillon. Nous ne disposons malheureusement pas d'une étude STM de l'échantillon mais notre connaissance du système est suffisante pour estimer la taille moyenne des plots. Avec un réseau de plots bicouches de maille  $42 \text{ nm}^2$  on obtient une taille d'îlot de 700 atomes pour un taux de couverture de 1 MC. Cette taille d'îlot correspond à 130 atomes de bord.

Grâce à un cryostat muni de hublots<sup>1</sup> et contenant de petites bobines supraconductrices nous avons pu obtenir des mesures de susceptibilités et des cycles d'hystérésis du système Au/Co/Au(11,12,12) à différentes températures et différentes vitesses de balayage du champ.

#### 4.5.2 Susceptibilité magnétique des plots de Co/Au(11,12,12)

Nous avons mesuré la susceptibilité dynamique du système Au/Co(1 MC)/Au(11,12,12) en utilisant un champ alternatif d'amplitude 200 Oe et de fréquence  $\omega = 10$  Hz. Nous utilisons une détection synchrone calée sur la fréquence du champ pour mesurer les susceptibilités  $\chi'(T)$  et  $\chi''(T)$  en fonction de la température. La partie réelle  $\chi'$  de la susceptibilité est mesurée en phase avec le champ<sup>2</sup> alors que la partie imaginaire  $\chi''$  de la susceptibilité est mesurée en quadrature avec le champ.

La figure 4.13 montre les résultats des mesures de  $\chi'(T)$  et  $\chi''(T)$ . On voit clairement qu'il existe une distribution d'anisotropie qui étale la transition superparamagnétique. On peut estimer que la température de blocage des îlots est autour de 40 K mais la présence de cette distribution d'anisotropie nécessite un ajustement précis des données.

En faisant l'hypothèse que le couplage dipolaire entre les plots est négligeable on peut utiliser ces mesures pour remonter à la distribution  $N(K)$  d'anisotropie des îlots. On ajuste la variation de  $\chi'(T)$  en recherchant une distribution d'énergie d'anisotropie d'îlot gaussienne. La figure 4.14 montre cette distribution et l'ajustement de la susceptibilité qu'elle permet. L'anisotropie moyenne est de 80 meV/îlot et la variance est de 30%. Dans l'hypothèse où l'anisotropie magnétique est portée par les

---

<sup>1</sup>Ces hublots subissent des contraintes mécaniques à basse température qui induisent une biréfringence parasite. Cependant, nous réalisons une mesure par réflexion différentielle polaire qui est y insensible.

<sup>2</sup>Pour régler la phase on optimise le signal détecté à la fréquence  $\omega$  à haute température ( $T > 100$  K).

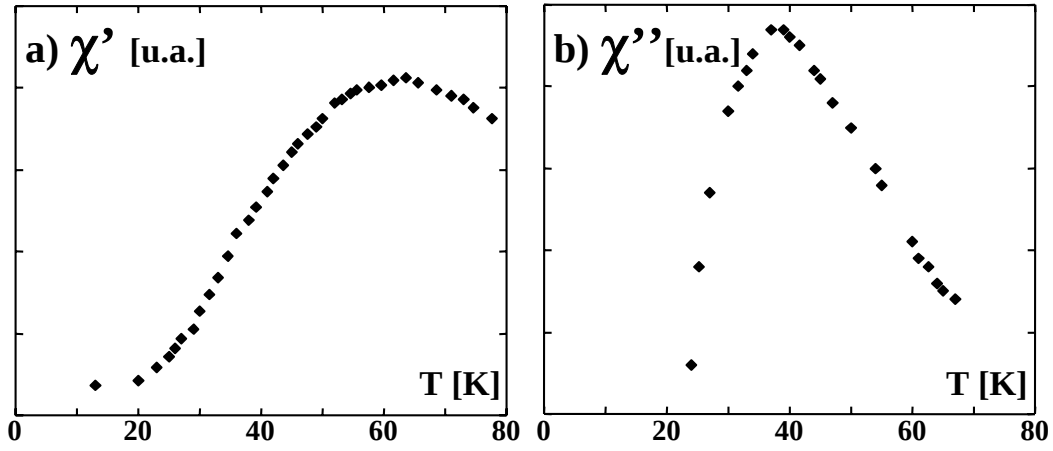


FIG. 4.13: Courbes de susceptibilités mesurées sur  $\text{Au/Co}(1\text{ MC})/\text{Au}(11,12,12)$  avec un champ d'amplitude 200 Oe et de fréquence  $\omega=10\text{ Hz}$ . La mesure est faite en température croissante. a) Signal en phase, partie réelle de la susceptibilité :  $\chi'$ . b) Signal hors phase, partie imaginaire de la susceptibilité :  $\chi''$ .

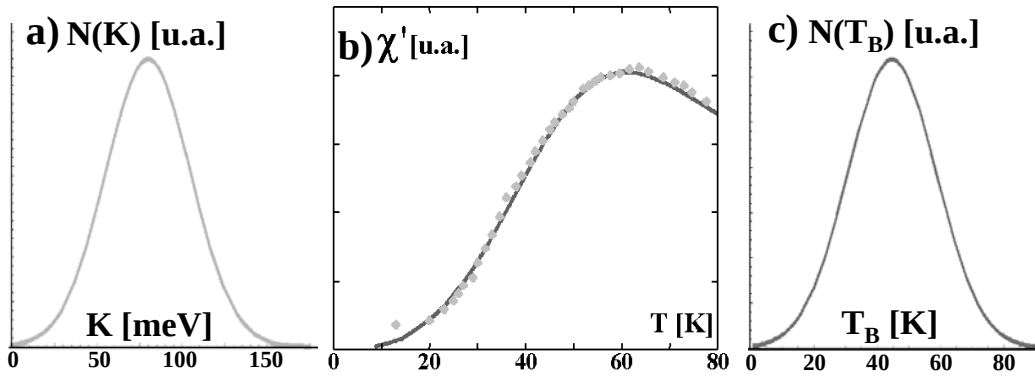


FIG. 4.14: a) Distribution d'énergie d'anisotropie utilisée pour l'ajustement des mesures de  $\chi'(T)$ . Distribution gaussienne avec  $\overline{K}=80\text{ meV}$  et  $\sigma_K=25\text{ meV}$ . b) Ajustement de  $\chi'(T)$ . c) Distribution des températures de blocage correspondant à la distribution d'anisotropie a).

atomes de périphérie des îlots et en utilisant la taille moyenne d'îlot déduite du taux de couverture on obtient une énergie d'anisotropie de  $0,6 \pm 0,1\text{ meV/atome}$ . Cette valeur est légèrement plus faible que l'énergie d'anisotropie déterminé sur  $\text{Co/Au}(788)$  mais les deux résultats sont compatibles dans leurs barres d'erreurs. La figure 4.14.c représente la distribution de températures de blocage (d'après la relation 4.14) associée à la distribution d'anisotropie 4.14.a. La température de blocage moyenne est  $\overline{T_B}=45\text{ K}$  et la largeur à mi-hauteur de la distribution est de 35 K.

### 4.5.3 Cycles d'hystérésis des plots de Co/Au(11,12,12)

Nous avons mesuré les cycles d'hystérésis du système Au/Co(1 MC)/Au(11,12,12) à différentes températures et pour différentes vitesses de balayage du champ magnétique. Dans toute la suite le champ appliqué est un champ alternatif triangulaire d'amplitude  $\pm 3300$  Oe et de période  $t_H$  variable. Les bobines supraconductrices que nous avons utilisées ne permettent pas d'aller plus vite qu'une période  $t_H=1$  s et pour avoir un signal stable pendant la mesure nous n'avons été plus lentement que  $t_H=50$  s.

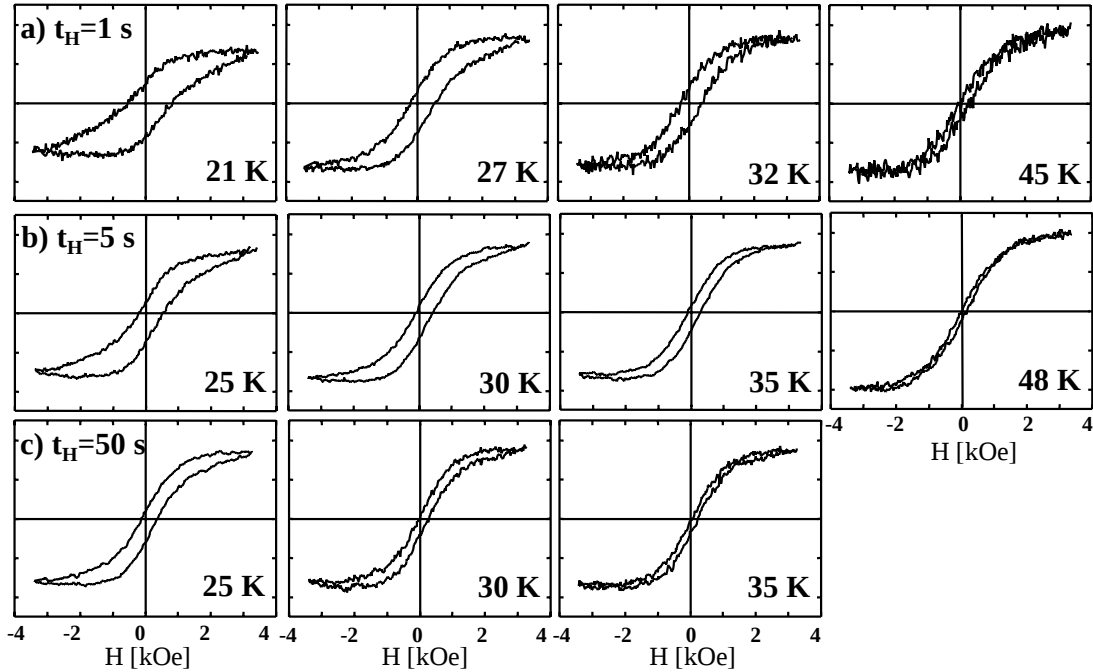


FIG. 4.15: Cycles d'hystérésis mesurés sur le système Au/Co(1 MC)/Au(11,12,12) à différentes températures et pour des périodes du champ de a)  $t_H=1$  s ; b)  $t_H=5$  s et c)  $t_H=50$  s.

La figure 4.15 montre les cycles mesurés à différentes températures pour des périodes du champ de  $t_H=1$  s,  $t_H=5$  s et  $t_H=50$  s. On voit que les cycles sont assez arrondis avec un basculement de l'aimantation peu franc. Pour une température inférieure à 25 K le champ maximum de 3300 Oe ne suffit plus à saturer le système. On remarque que la forme arrondie des cycles, même pour  $T < \overline{T}_B$ , a pour conséquence l'observation d'une aimantation à rémanence très faible, de l'ordre de 25% de l'aimantation à saturation pour  $t_H=5$  s et  $T=25$  K. Cela signifie que les îlots normalement bloqués ont quand même tendance à basculer en champ nul. Une des explications possibles de cette observation est qu'il existe un couplage dipolaire important entre les îlots. Avant le basculement de l'aimantation les îlots ressentent

alors un champ dipolaire qui s'ajoute au champ extérieur et qui entraîne un basculement prématuré des îlots (les plus petits d'abord).

Des cycles d'hystérésis mesurés avec  $t_H=5$  s nous avons extrait les pentes à l'origine pour reconstruire la courbe de susceptibilité  $\chi'(T)$ . La figure 4.16 montre cette courbe. Si l'on souhaite comparer cette courbe à celle de la figure 4.13.a on doit calculer la fréquence correspondante. Comme nous l'avons remarqué plus haut nous pouvons faire cette correspondance en estimant le temps qui correspond à l'exploration de la zone de variation de l'aimantation. Pour cela on extrapole le régime linéaire jusqu'à la saturation. Les cycles de la figure 4.15 permettent d'estimer que ce champ est de 1500 Oe ce qui correspond à une fréquence<sup>1</sup>  $\omega = \frac{3300}{1500 \times 5} \simeq 0,45$  Hz. Si l'on calcule la courbe de susceptibilité pour la distribution d'anisotropie de la figure 4.14.a avec cette fréquence on obtient une courbe, représentée en pointillés sur la figure 4.16, qui ne reproduit pas du tout les résultats.

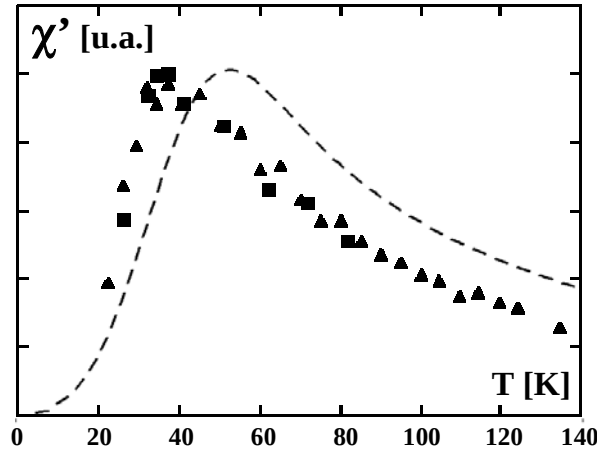


FIG. 4.16: Courbe de susceptibilité issue des pentes à l'origine des cycles d'hystérésis mesurés avec  $t_H=5$  s. La fréquence correspondante est  $\omega=0,45$  Hz. En pointillés est représenté le calcul de la susceptibilité pour une distribution d'anisotropie semblable à celle de la figure 4.14.a.

Expérimentalement, on trouve que les deux courbes de susceptibilité coïncide avec un rapport des températures  $T(10 \text{ Hz}) \approx 1,6 \ T(0,45 \text{ Hz})$ . Si l'on veut expliquer les deux courbes de susceptibilité sans faire d'hypothèse sur l'anisotropie des îlots on écrit donc  $\ln(0,45 \ \tau_0) = 1,6 \ln(10 \ \tau_0)$  et on obtient  $\tau_0 \simeq 5,7 \cdot 10^{-4}$  s (et  $\overline{K} \approx 20$  meV). Ce temps de relaxation correspond à une fréquence d'essai de  $\nu_0 \approx 1800$  Hz complètement farfelue.

---

<sup>1</sup>Avec cette méthode il est clair que tous les cycles enregistrés avec une vitesse de balayage du champ constante ne correspondent pas à une fréquence constante. Nous oublions volontairement cette subtilité.

Finalement, cette comparaison entre deux mesures de susceptibilité à deux fréquences différentes ne nous permet pas d'estimer une valeur de  $\tau_0$  mais plutôt de mettre en défaut l'hypothèse d'îlots sans interaction que nous avons faite pour ajuster ces courbes et que l'observation des cycles d'hystérésis avait déjà remise en cause.

## 4.6 Conclusions et perspectives

Nous avons clairement illustré dans ce chapitre la pertinence et l'intérêt de l'utilisation de systèmes auto-organisés pour l'étude des propriétés magnétiques des nano-structures. La croissance auto-organisée des plots de cobalt sur les surfaces vicinales de Au(111) nous a permis d'obtenir un réseau de plots monodisperses adapté à une étude magnéto-optique. Dans le cas de Co/Au(788), la très faible dispersion de l'énergie d'anisotropie et le couplage dipolaire négligeable permettent d'interpréter la réponse magnétique de l'assemblée comme celle d'une particule unique. Pour Co/Au(11,12,12) les résultats montrent que le couplage dipolaire et la largeur de la distribution ne permettent pas une telle interprétation.

Il reste bien évidemment de nombreuses études à mener sur le magnétisme des nano-structures. Effectuer des mesures couplées en température et en fréquence sur un système de particules très faiblement couplées devrait permettre d'étudier le temps de relaxation  $\tau_0$ . D'un point de vue plus technologique, l'augmentation de l'anisotropie des nano-structures est un défi important puisque la stabilité de l'orientation du moment magnétique est une donnée cruciale pour l'application au stockage de l'information. Une piste intéressante consiste à co-déposer plusieurs métaux dont un magnétique dans le but de faire des îlots d'alliage. Le métal magnétique polarise alors le métal non magnétique ce qui permet d'avoir un ordre ferromagnétique au sein de l'îlot. De plus, on s'attend à observer des effets d'exaltation de l'anisotropie du à la faible coordinence entre atomes magnétiques. Enfin, sur des systèmes de nano-structures avec un fort couplage dipolaire il est envisageable d'étudier l'établissement d'un ordre anti-ferromagnétique au sein de l'assemblée de nano-plots par diffraction magnétique.

## Chapitre 5

# Modifications structurales induites par les marches dans les films de cobalt sur les surfaces vicinales de Au(111)

### 5.1 Introduction

Nous allons ici nous intéresser à la structure cristallographique des films ultraminces de cobalt sur les substrats vicinaux d'or décrits dans le premier chapitre. L'étude de l'influence de la présence de marches atomiques sur un substrat lorsque l'on y dépose un film ultramine est capitale. Les marches sont les défauts les plus répandus en surface et il est nécessaire de bien comprendre leurs effets sur la croissance. Les surfaces vicinales sont des substrats dont on contrôle parfaitement la densité de marches atomiques et sont donc adaptés à ce type d'étude. Nous allons voir que le caractère rugueux des interfaces vicinales est une perturbation importante pour la croissance et qu'elle peut induire des modifications structurales au sein du film. Cet effet est d'autant plus intéressant à étudier que le cobalt est connu pour présenter, parallèlement à sa structure hexagonale compacte (hc) de volume, une forme cubique à faces centrées (cfc) proche en énergie.

#### **Le cobalt et les fautes d'empilement**

La propension du cobalt à présenter une structure cfc induit bien souvent des fautes cristallographiques de son empilement ABAB... qui produisent des portions locales d'empilement ABCABC... Cet effet est bien connu et a été étudié à plusieurs reprises. La température de croissance est un des paramètres déterminant dans le type d'empilement adopté par le cobalt [*de Gronckel et al.*, 1994]. Pour le système Co/Cu(111) on sait que le cobalt commence à croître en sites cfc puis l'empilement se poursuit avec des fautes avant de retrouver une structure hc [*Tonner et al.*, 1993;

[Pizzini et al., 1993]. Sur le même système il a été montré que le dépôt d'une couche de passivation de cuivre peut induire une modification de la structure du film de cobalt et stabiliser un empilement cfc [Rath et al., 1997]. Une étude montre aussi que le dépôt ultra-rapide du cobalt permet de supprimer les fautes et d'obtenir une croissance couche par couche d'un film de cobalt cfc afin de mieux contrôler les propriétés magnétiques du système [Zheng et al., 1999]. Sur le système Co/Au, on peut citer les études sur multi-couches [Jomni et al., 2000; Ayadi et al., 2002] ou sur des dépôts électrolytiques [Bubendorff et al., 2000]. Plus généralement, les conséquences de ces modifications structurales sur le magnétisme ont été abondamment étudiées. Citons les études concernant les propriétés des films magnétiques dédiés à l'enregistrement de données [Dova et al., 1999; Holloway et Laidler, 2000; Holloway et al., 2001; Bian et al., 2001; Lu et al., 2002; Takahashi et al., 2002] et les propriétés magnéto-résistives des multi-couches [Dang et al., 1993].

Afin de déterminer précisément la structure des films de cobalt nous avons effectué des mesures de diffraction des rayons X en incidence rasante. Nous présentons tout d'abord l'étude des caractéristiques structurales des films de cobalt sur la surface dense d'or (111) que nous avons mené pour établir une référence avant d'étudier les films de cobalt sur les substrats vicinaux. Ensuite, nous présentons les résultats des mesures effectuées sur des film ultraminces d'épaisseur variables sur différents substrats vicinaux d'or avec des densités de marches variables.

## 5.2 La structure hexagonale des films de cobalt sur Au(111)

Le système Co/Au(111) est un système modèle d'un atome petit déposé sur un gros avec un désaccord de paramètre de maille massif très important ( $d_{Co} = 2,51 \text{ \AA}$ ,  $d_{Au} = 2,88 \text{ \AA}$  et  $\epsilon = \frac{|d_{Co}-d_{Au}|}{d_{Au}} = 13 \%$ ). Les énergies de surface du cobalt (0001) et de l'or (111) déterminées expérimentalement sont, respectivement de  $2550 \text{ mJ.m}^{-2}$  et  $1500 \text{ mJ.m}^{-2}$  [Vitos et al., 1998]. Ces caractéristiques thermodynamiques sont telles que l'on peut prédire un mode de croissance tridimensionnel pour Co/Au(111). Dans un premier temps nous avons donc mené une étude STM pour caractériser la topographie des films de cobalt sur Au(111).

Lorsque l'on dépose un matériau A sur un substrat B et que ces deux matériaux présentent un fort désaccord de paramètre de maille on s'attend à deux types d'effets. Soit le matériau déposé présente le même empilement qu'à l'état de volume avec un paramètre de maille différent, soit le type d'empilement cristallographique est modifié. La croissance de Co sur Au(111) est envisageable avec deux empilements cristallographiques différents car la surface (111) est compatible avec une structure cfc et avec une structure hc. La forme cubique à faces centrées du cobalt est connue pour Co/Cu(100) ainsi que dans le cas de petits amas et pour des dépôts effectués

dans conditions de croissance particulières [Bubendorff *et al.*, 2000; Sabiryanov *et al.*, 2003]. Une autre question concerne l'accommodation du paramètre de maille du cobalt sur celui de l'or qui peut être réalisée, soit par pseudomorphisme (le cobalt épouse alors la maille de l'or), soit par des défauts étendus (dislocations) localisés à l'interface.

Même s'il est bien admis que le cobalt présente une structure hexagonale compacte lorsqu'il est déposé sur Au(111) [Chappert *et al.*, 1986a; Bruno, 1989a; Marsot, 1999; Marsot *et al.*, 1999], les différents résultats trouvés dans la littérature ne permettent ni de conclure sur un éventuel pseudomorphisme des premières couches de cobalt, ni de connaître de manière précise les relaxations de ces couches. Ces caractéristiques de la couche de cobalt déposée sur Au(111) sont fondamentales dans la compréhension ultérieure des propriétés magnétiques du système. Nous avons donc mené une étude par diffraction des rayons X en incidence rasante afin de préciser la cristallographie des films de Co/Au(111).

### 5.2.1 Etude topographique par microscopie à effet tunnel

Nous nous intéressons ici à des films continus qui présentent une percolation totale. Dans le cas de Co/Au(111) ce stade est atteint pour un taux de couverture supérieur à 2 MC [Voigtländer *et al.*, 1991b; Gentner *et al.*, 1996] .

Les images de microscopie à effet tunnel sur des films continus de plusieurs monocouches de cobalt sur la surface Au(111) montrent une grande rugosité. La figure 5.1.a montre une vue tridimensionnelle d'un dépôt de 4 MC de cobalt sur Au(111). Si l'on trace les courbes de niveaux qui correspondent à la distance inter-plans (0001) pour le cobalt (cf. figure 5.1.b) on observe que la rugosité est telle que l'on distingue 7 niveaux atomiques (cf. le profil 1 de la figure 5.1.c). On est donc certain que ce film de cobalt ne recouvre pas totalement la surface et qu'il existe des "puits" au fond desquels le substrat d'or est nu. On remarque d'ailleurs qu'il existe des "gorges" ou "canyons" qui sont un souvenir de la croissance organisée du régime submonocouche. Ces gorges sont une réminiscence de la coalescence des rangées de plots.

On voit aussi très bien la rugosité de surface des couches de cobalt lorsque l'on traite l'image pour remettre tous les plans atomiques au même niveau. Sur la figure 5.1.d, des points blancs sont particulièrement visibles dans la zone encadrée. Ceux-ci sont espacés d'une distance qui correspond sensiblement au désaccord de maille  $\frac{a_{Au} a_{Co}}{|a_{Au} - a_{Co}|} \approx 2 \text{ nm}$  et reflètent sans doute un effet de moiré du cobalt sur l'or. Toujours sur la figure 5.1.d on peut noter qu'en périphérie des îlots (celui repéré par la flèche par exemple) on observe des lignes claires qui correspondent sans doute à des déplacements hors sites dus à des relaxations locales.

Cette topographie très rugueuse soulève la question de l'inter-diffusion entre le cobalt et l'or. Ce phénomène a déjà été étudié [Tolkes *et al.*, 1997; Padovani *et al.*, 1999b; Gentner *et al.*, 1996] et il a été démontré qu'il devient efficace à

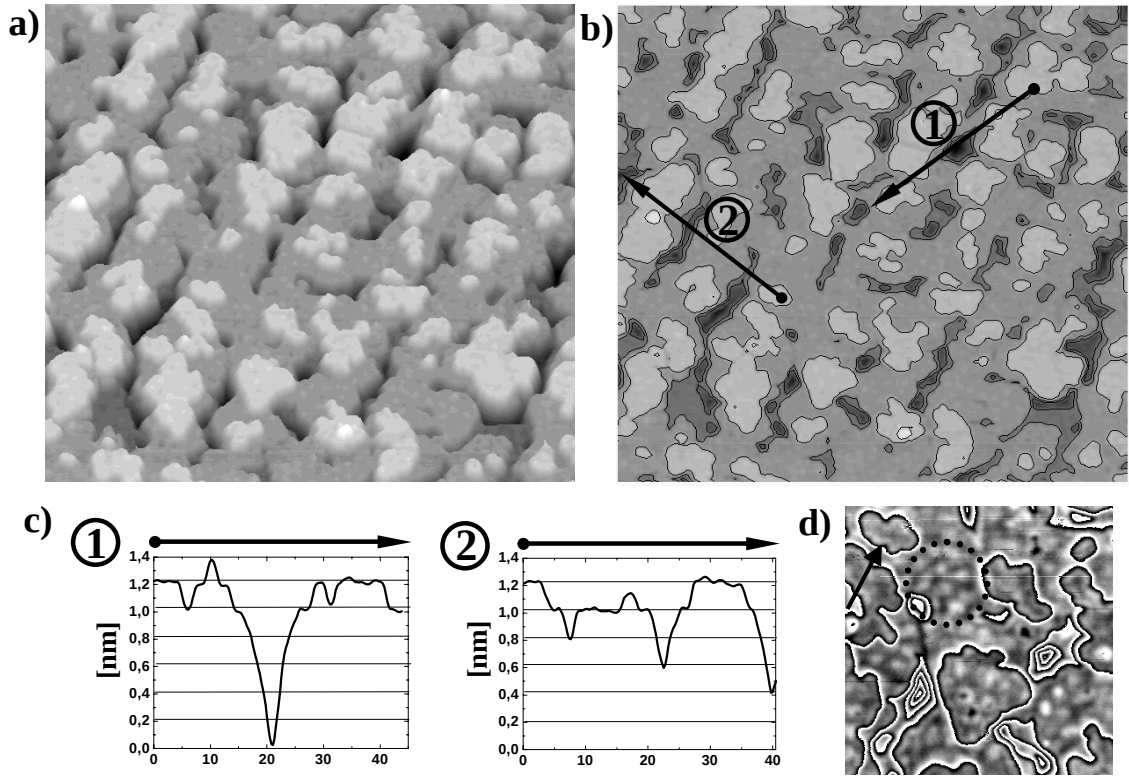


FIG. 5.1: a) Image STM ( $100 \text{ nm} \times 100 \text{ nm}$ ) représentée en 3D d'un dépôt de 4 MC de cobalt sur Au(111). b) Même image qu'en a) représentée en 2D, vue du dessus. Les lignes noires sont des lignes de niveaux qui délimitent les plans de cobalt. c) Profils correspondant à la topographie relevée le long des flèches numérotées sur la figure a). d) Image STM ( $30 \text{ nm} \times 30 \text{ nm}$ ) d'un dépôt de 4 MC de cobalt sur Au(111) traitée de manière à mettre au même niveau les différents plans atomiques de cobalt.

relativement basse température ( $T \simeq 400 \text{ K}$ ). Les images de microscopie à effet tunnel sont délicates à exploiter pour effectuer des mesures précises des hauteurs de marches atomiques. Il est donc impossible de conclure sur l'éventuel effet de mélange dans le système. On voit cependant sur les profils de la figure 5.1 une très nette correspondance entre les différents niveaux atomiques et un nombre entier de distance inter-plans du cobalt. Pour cette raison nous pensons qu'il n'y a pas d'inter-diffusion à température ambiante.

Lorsque l'on effectue un dépôt plus épais la rugosité ne varie pas dramatiquement et l'on observe toujours une demi douzaine de niveaux atomiques pour le dépôt de 10 MC montré sur la figure 5.2.a.

Expérimentalement, nous sommes obligés de recouvrir le film de cobalt d'une couche de 8 MC d'or pour le protéger avant de sortir l'échantillon à l'air lors des mesures magnétiques ex-situ. La figure 5.2.b. montre une image STM de cette couche

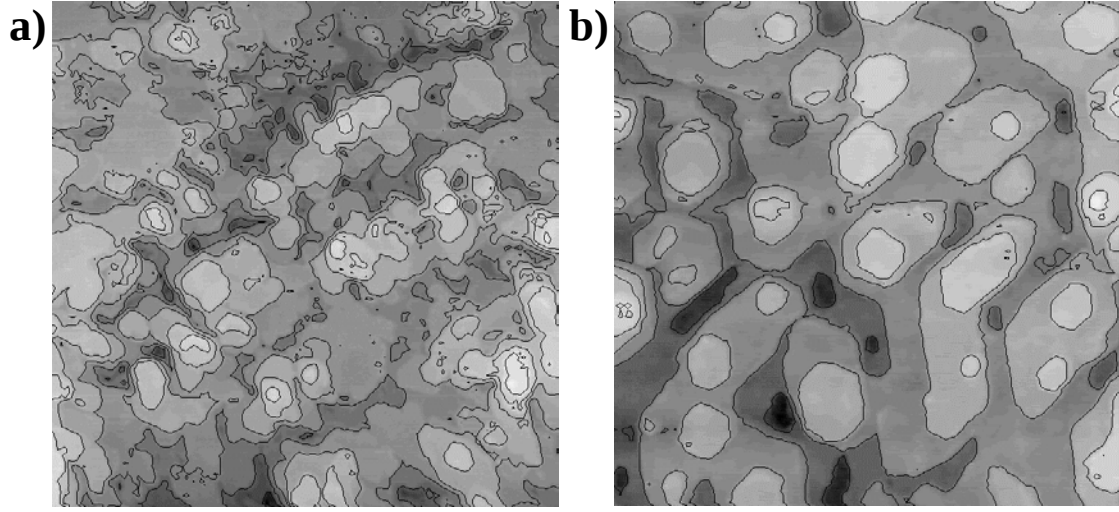


FIG. 5.2: a) Image STM ( $150 \text{ nm} \times 150 \text{ nm}$ ) d'un dépôt de 10 MC de cobalt sur Au(111). Les lignes noires sont des lignes de niveaux qui délimitent les plans de cobalt. b) Image STM ( $150 \text{ nm} \times 150 \text{ nm}$ ) d'un dépôt de 8 MC d'or sur le dépôt de cobalt imagé en a).

d'or de passivation on voit toujours 6 ou 7 niveaux atomiques ce qui indique que le cobalt est bien protégé et que le risque d'oxydation du film est prévenu.

On peut remarquer que la couche d'or présente des îlots assez anisotropes et facetés qui indiquent un ordre cristallin de symétrie trois dans la couche. Cette anisotropie n'est pas présente pour les îlots de cobalt ce qui peut être un indice d'une plus grande isotropie cristallographique ou d'une plus faible énergie de cran. Il faut cependant souligner que les clichés de diffraction d'électrons lents effectués sur ce type de film révèle une croissance pseudomorphique avec des axes denses de directions conservées [Voigtländer et al., 1991b; Gentner et al., 1996] même si la largeur des taches de diffraction ne permet pas de mesurer des effets de relaxations.

## 5.2.2 Détermination de la structure des films Co/Au(111) par GIXD

Pour déterminer précisément l'empilement cristallographique du cobalt sur la surface Au(111) nous avons utilisé la diffraction des rayons X en incidence rasante (GIXD pour Grazing Incidence X-ray Diffraction). Avant de détailler les résultats de ces mesures nous rappelons le réseau réciproque d'une surface (111) qui va nous servir de base de travail pour toutes nos expériences de diffraction de surface.

## Réseau réciproque de la surface Au(111)

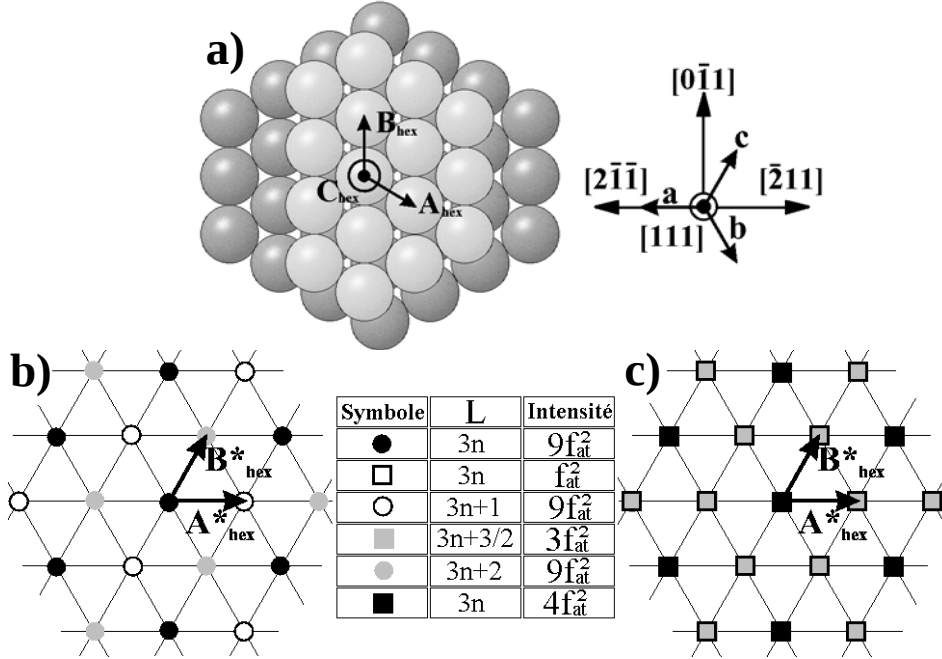


FIG. 5.3: a) Surface (111) où sont représentés les vecteurs du réseau direct. Le trièdre  $(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$  n'est pas dans le plan de la figure et on n'en représente ici qu'une projection. Les angles consécutifs entre ces trois vecteurs sont  $\pi/2$ . b) Schéma du réseau réciproque associé et répartition de l'intensité pour un cristal fcc. c) Répartition de l'intensité pour un cristal hcp. Le tableau donne la légende des deux schémas :  $n$  est un nombre entier et  $f_{at}$  est le facteur de diffusion atomique.

L'or cristallise dans des conditions usuelles de température et de pression sous la phase cubique à faces centrées. Soient  $\vec{a}$ ,  $\vec{b}$  et  $\vec{c}$  les vecteurs qui définissent la maille usuelle d'un réseau fcc (maille multiple). Une maille hexagonale plus agréable pour travailler<sup>1</sup> est  $\vec{A}_{hex} = \frac{-\vec{a}+\vec{b}}{2}$ ,  $\vec{B}_{hex} = \frac{-\vec{b}+\vec{c}}{2}$  et  $\vec{C}_{hex} = \vec{a} + \vec{b} + \vec{c}$  où les deux premiers vecteurs sont dans le plan de la surface (111) et le dernier est perpendiculaire à ce plan. Cette maille est représentée sur la figure 5.3.a. Un point du réseau réciproque est alors repéré par le vecteur  $H\vec{A}_{hex}^* + K\vec{B}_{hex}^* + L\vec{C}_{hex}^*$  avec  $\vec{A}_{hex}^*$ ,  $\vec{B}_{hex}^*$  et  $\vec{C}_{hex}^*$  les vecteurs de base de l'espace réciproque donnés par  $\vec{A}_{hex}^* \cdot \vec{A}_{hex} = 2\pi$  (idem pour  $\vec{B}_{hex}^*$  et  $\vec{C}_{hex}^*$ ).

<sup>1</sup>Cette maille hexagonale va nous servir pour nous repérer dans l'espace réel et dans l'espace réciproque lors des mesures de diffraction mais nous conservons la maille cubique à faces centrées habituelles pour nommer les plans et les directions cristallographiques. Ainsi le plan (111) ou la rangée  $[211]$  sont nommés ainsi par rapport à la maille fcc.

Le motif de diffraction propre au type d'empilement cristallin impose des règles d'extinction. Dans le cas d'un cristal cubique à faces centrées comme l'or, les 3 atomes de la maille sont situés en  $(0,0,0)$ ,  $(\frac{1}{3}, \frac{2}{3}, \frac{1}{3})$  et  $(\frac{2}{3}, \frac{1}{3}, \frac{2}{3})$ . Si l'on nomme  $f_{at}$  le facteur de diffusion atomique, on obtient le facteur de structure :

$$F_{cfc}(H, K, L) = f_{at} \left( 1 + e^{\frac{2i\pi}{3}(2H+K+L)} + e^{\frac{2i\pi}{3}(H+2K+2L)} \right) \quad (5.1)$$

Les pics de Bragg correspondent alors à la condition  $2H + K + L = 3n$  où  $H$ ,  $K$ ,  $L$  et  $n$  sont des entiers. La répartition d'intensité qui en découle est résumée et schématisée sur la figure 5.3.b.

Le cobalt volumique cristallise avec un empilement hexagonal compact et nous serons amenés par la suite à conclure sur le type d'empilement cristallin adopté par le cobalt. Nous pouvons anticiper cette distinction en regardant quelle répartition d'intensité donne la diffraction d'un cristal hexagonal compact<sup>1</sup> dans la base  $(\vec{A}_{hex}^*, \vec{B}_{hex}^*, \vec{C}_{hex}^*)$ . On utilise alors une base intermédiaire  $(\vec{A}_{hex}, \vec{B}_{hex}, \vec{C}'_{hex} = \frac{2}{3}\vec{C}_{hex})$  dans laquelle les 2 atomes de la maille sont situés en  $(0,0,0)$  et  $(\frac{1}{3}, \frac{2}{3}, \frac{1}{2})$ . Le facteur de structure est donné en fonction des indices entiers  $H$ ,  $K$  et  $L'$  mais on peut aussi l'exprimer en fonction des indices  $H$ ,  $K$  et  $L$ . On obtient :

$$F_{hc}(H, K, L') = f_{at} \left( 1 + e^{2i\pi(\frac{H}{3} + \frac{2K}{3} + \frac{L'}{2})} \right)$$

soit  $F_{hc}(H, K, L) = f_{at} \left( 1 + e^{\frac{2i\pi}{3}(H+2K+L)} \right)$  avec  $L' = \frac{2}{3}L$  (5.2)

L'indice  $L$  peut prendre ici des valeurs demi-entières. Cet effet est la conséquence de la différence de périodicité des mailles cfc (3 plans atomiques selon  $[111]$ ) et hc (2 plans atomiques selon  $[0001]$ ). La répartition d'intensité est plus complexe que dans le cas du cristal cfc puisqu'il existe des modulations. La localisation et l'intensité des taches diffractées sont représentées sur la figure 5.3.c.

Par la suite nous allons étudier des systèmes moins symétriques que la surface  $(111)$ . En effet, avec un substrat vicinal la direction de coupe brise la symétrie de la surface. Par convention nous avons choisi de fixer le vecteur  $\vec{B}_{hex}$  parallèlement aux bords de marche. L'axe de zone est alors orienté suivant le vecteur  $\vec{B}_{hex}$ . Dans l'espace réciproque, la direction de  $H$  sera donc perpendiculaire aux bords de marche. Nous allons étudier des systèmes vicinaux présentant les deux types de marches  $\{111\}$  et  $\{100\}$  correspondant aux deux azimuts  $[\bar{2}11]$  et  $[2\bar{1}\bar{1}]$ . Avec notre convention, un H-scan dans le sens des  $H$  croissants se fait en descendant l'escalier vicinal pour une surface à marches  $\{111\}$  alors qu'il se fait en montant l'escalier vicinal pour une surface à marches  $\{100\}$ .

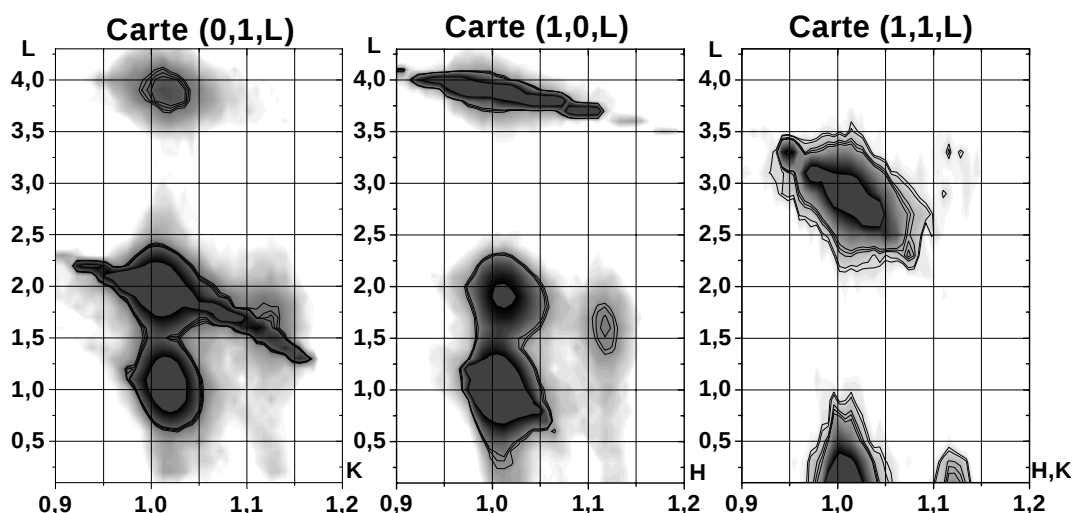


FIG. 5.4: Cartes d'intensité mesurées dans les régions  $(0,1,L)$ ,  $(1,0,L)$  et  $(1,1,L)$  de l'espace réciproque du système  $\text{Au}(8 \text{ MC})/\text{Co}(4 \text{ MC})/\text{Au}(111)$ . Les maximums sont coupés et quelques lignes de niveaux sont tracées pour faciliter la localisation des pics de diffraction.

## Résultats

La figure 5.4 présente trois cartes d'intensité mesurées en trois zones de l'espace réciproque du système  $\text{Au}(8 \text{ MC})/\text{Co}(4 \text{ MC})/\text{Au}(111)$ . Ce système en sandwich est composé de trois parties dont on repère clairement les signatures sur les cartes d'intensité diffractée. On observe tout d'abord les pics de Bragg du substrat d'or à des positions cohérentes avec celles schématisées dans la figure 5.3. Ces pics intenses ont été tronqués et malgré leur finesse leur base apparaît assez large (zones hachurées) sur la figure 5.4.

Sur les deux premières cartes on remarque des pics supplémentaires d'intensités plus faibles et situés approximativement en  $(0,1,1)$  et  $(1,0,2)$ . Ces taches correspondent au signal d'un cristal d'or maclé<sup>1</sup> et légèrement déformé. Ce signal est dû à la couche de protection d'or<sup>2</sup>. Au sein de cette couche la tendance est à la contraction et la légère déformation du réseau d'or se traduit par un décalage dans le plan de moins de 2% et un décalage de la distance inter-plans du même ordre de grandeur. Il est probable que cette couche d'or ne soit pas monocristalline et qu'elle présente

<sup>1</sup>Nous considérons ici un cristal hc construit avec la même distance inter-atomique que le cristal cfc.

<sup>2</sup>On appelle cfc maclé un empilement de type ACBACB comparé à un empilement cfc ABCABC.

<sup>2</sup>Nous verrons au paragraphe 5.4.1 que ces taches disparaissent en l'absence de couche d'or de passivation et que aucune modification de la structure de la couche de cobalt n'est mesurée lorsque l'on compare les résultats avec ou sans cette couche de protection.

les deux types d'empilement cfc, contribuant ainsi à l'intensité diffractée en (0,1,2) et (1,0,1). Sur la troisième carte, H=K et on ne distingue pas les deux empilements ABCABC et ACBACB. Les signaux du substrat d'or et de la couche de passivation sont donc confondus.

Du fait de son plus faible numéro atomique le cobalt possède un facteur de diffusion plus faible que celui de l'or. Ajouté à la faible quantité de cobalt présente dans le système on s'attend à ne détecter qu'un faible signal pour le film ultramince étudié ici. On voit cependant très clairement, sur les cartes de la figure 5.4, des taches d'intensité dues au film de cobalt. Les coordonnées de ces pics de diffraction de la couche de cobalt sont données dans le tableau 5.1.

| autour de | (0,1,L) | (1,0,L) | (1,1,L)   |
|-----------|---------|---------|-----------|
| H         | 0       | 1,12    | 1,12      |
| K         | 1,12    | 0       | 1,12      |
| L         | 1,65    | 1,65    | 0 et 3,30 |

TAB. 5.1: *Localisation dans l'espace réciproque des taches d'intensité diffractée par le film ultramince de cobalt du sandwich Au(8 MC)/Co(4 MC)/Au(111).*

Ces taches nous renseignent sur plusieurs points concernant la structure du film :

- Les deux hypothèses d'empilement possible pour le cobalt correspondent à une croissance cfc ou hc avec des relaxations de paramètre de maille. Afin de distinguer simplement les deux types de réseau on peut utiliser la différence de symétrie qu'ils présentent. Un cristal hc possède une symétrie  $C_6$  le long de son axe [0001] alors qu'un cristal cfc possède une symétrie  $C_3$  le long de son axe [111]. Si la répartition d'intensité diffractée dans deux régions du réseau réciproque équivalentes par une rotation de  $\frac{\pi}{3}$  autour de l'axe  $C_{hex}^*$  est la même c'est la signature d'une symétrie hexagonale sinon c'est plutôt le signe d'une symétrie cfc. Dans le cas présent la symétrie de  $\frac{\pi}{6}$  qui se traduit par l'équivalence des taches autour de (1,0,L) et (0,1,L) indique une symétrie hexagonale.

- Les positions des taches de diffraction résumées dans le tableau 5.1 sont en accord global<sup>1</sup> avec la répartition de l'intensité diffractée par un cristal hexagonal compact schématisée sur la figure 5.3.c. Ajouté à la remarque de symétrie précédente ce point est donc une preuve de la structure hexagonale compacte du film de cobalt.

- La relaxation du paramètre de cobalt dans le plan est de 12%. Nous appelons relaxation la déformation de la maille de Co par rapport à la maille du substrat.

---

<sup>1</sup>Les petits écarts des valeurs des indices des taches de diffraction proviennent de relaxations de la couche de cobalt que nous discutons dans le point suivant

cette valeur est à rapprocher du désaccord de maille entre Co et Au qui est de 14%. Le paramètre de maille moyen dans le plan du film de cobalt est donné par la relation :  $\frac{H_{Au}}{H_{Co}} = \frac{d_{Co}^{\parallel}}{d_{Au}^{\parallel}}$  ce qui donne  $d_{Co}^{\parallel} = 2,57 \text{ \AA}$  et qui correspond à une dilatation de plus de 2 % par rapport à la maille du cobalt massif.

- Le paramètre hors plan du cobalt est donné par la relation :  $\frac{\Delta L_{Au}}{\Delta L_{Co}} = \frac{d_{Co}^{\perp}}{d_{Au}^{\perp}}$ . Dans le cas présent on obtient  $d_{Co}^{\perp} = 2,14 \text{ \AA}$  ce qui correspond à une dilatation de plus de 4 % par rapport à la distance inter-plans dans le cobalt massif.

- Ces deux derniers points nous permettent de calculer le rapport  $c/a$  de l'empilement du cobalt dans le film. Pour un empilement hc idéal ce rapport vaut  $c/a = \sqrt{8/3} \approx 1,633$ , pour le cobalt massif il vaut  $c/a = 1,622$  et dans le cas présent il vaut  $c/a \approx 1,663$ . Comme la dilatation du cobalt au sein du film est plus importante suivant l'axe  $c$  ([0001]) que dans le plan le rapport  $c/a$  est plus grand que sa valeur idéale alors qu'il est plus faible dans le cobalt massif.

## Conclusion

Un film de 4 couches de cobalt déposé sur la surface Au(111) un film de 4 couches de cobalt possède la structure hexagonale compacte du cobalt volumique avec des relaxations de 2% pour la distance inter-atomique dans le plan et de 4% pour la distance inter-plans normale au film. Ces relaxations sont assez faibles comparées à la différence de paramètre de maille entre l'or et le cobalt (14%).

## 5.3 Propriétés structurales des films de Co sur Au(788)

Nous avons présenté le substrat Au(788) dans la partie précédente, rappelons qu'il possède des terrasses d'une largeur de 16 rangées atomiques séparées par des marches de type {111}. Nous allons étudier la structure d'un film de quatre monocouches de cobalt déposé sur Au(788).

### Cartes d'intensité diffractée

La figure 5.5 présente les différentes cartes d'intensité diffractée mesurées en différentes zones du réseau réciproque sur le système Au/Co(4 MC)/Au(788). Nous observons les taches de diffraction dues au substrat d'or à des positions compatibles avec le schéma de la figure 5.3. On observe de plus l'inclinaison dans le plan (H,L) des tiges de troncature autour des pics de Bragg du substrat ce qui est la signature du caractère vicinal de Au(788) (voir le chapitre 2).

Les taches de diffraction que l'on mesure aux positions caractéristiques d'un cristal cfc maclé sont dues à la couche de passivation d'or. Cette couche de protection est

polycristalline et diffracte donc de l'intensité à des positions de l'espace réciproque caractéristiques des deux empilements cfc possibles.

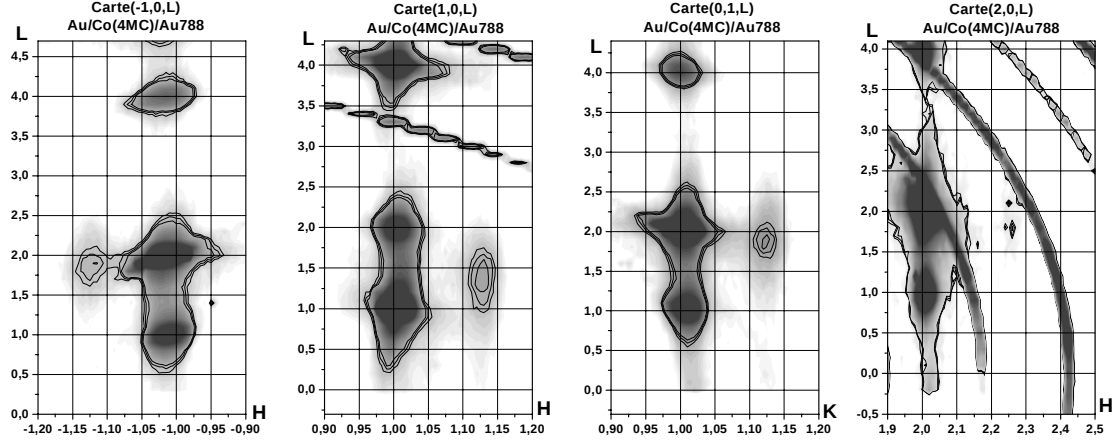


FIG. 5.5: Cartes d'intensité diffractée par  $Au/Co(4\text{ MC})/Au(788)$  dans différentes régions de l'espace réciproque.

Les positions des taches de diffraction de la couche de cobalt mesurées sur les cartes de la figure 5.5 sont résumées dans le tableau 5.2. Précisons que la détermination de ces positions est entachée d'une erreur due à l'échantillonnage de la mesure que nous pouvons estimer à  $\pm 0,01$  en  $H$  et  $K$  et à  $\pm 0,05$  en  $L$ .

La surface  $Au(788)$  est un substrat à faible densité de marche dont les terrasses contiennent un grand nombre de rangées atomiques ( $n = 16$ ) et la perturbation pour la croissance du film de cobalt est, *a priori*, faible. Malgré cela on observe sur la figure 5.5 que la symétrie d'ordre 6 caractéristique d'un cristal hexagonal compact n'est pas présente dans la répartition de l'intensité diffractée par le film de cobalt. On remarque notamment que les positions en  $L$  des taches au voisinage de  $(1,0,L)$  et  $(0,1,L)$  sont différentes.

Connaissant la forte propension du cobalt à présenter une phase cristalline cubique à faces centrées on envisage ce cas et on compare les positions du tableau 5.2 et le schéma de la figure 5.3.c. Finalement, même en considérant des relaxations du paramètre de maille, ces positions ne correspondent ni à un cristal hexagonal compact ni à un cristal cubique à faces centrées (cf. figure 5.3).

### Orientation de l'axe de croissance

Pour clarifier ces résultats on représente les taches de diffraction dans le plan  $K=0$ . On voit alors clairement que les positions en  $L$  de ces taches sont incompatibles avec un axe de croissance parallèle à l'axe  $[111]$  du substrat d'or. On applique alors une matrice de rotation qui tourne le repère de l'espace réciproque d'un angle  $\alpha$  autour du vecteur  $\vec{u}_Z^* = -\vec{A}_{hex}^* + 2\vec{B}_{hex}^*$ . Par convention, l'angle  $\alpha$  est choisi positif

| autour de       | (-1,0,L) | (0,1,L) | (1,0,L) | (2,0,L) |
|-----------------|----------|---------|---------|---------|
| $H (\pm 0, 01)$ | -1,12    | 0       | 1,13    | 2,26    |
| $K (\pm 0, 01)$ | 0        | 1,12    | 0       | 0       |
| $L (\pm 0, 05)$ | 1,87     | 1,87    | 1,40    | 1,80    |

TAB. 5.2: Localisation dans l'espace réciproque des taches d'intensité diffractée par le film ultramince de cobalt du sandwich Au(8 MC)/Co(4 MC)/Au(788).

lorsque la rotation du réseau réciproque autour du vecteur  $\vec{u}_Z^*$  se fait dans le sens négatif<sup>1</sup>. Dans ce cas les taches de diffraction qui sont fixes se déplacent relativement au réseau réciproque dans le sens inverse. Si l'on se place dans l'espace réel, cette rotation correspond à la rotation d'un angle  $\alpha$  du cristal autour de l'axe de zone  $[0\bar{1}1]$  dans le sens négatif.

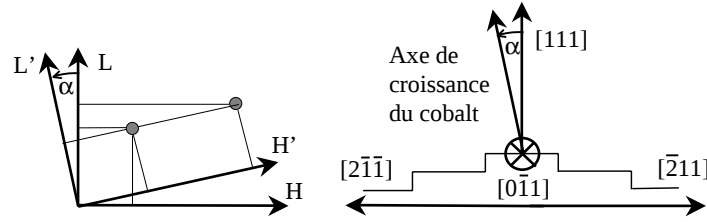


FIG. 5.6: Schéma de l'influence d'une rotation d'un angle  $\alpha$  sur le repère de l'espace réciproque et sur l'axe de croissance du film de cobalt.

Finalement, l'angle  $\alpha$  est l'angle que fait l'axe de croissance du cobalt par rapport à l'axe  $[111]$ . Il est orienté dans le sens trigonométrique lorsque l'on regarde dans la direction de l'axe de zone.

Sur la figure 5.7 sont représentées les positions des taches de diffraction dans le plan  $(H'(\alpha), L'(\alpha))$  correspondant à différentes rotations du réseau réciproque. On voit que pour aligner en  $L'$  les taches autour de  $H = -1$  et  $H = 2$  il faut appliquer une rotation d'angle  $\alpha = -0,5^\circ$ . Avec les barres d'erreur sur les positions des taches de diffraction on voit que la précision sur l'angle  $\alpha$  est de l'ordre du demi degré. Pour l'échantillon Au(8 MC)/Co(4 MC)/Au(788) on détermine donc  $\alpha_{788} = -0,5^\circ \pm 0,5^\circ$ . Dans le cas présent d'un système vicinal à marches  $\{111\}$  le fait que l'angle  $\alpha_{788}$  soit négatif nous indique que l'axe de croissance du cobalt est situé entre l'axe  $[111]$  et l'axe  $[788]$ . Nous verrons par la suite comment interpréter plus précisément la valeur de cet angle de rotation.

<sup>1</sup>Au sens de la règle du tire-bouchon

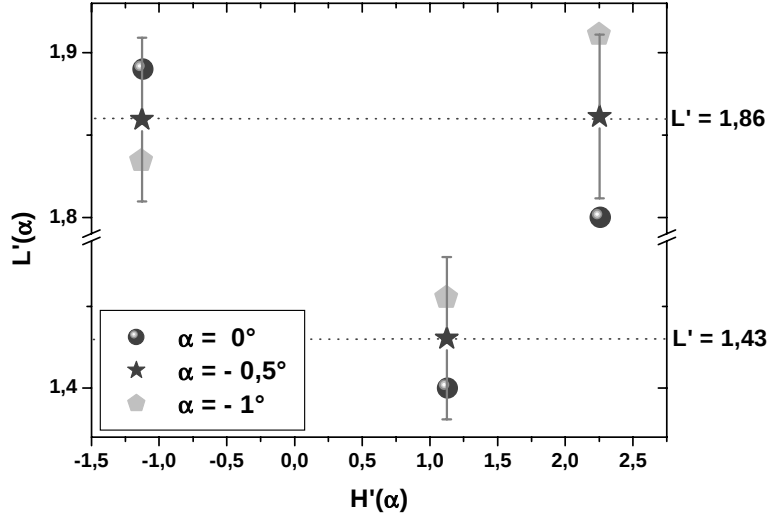


FIG. 5.7: Positions des taches de diffraction de la couche de cobalt du système  $Au(8 \text{ MC})/Co(4 \text{ MC})/Au(788)$  dans le plan  $(H'(\alpha), L'(\alpha))$ .

## Relaxations

Le tableau suivant donne les positions des taches de diffraction du cobalt en  $K = 0$  dans le plan  $(H'(\alpha), L'(\alpha))$  tourné de l'angle  $\alpha_{788} = -0,5^\circ$ .

|                  | $(-1,0,L)$ | $(1,0,L)$ | $(2,0,L)$ |
|------------------|------------|-----------|-----------|
| $H'(-0,5^\circ)$ | -1,125     | 1,125     | 2,255     |
| $L'(-0,5^\circ)$ | 1,86       | 1,43      | 1,86      |

TAB. 5.3: Positions des taches de diffraction du cobalt en  $K = 0$  dans le plan  $(H'(\alpha), L'(\alpha))$  tourné de l'angle  $\alpha_{788} = -0,5^\circ$  pour un film de 4 MC de Co sur Au(788).

La relaxation<sup>1</sup> du paramètre de cobalt dans le plan est de  $12,5 \pm 0,5\%$ . Le paramètre de maille moyen dans le plan du film de cobalt est donné par la relation :  $\frac{H_{Au}}{H_{Co}} = \frac{d_{Co}^{\parallel}}{d_{Au}^{\parallel}}$  ce qui donne  $d_{Co}^{\parallel} = 2,56 \pm 0,01 \text{ \AA}$  et qui correspond à une dilatation de 2 % par rapport à la maille du cobalt massif.

Le paramètre hors plan du cobalt est donné par la relation :  $\frac{\Delta L_{Au}}{\Delta L_{Co}} = \frac{d_{Co}^{\perp}}{d_{Au}^{\perp}}$ . Dans le cas présent on n'a pas accès à  $\Delta L_{Co}$  et on ne peut donc pas obtenir la valeur de  $d_{Co}^{\perp}$ . C'est au voisinage de (11L) que la mesure de l'intensité diffractée per-

<sup>1</sup>Rappelons que nous appelons relaxation la déformation de la maille de Co par rapport à la maille du substrat.

met de mesurer  $\Delta L_{Co}$  en obtenant deux taches successives en L. Malheureusement, nous n'avons pas sondé cette région de l'espace réciproque lors des mesures sur Au(8 MC)/Co(4 MC)/Au(788). Nous allons voir que nous pouvons quand même obtenir le paramètre hors plan du cobalt et déterminer complètement le type d'empilement adopté dans la couche.

## Caractérisation de l'empilement

L'existence de fautes d'empilement au sein de cristaux de cobalt est connu de puis longtemps et a fait le sujet d'études dès 1942 [Wilson, 1942; Paterson, 1952; Christian, 1954; Estevez-Rams et al., 2001]. Un modèle simple a d'abord été développé par Wilson [Wilson, 1942] pour expliquer des élargissements de taches de diffraction expérimentales. Ce modèle est basée sur l'introduction de fautes d'empilements dans un cristal hexagonal compact. Au sens de Wilson, une faute d'empilement correspond alors à l'introduction d'un plan de nature différente des plans précédents. On nomme  $p_\alpha$  la probabilité qu'un plan (n'importe lequel) soit fauté (i.e. soit différent des deux plans qui le précèdent dans l'empilement). Le cas  $p_\alpha=0$  correspond donc à un cristal hexagonal compact (...ABAB..., ...ACAC... ou bien ...BCBC...) alors que le cas  $p_\alpha=1$  correspond à un cristal cubique à faces centrées sans que l'on puisse préciser son type (...ABCABC... ou bien ...ACBACB...). Ce modèle est bien adapté au calcul des élargissements des taches de diffraction dans cristal hc avec une faible densité de faute mais ne permet pas de rendre compte de déplacements des positions des taches de diffraction.

Paterson a développé un modèle pour l'introduction de fautes de déformation dans les cristaux cubiques à faces centrées. Son travail permet de rendre compte des élargissements et des déplacements des taches de diffraction mesurés après déformation plastique de certains cristaux. Contrairement aux fautes en croissance qui correspondent à l'apparition d'un empilement maclé les fautes de déformation considérées par Paterson correspondent à des glissements de plans dans un empilement cfc qui pré-existe. Il définit la probabilité  $p_\beta$  d'enlever un plan quel qu'il soit. Ainsi,  $\frac{p_\beta}{1+p_\beta}$  est la proportion de plans fautés, c'est à dire c'est la fréquence moyenne de plans manquants. Partant d'un empilement ...ABCABC... le cas  $p_\beta=1$  correspond au cas où on enlève un plan sur deux<sup>1</sup> et qui donne un empilement cfc maclé de type ...ACBACB... Le cas  $p_\beta=1/2$  est plus délicat car il correspond à un glissement d'un plan sur trois en moyenne. A partir d'un empilement ...ABCABC... on obtient alors des empilements très variés dont les cas particuliers des empilements hc ...ABAB..., ...ACAC..., ...BCBC... qui correspondent à une répartition homogène des fautes et de l'empilement ABCABC...//...ACBACB, mélange des deux empilements cfc qui correspond à une ségrégation des fautes sur la moitié du cristal. Le cas  $p_\beta=1/2$  repré-

---

<sup>1</sup>Il est impossible d'enlever deux plans successifs, en enlever trois ne crée pas de fautes, en enlever quatre revient à en enlever un et les enlever tous est absurde.

sente donc toute une population de cristaux dont l'intensité diffractée présente des taches de position fixes (correspondantes à un cristal hc) mais de largeurs variables.

On peut faire le lien entre le modèle de Wilson et celui de Paterson en remarquant que le modèle de Wilson distingue grâce au paramètre  $p_\alpha$  les cristaux correspondant à  $p_\beta=1/2$ . Dans l'analyse de nos résultats expérimentaux on se focalise dans un premier temps sur le déplacement des taches de diffraction et on caractérise l'empilement par le seul paramètre  $p_\beta$ . Puisqu'on applique un modèle de fautes de déformation à la croissance d'un cristal il est intéressant de remarquer que la probabilité  $p_\beta$  reflète une tendance locale à créer un empilement cfc dans un sens ( $p_\beta = 0 \Rightarrow \dots ABC\dots$ ) ou dans l'autre ( $p_\beta = 1 \Rightarrow \dots ACB\dots$ ).

Le modèle de Paterson [Paterson, 1952] est repris dans plusieurs ouvrage généraux dont celui de A. Guinier [Guinier, 1964] et permet de déterminer la position des taches de diffraction. Avec notre base de travail on obtient la position en L des trois familles de taches :

$$H' - K' = 3N \quad \Rightarrow \quad \frac{L'}{\Delta L'} = N' \quad (5.3)$$

$$H' - K' = 3N \pm 1 \quad \Rightarrow \quad \frac{L'}{\Delta L'} = N' - \frac{1}{2} \left( 1 \pm \frac{1}{\pi} \arctan \left[ \sqrt{3}(1 - 2p_\beta) \right] \right) \quad (5.4)$$

Pour  $N' = 1$  on représente la position des taches sur la figure 5.8 :

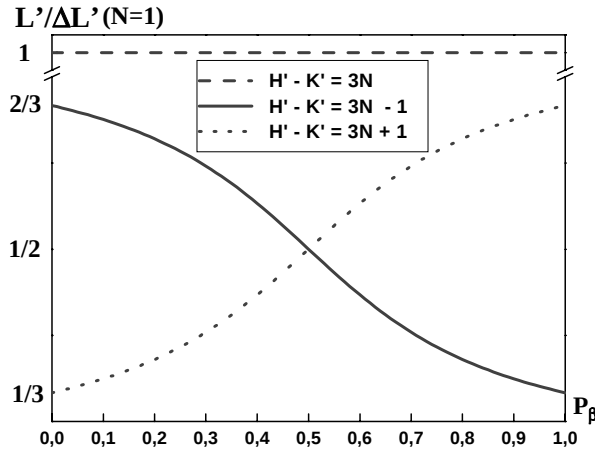


FIG. 5.8: Courbes calculées à partir des expressions 5.3 et 5.4 avec  $N' = 1$ . Ces courbes donnent les positions en  $L'$  des trois familles de taches de diffraction pour un cristal cfc fauté avec une probabilité de faute  $p_\beta$  au sens de Paterson.

On voit que la connaissance des positions en  $L'$  des taches des familles  $H' - K' = 3N - 1$  et  $H' - K' = 3N + 1$  permet de déterminer  $\Delta L'$  et  $p_\beta$ . Le paramètre  $\Delta L'$  est directement relié à la distance interplan et nous donnera donc les relaxations

de la couche de cobalt selon son axe de croissance. Le paramètre  $p_\beta$  nous donne la densité de fautes au sein de la couche et caractérise l'empilement cristallographique du cobalt.

Pour le système Au(8 MC)/Co(4 MC)/Au(788) les positions  $L'$  des taches sont extraites de la figure 5.7. On obtient un système d'équations dont la résolution donne  $\Delta L'$  et  $p_\beta$  :

$$\begin{cases} L'_{(H'-K'=3N+1)} = 1,43 \pm 0,01 \\ L'_{(H'-K'=3N-1)} = 1,86 \pm 0,01 \end{cases} \Leftrightarrow \begin{cases} \Delta L' = 3,29 \pm 0,02 \\ p_\beta = 0,38 \pm 0,01 \end{cases} \quad (5.5)$$

De la valeur de  $\Delta L'$  on remonte à la distance inter-plans du cobalt, on trouve :  $d_{Co}^\perp = 2,15 \pm 0,01 \text{ \AA}$ . Ce résultat est très proche de celui obtenu sur la couche de cobalt déposé sur la surface Au(111). On calcule le rapport  $c/a$  de l'empilement du cobalt dans le film, on obtient<sup>1</sup> :  $c/a = 1,68 \pm 0,01$ . Comme dans le cas de Au(8 MC)/Co(4 MC)/Au(111), la dilatation du cobalt au sein du film est plus importante suivant son axe de croissance que dans le plan et le rapport  $c/a$  est plus grand que dans le cobalt massif.

## Interprétation des résultats

Le résultat  $p_\beta = 0,38$  nous indique que l'empilement est de type cfc très fauté. Qualitativement, on peut dire que les taches de cobalt sont assez bien définies et on qualifiera plutôt cet empilement de type hexagonal compact peu fauté.

Rappelons que  $\frac{p_\beta}{1+p_\beta}$  est la proportion de plans fautés. Ici on a obtenu  $p_\beta \sim \frac{2}{5} \Rightarrow \frac{p_\beta}{1+p_\beta} \sim \frac{2}{7}$ , pour fixer les idées on peut construire un empilement qui correspond à cette densité de fautes avec une répartition homogène des fautes, on a alors 2 plans sur 7 qui sont fautés (manquants) ce qui donne par exemple : ...AB $\perp$ ABC $\perp$ BC $\perp$ BCA $\perp$ CA $\perp$ C... On peut remarquer que cet empilement correspond à une succession de sections de 6 plans en empilement hexagonal compact.

Nous pouvons maintenant vérifier la cohérence des différentes caractéristiques structurales de la couche de cobalt. En nous inspirant de résultats récents [Garreau *et al.*, 2003] nous essayons de déterminer quelle surface de cobalt ajuste le mieux la surface du substrat à l'interface Co/Au. Le schéma de la figure 5.9 représente l'assemblage d'un film vicinal de cobalt sur un substrat vicinal d'or. La première hypothèse est l'emboîtement des terrasses à l'interface or/cobalt et on écrit  $D^2 = C_{Co}^2 + L_{Co}^2 = C_{Au}^2 + L_{Au}^2$ . La deuxième hypothèse est le parallélisme des surfaces macroscopiques donné par la relation  $\theta_{Co} = \theta_{Au} + \alpha$ . Si on note  $n_{Co}$  ( $n_{Au}$ ) le nombre de rangées atomiques des terrasses de cobalt (d'or) on a :

---

<sup>1</sup>Pour un empilement hc idéal ce rapport vaut  $c/a = \sqrt{8/3} \approx 1,63$ , pour le cobalt massif il vaut  $c/a \approx 1,62$  et dans le cas de Au(8 MC)/Co(4 MC)/Au(111) on a trouvé  $c/a \approx 1,66$ .

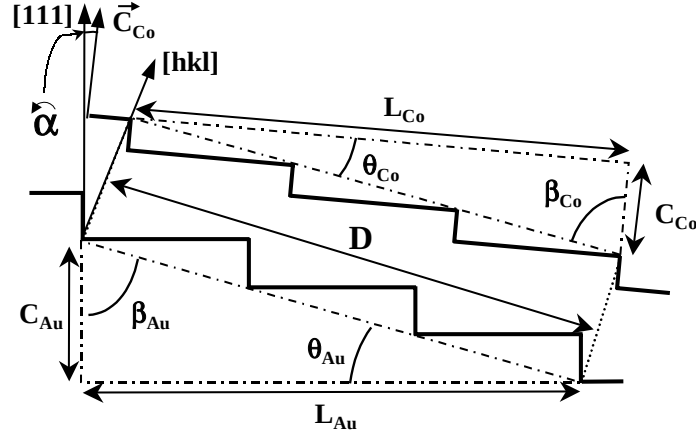


FIG. 5.9: Schéma de l'assemblage d'un film vicinal de cobalt sur un substrat vicinal d'or. On fait l'hypothèse que les terrasses "s'emboîtent" puis que les surfaces macroscopiques sont parallèles.

$$\begin{aligned}
 C_{Co} &= 3 d_{Co}^{\perp} \quad \text{et} \quad L_{Co} = 3 \left( n_{Co} - \frac{i}{3} \right) \frac{\sqrt{3}}{2} d_{Co}^{\parallel} \\
 C_{Au} &= 3 d_{Au}^{\perp} \quad \text{et} \quad L_{Au} = 3 \left( n_{Au} - \frac{2}{3} \right) \frac{\sqrt{3}}{2} d_{Au}^{\parallel} \\
 \tan \theta_{Co} &= \tan(\theta_{Au} + \alpha) = \frac{d_{Co}^{\perp}}{\frac{\sqrt{3}}{2} d_{Co}^{\parallel} (n_{Co} - \frac{i}{3})}
 \end{aligned} \tag{5.6}$$

La variable  $i$  est telle que  $i=2$  pour un substrat vicinal d'azimut  $[\bar{2}11]$  (bords de marches  $\{111\}$ ) et  $i=1$  pour un substrat vicinal d'azimut  $[2\bar{1}\bar{1}]$  (bords de marches  $\{100\}$ ). Pour le cas du film de cobalt déposé sur le substrat Au(788) on a  $\theta_{788} = 3,5^\circ$ ,  $n_{Au} = 16$  et, en utilisant  $d_{Au}^{\parallel} = 2,88 \text{ \AA}$ ,  $d_{Au}^{\perp} = 2,35 \text{ \AA}$  et les paramètres du cobalt déterminés ci-avant, on obtient :

$$n_{Co} - \frac{i}{3} = 17,9 \pm 0,1 \quad \text{et} \quad \alpha \simeq -0,3^\circ \tag{5.7}$$

Ce résultat est compatible avec l'angle de rotation du réseau déterminé précédemment. Remarquons qu'aucune valeur entière de  $n_{Co}$  n'est contenu dans les barres d'erreur. Ce n'est pas vraiment étonnant car la structure fautée du cristal de cobalt implique la coexistence de plusieurs largeurs de terrasses qui coexistent à l'interface. Le paramètre  $i$  qui détermine la nature du bord de marche n'a pas un sens aussi clair dans un cristal de type hexagonal compact que dans un cristal cfc. En effet une

surface vicinale d'un cristal hc présente autant de bords de marches de type  $\{111\}$  que de type  $\{100\}$ .

Finalement, la croissance du cobalt sur le substrat vicinal Au(788) est peu perturbée. L'angle de rotation de l'axe de croissance est faible et la probabilité de fautes est telle que l'on peut décrire le cristal avec un empilement hexagonal compact peu modifié. Notons cependant qu'à l'interface le cobalt présente une face vicinale avec des terrasses contenant "à peu près" 18 rangées atomiques contre 16 pour le substrat d'or. Au niveau des déformations de la maille on peut remarquer que le rapport  $c/a$  est différent de celui du cobalt massif. Si l'on compare au cas du cristal hc idéal la maille est, ici, étirée selon  $c$  alors qu'en volume le cobalt présente une maille légèrement comprimée selon  $c$ .

## 5.4 Croissance du cobalt sur la surface Au(233)

Nous allons maintenant nous intéresser à la structure des films de cobalt sur Au(233). Nous avons présenté le substrat Au(233) dans la partie précédente, rappelons qu'il possède des terrasses d'une largeur de 5 rangées atomiques séparées par des marches de type  $\{111\}$ . Pour la croissance d'un film de cobalt la perturbation structurale due à la vicinalité de l'interface devrait donc être plus marquée que sur la surface Au(788).

### 5.4.1 Structure des films de 5 MC de cobalt sur Au(233)

Nous commençons par étudier la structure d'un film de 5 monocouches de cobalt déposé sur le substrat Au(233). Suite à l'étude précédente sur Au(788), ce sera pour nous un moyen de comparer la croissance de couches de cobalt d'épaisseurs comparables sur deux substrats de densité de marches différentes.

#### Cartes d'intensité diffractée par le système Au(8 MC)/Co(5 MC)/Au(233)

La figure 5.10 présente les différentes cartes d'intensité diffractée mesurées en différentes zones du réseau réciproque sur l'échantillon Au(8 MC)/Co(5 MC)/Au(233). On observe bien les taches de diffraction dues au substrat d'or à des positions compatibles avec le schéma de la figure 5.3. On observe de plus l'inclinaison dans le plan (H,L) des tiges de troncature autour des pics de Bragg du substrat due à la vicinalité du substrat Au(233). On repère aussi les taches de diffraction de la couche de passivation d'or aux positions caractéristiques d'un cristal cfc maclé. Comme nous l'avons déjà remarqué cette couche de protection est polycristalline avec les deux types d'empilements cfc et contribue donc aussi à l'intensité des taches aux positions du substrat d'or.

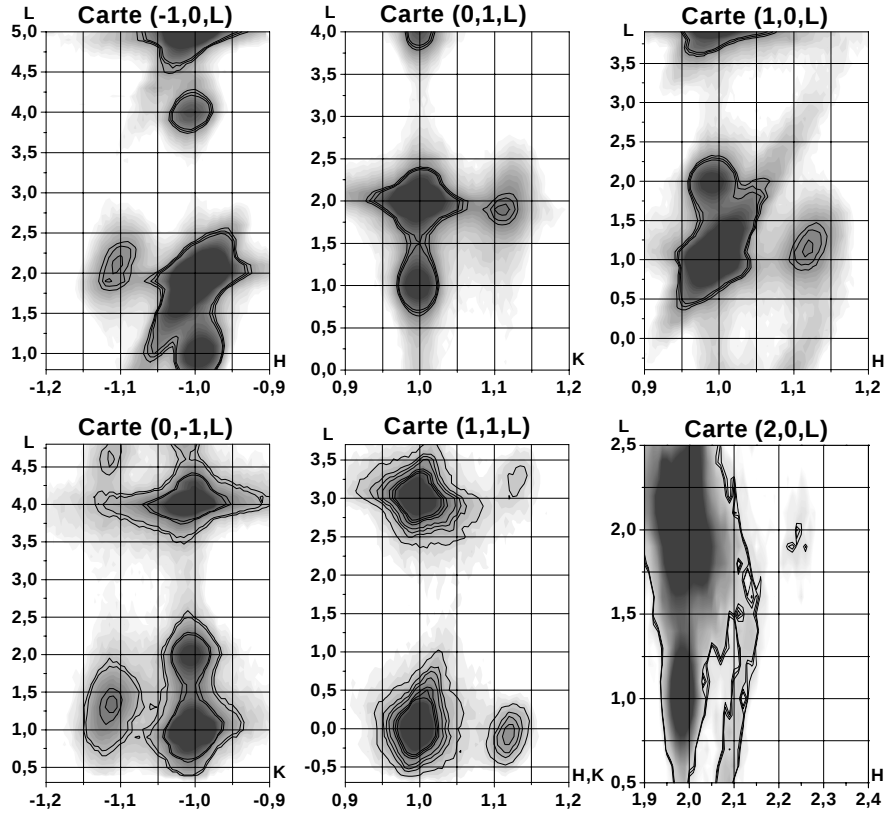


FIG. 5.10: *Cartes d'intensité diffractée dans différentes régions de l'espace réciproque par Au(8 MC)/Co(5 MC)/Au(233)*

### Cartes d'intensité diffractée par le système Co(5 MC)/Au(233)

Les cartes d'intensité diffractée mesurées en différentes zones du réseau réciproque sur l'échantillon Co(5 MC)/Au(233) sont présentées sur la figure 5.11. Ici aussi on observe les taches de diffraction dues au substrat d'or ainsi que l'inclinaison dans le plan (H,L) des tiges de troncature autour des pics de Bragg du substrat. Bien entendu les taches de diffraction de la couche de passivation d'or ont disparu (cf. remarque § 5.2.2).

### Effet de la couche de passivation

Les positions des taches de diffraction des films de cobalt mesurées sur les cartes des figures 5.10 et 5.11 sont résumées dans le tableau 5.4. Précisons que la détermination de ces positions est entachée d'une erreur que nous pouvons estimer à  $\pm 0,005$  en  $H$  et  $K$  et à  $\pm 0,05$  en  $L$ .

Avec l'incertitude sur la mesure de la position des taches de diffraction on se

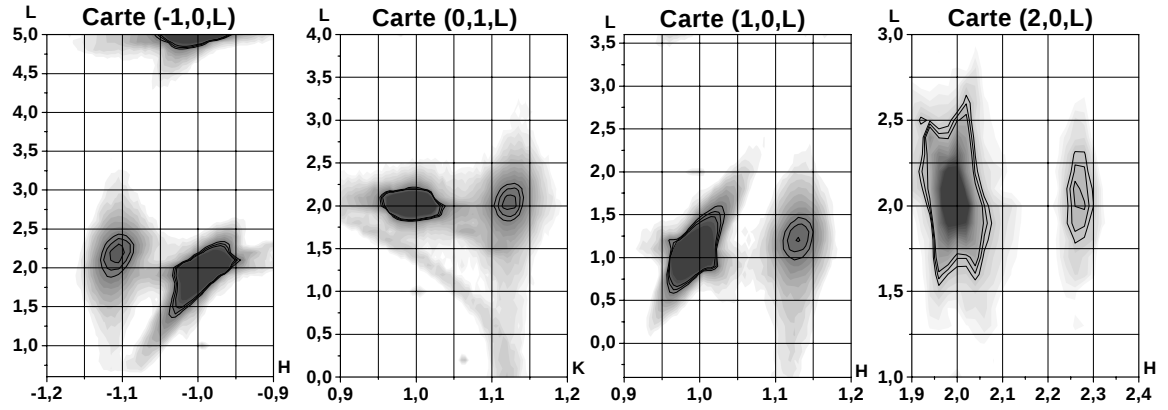


FIG. 5.11: Cartes d'intensité diffractée dans différentes régions de l'espace réciproque par  $\text{Co}(5 \text{ MC})/\text{Au}(233)$

|    | autour de        | $(0, \bar{1}, L)$ | $(\bar{1}, 0, L)$ | $(0, 1, L)$ | $(1, 0, L)$ | $(1, 1, L)$     | $(2, 0, L)$ |
|----|------------------|-------------------|-------------------|-------------|-------------|-----------------|-------------|
| a) | $H (\pm 0, 005)$ | $0 / 0$           | -1,105            | 0           | 1,120       | $1,120 / 1,130$ | 2,240       |
|    | $K (\pm 0, 005)$ | $-1,110 / -1,115$ | 0                 | 1,110       | 0           | $1,120 / 1,130$ | 0           |
|    | $L (\pm 0, 05)$  | $1,34 / 4,61$     | 2,11              | 1,89        | 1,13        | $-0,07 / 3,23$  | 2,00        |
| b) | $H (\pm 0, 005)$ |                   | -1,105            | 0           | 1,130       |                 | 2,270       |
|    | $K (\pm 0, 005)$ |                   | 0                 | 1,125       | 0           |                 | 0           |
|    | $L (\pm 0, 05)$  |                   | 2,18              | 2,04        | 1,21        |                 | 2,05        |

TAB. 5.4: Localisation dans l'espace réciproque des taches d'intensité diffractée par les film ultramince de cobalt des systèmes  $\text{Au}(8 \text{ MC})/\text{Co}(5 \text{ MC})/\text{Au}(233)$  et  $\text{Co}(5 \text{ MC})/\text{Au}(233)$ .

convainc facilement que la couche de protection de 8 MC d'or n'a pas d'influences sur la structure de la couche de cobalt. Pour anticiper sur le suivi de la structure de la couche de cobalt en fonction de son épaisseur que nous présentons dans la suite nous considérons le film de cobalt non recouvert, c'est à dire l'échantillon  $\text{Co}(5 \text{ MC})/\text{Au}(233)$ .

Comme dans le cas du film de cobalt déposé sur  $\text{Au}(788)$  on observe sur les figures 5.11 et 5.10 que la symétrie d'ordre 6 caractéristique d'un cristal hc n'est pas présente dans la répartition de l'intensité diffractée par le film de cobalt sur  $\text{Au}(233)$ . Remarquons que les positions des taches de diffraction ne correspondent pas non plus à un cristal cubique à faces centrées (cf. figure 5.3). A partir des positions des taches de diffraction résumées dans le tableau 5.4 nous allons analyser l'empilement au

sein de la couche de cobalt. Nous pouvons discuter de l'influence de la couche de passivation d'or, déterminer l'orientation de l'axe de croissance du cobalt, mesurer les relaxations de la couche et caractériser la nature de l'empilement dans le cadre du modèle de Paterson.

### Orientation de l'axe de croissance

On place les taches de diffraction dans le plan  $K=0$  et on applique une rotation du repère de l'espace réciproque d'un angle  $\alpha$  autour du vecteur  $\vec{u}_Z^* = -2\vec{A}_{hex}^* + \vec{B}_{hex}^*$ . On cherche l'orientation de l'axe de croissance de la couche de cobalt. Pour cela on cherche à égaliser les côtes  $L'(\alpha)$  des taches équivalentes.

Cette détermination angulaire est assez fine et nécessite une bonne précision sur les positions des taches de diffraction. L'observation des figures 5.10 et 5.11 révèle un petit décalage en  $H$  et  $K$  des pics de Bragg du substrat d'or. Ces décalages sont dus à des erreurs d'orientation du cristal et conduisent à des erreurs dans la détermination des positions des taches de cobalt. Dans ce qui suit nous avons corrigé les positions résumées dans le tableau 5.4 pour déterminer précisément la direction de l'axe de croissance de la couche de cobalt.

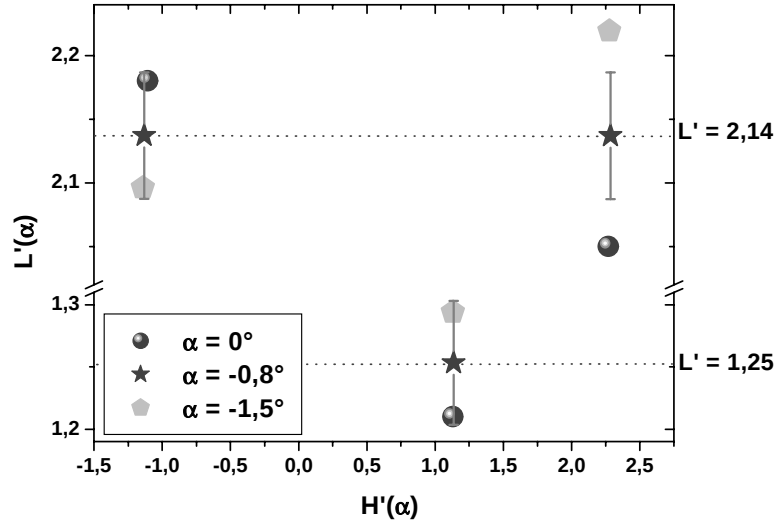


FIG. 5.12: Positions des taches de diffraction du film de 5 MC de cobalt sur  $Au(233)$  dans le plan  $(H'(\alpha), L'(\alpha))$

Sur la figure 5.12 sont représentées les positions des taches de diffraction dans le plan  $(H'(\alpha), L'(\alpha))$  correspondant à différentes rotations du réseau réciproque. On voit que pour aligner en  $L'$  les taches autour de  $H = -1$  et  $H = 2$  il faut appliquer une rotation d'angle  $\alpha_{233} = -0.8^\circ \pm 0.5^\circ$ . Le substrat  $Au(233)$  présente des marches  $\{111\}$  et le fait que l'angle  $\alpha_{788}$  soit négatif nous indique que l'axe de croissance du

cobalt est situé entre l'axe [111] et l'axe [233]. Nous verrons par la suite comment interpréter plus précisément la valeur de cet angle de rotation.

## Relaxations

Le tableau suivant donne les positions des taches de diffraction du cobalt en  $K = 0$  dans le plan  $(H'(\alpha), L'(\alpha))$  tourné de l'angle  $\alpha_{233} = -0,8^\circ$ .

|                  | (-1,0,L) | (1,0,L) | (2,0,L) |
|------------------|----------|---------|---------|
| $H'(-0,8^\circ)$ | -1,132   | 1,136   | 2,286   |
| $L'(-0,8^\circ)$ | 2,14     | 1,25    | 2,14    |

TAB. 5.5: *Positions des taches de diffraction du cobalt en  $K = 0$  dans le plan  $(H'(\alpha), L'(\alpha))$  tourné de l'angle  $\alpha_{233} = -0,8^\circ$  pour un film de 5 MC de Co sur Au(233).*

Nous trouvons une relaxation du paramètre de cobalt dans le plan égale à  $13,5 \pm 0,5\%$ . Le paramètre de maille moyen dans le plan du film de cobalt vaut donc  $d_{Co}^{\parallel} = 2,54 \pm 0,02$  Å et correspond à une dilatation de 1 % par rapport à la maille du cobalt massif.

On peut estimer le paramètre hors plan du cobalt grâce à la relation :  $\frac{\Delta L_{Au}}{\Delta L_{Co}} = \frac{d_{Co}^{\perp}}{d_{Au}^{\perp}}$  et à la mesure de  $\Delta L_{Co} = 3,3 \pm 0,1$  que l'on peut extraire des résultats de diffraction autour de (1,1,L) sur le système Au(8 MC)/Co(5 MC)/Au(233). On obtient  $d_{Co}^{\perp} = 2,14 \pm 0,06$  Å.

## Caractérisation de l'empilement

On utilise le modèle de Paterson décrit plus haut. Pour le cas présent d'un film de 5 monocouches de cobalt déposé sur un substrat Au(233) les positions  $L'$  des taches sont extraites de la figure 5.12. On obtient un système d'équations dont la résolution donne  $\Delta L'$  et  $p_{\beta}$  :

$$\begin{cases} L'_{(H'-K'=3N+1)} = 1,25 \pm 0,01 \\ L'_{(H'-K'=3N-1)} = 2,14 \pm 0,01 \end{cases} \Leftrightarrow \begin{cases} \Delta L' = 3,39 \pm 0,02 \\ p_{\beta} = 0,19 \pm 0,01 \end{cases} \quad (5.8)$$

De ces résultats on remonte à la distance inter-plans du cobalt, on trouve :  $d_{Co}^{\perp} = 2,08 \pm 0,01$  Å ce qui correspond à une dilatation de moins de 2 % par rapport à la distance inter-plans du cobalt massif. On voit que la rotation de l'axe de croissance a une influence sur le paramètre hors plan du cobalt puisque sa prise en compte a modifié la valeur de  $d_{Co}^{\perp}$ . On calcule le rapport  $c/a$  de l'empilement du cobalt dans le film, on obtient<sup>1</sup> :  $c/a = 1,64 \pm 0,02$ . On voit que dans le cas présent la dilatation

---

<sup>1</sup>Pour un empilement hc idéal ce rapport vaut  $c/a = \sqrt{8/3} \approx 1,63$ , pour le cobalt massif il vaut  $c/a \approx 1,62$  et dans le cas de Au(8 MC)/Co(4 MC)/Au(111) on a trouvé  $c/a \approx 1,66$

du cobalt au sein du film est légèrement supérieure suivant son axe de croissance que dans le plan et le rapport  $c/a$  est légèrement plus grand que dans le cobalt massif. Ce résultat devra être pris en compte au moment de l'étude des propriétés d'anisotropie magnéto-cristalline de ce système.

Pour ce qui est des fautes d'empilement, rappelons que  $\frac{p_\beta}{1+p_\beta}$  est la proportion de plans fautés. Ici on a obtenu  $p_\beta \sim \frac{1}{5} \Rightarrow \frac{p_\beta}{1+p_\beta} \sim \frac{1}{6}$  et on a donc 1 plan sur 6 en moyenne qui est fauté (manquant).

### 5.4.2 Influence de l'épaisseur sur la structure des films de Co/Au(233)

Nous venons de voir que la vicinalité de la surface Au(233) induit une modification structurale importante au sein d'une couche de cobalt de 5 monocouches déposée dessus. Il est intéressant d'étudier comment se poursuit la croissance d'un film plus épais. Nous avons donc suivi l'évolution de la structure d'une couche de cobalt d'épaisseur croissante sur le substrat Au(233).

Nous n'allons pas faire une présentation détaillée des résultats mais nous allons résumer les données de diffraction et donner les valeurs des paramètres  $\alpha$  et  $p_\alpha$  ainsi que celles des relaxations que l'on peut en déduire. Les films de cobalt sont étudiés par dépôts successifs c'est à dire que le film de 10 monocouches a été obtenu par dépôt de 5 monocouches supplémentaires sur le film de 5 monocouches.

#### Co(10 MC)/Au(233)

Les cartes d'intensité diffractée mesurées sur l'échantillon Co(10 MC)/Au(233) sont présentées sur la figure 5.13. On observe les taches de diffraction dues au substrat d'or ainsi que l'inclinaison dans le plan (H,L) des tiges de troncature autour des pics de Bragg du substrat. Les positions des taches de diffraction du film de cobalt ne semblent pas trop déplacées par rapport au film de 5 monocouches.

Le tableau 5.6 résume les positions des taches de diffraction de la couche de cobalt dans le repère (H,K,L) et dans le plan ( $H'(\alpha)$ ,  $L'(\alpha)$ ) tourné d'un angle  $\alpha$ . Ces dernières positions sont déterminées après la correction de la position des Bragg du substrat et la rotation du réseau réciproque qui aligne en  $L'(\alpha)$  les taches équivalentes. La figure 5.14 présente le déplacement des taches de diffraction entraîné par la rotation du réseau d'un angle  $\alpha$ . On détermine ainsi l'angle  $\alpha_{233/10Co} = -0,65^\circ \pm 0,5^\circ$ .

On déduit de la position des taches une relaxation du film de cobalt dans le plan de  $14,3 \pm 0,5\%$  et un paramètre de maille planaire  $d_{Co}^{\parallel} = 2,52 \pm 0,01 \text{ \AA}$  qui correspond à une dilatation de 0,4 % par rapport à la maille du cobalt massif.

Pour caractériser l'empilement on utilise le modèle de Paterson avec les positions  $L'$  des taches résumées dans le tableau 5.6. On obtient un système d'équations dont

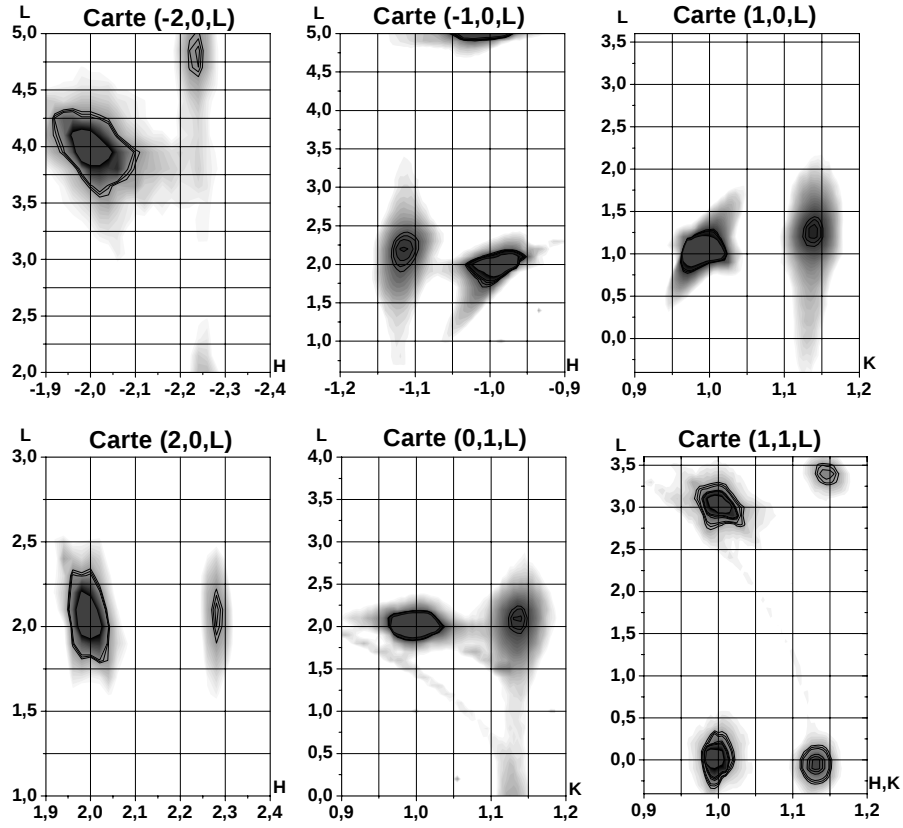


FIG. 5.13: Cartes d'intensité diffractée dans différentes régions de l'espace réciproque par *Co(10 MC)/Au(233)*.

|    | autour de        | $(\bar{2},0,L)$ | $(\bar{1},0,L)$ | $(0,1,L)$ | $(1,0,L)$ | $(1,1,L)$     | $(2,0,L)$ |
|----|------------------|-----------------|-----------------|-----------|-----------|---------------|-----------|
| a) | $H (\pm 0, 005)$ | -2,235          | -1,115          | 0         | 1,139     | 1,133 / 1,147 | 2,280     |
|    | $K (\pm 0, 005)$ | 0               | 0               | 1,135     | 0         | 1,133 / 1,147 | 0         |
|    | $L (\pm 0, 05)$  | 4,83            | 2,20            | 2,09      | 1,26      | -0,06 / 3,38  | 2,09      |
| b) | $H (\pm 0, 005)$ | -2,285          | -1,140          |           | 1,146     |               | 2,298     |
|    | $K (\pm 0, 005)$ | 0               | 0               |           | 0         |               | 0         |
|    | $L (\pm 0, 05)$  | 4,76            | 2,16            |           | 1,30      |               | 2,16      |

TAB. 5.6: Localisation des taches d'intensité diffractée par le film ultramince de cobalt *Co(10 MC)/Au(233)* : a) dans l'espace réciproque  $(H,K,L)$  ; b) dans le plan  $(H'(\alpha), L'(\alpha))$  pour  $\alpha = -0,65^\circ$ .

la résolution donne  $\Delta L'$  et  $p_\beta$  :

$$\begin{cases} L'_{(H'-K'=3N+1)} = 1,30 \pm 0,01 \\ L'_{(H'-K'=3N-1)} = 2,16 \pm 0,01 \end{cases} \Leftrightarrow \begin{cases} \Delta L' = 3,46 \pm 0,02 \\ p_\beta = 0,21 \pm 0,01 \end{cases} \quad (5.9)$$

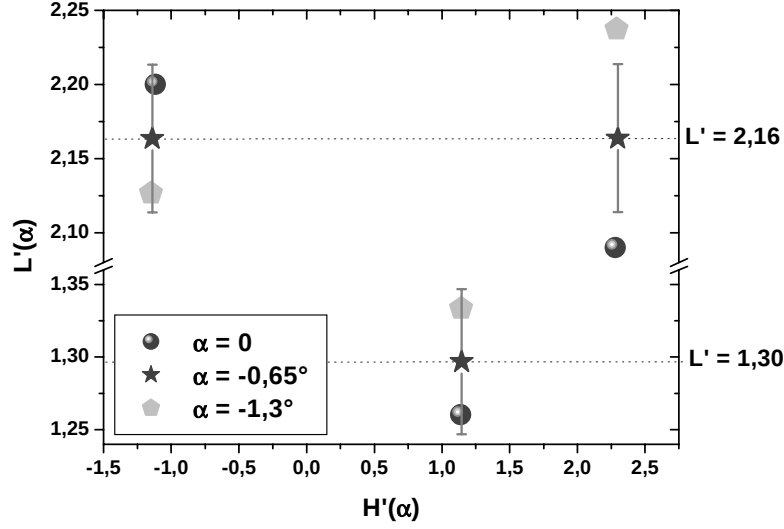


FIG. 5.14: Positions des taches de diffraction du film de 10 MC de cobalt sur Au(233) dans le plan  $(H'(\alpha), L'(\alpha))$

De ces résultats on remonte à la distance inter-plans du cobalt, on trouve :  $d_{Co}^\perp = 2,04 \pm 0,01$  Å qui correspond à une dilatation de moins de 1 % par rapport à la distance inter-plans du cobalt massif. On calcule le rapport  $c/a$  de l'empilement du cobalt dans le film, on obtient :  $c/a = 1,62 \pm 0,02$ . On voit que le rapport  $c/a$  est ici à peu près le même que dans le cobalt massif.

L'orientation de l'axe de croissance ainsi que les relaxations du film sont quasiment identiques au cas du film de 5 monocouches sur Au(233). La probabilité de faute est aussi identique et le cristal est donc toujours de nature plutôt cubique à faces centrées avec une tendance à l'empilement de même sens que le substrat d'or (i.e. ...ABCABC...).

### Co(30 MC)/Au(233)

Le tableau 5.7 résume les positions des taches de diffraction de la couche de cobalt de 30 monocouches sur Au(233) dans le repère  $(H,K,L)$  et dans le plan  $(H'(\alpha), L'(\alpha))$  tourné d'un angle  $\alpha_{233/30Co} = -0,95^\circ$  et corrigées de l'erreur de position des Bragg du substrat.

On en déduit une relaxation du film de cobalt dans le plan de  $14,3 \pm 0,5\%$  et un paramètre de maille planaire  $d_{Co}^\parallel = 2,52 \pm 0,01$  Å qui correspond à une dilatation de 0,4 % par rapport à la maille du cobalt massif. La mesure des positions de deux taches successives en  $L'$  au voisinage de  $(2,0,L)$  nous permet de déterminer  $\Delta L_{Co} = 3,39 \pm 0,1$  et d'estimer le paramètre hors plan du cobalt, on trouve :  $d_{Co}^\perp = 2,08 \pm 0,01$ . Le rapport  $c/a$  de l'empilement du cobalt vaut ici

|    | autour de       | $(\bar{2},0,L)$ | $(\bar{1},0,L)$ | $(0,1,L)$ | $(1,0,L)$ |
|----|-----------------|-----------------|-----------------|-----------|-----------|
| a) | $H (\pm 0,005)$ | -2,259 / -2,237 | -1,112          | 0         | 1,135     |
|    | $K (\pm 0,005)$ | 0 / 0           | 0               | 1,132     | 0         |
|    | $L (\pm 0,05)$  | 1,40 / 4,79     | 2,15            | 2,03      | 1,24      |
| b) | $H (\pm 0,005)$ | -2,230 / -2,230 | -1,141          |           | 1,145     |
|    | $K (\pm 0,005)$ | 0 / 0           | 0               |           | 0         |
|    | $L (\pm 0,05)$  | 1,29 / 4,68     | 2,10            |           | 1,29      |

TAB. 5.7: *Localisation des taches d'intensité diffractée par le film ultramince de cobalt Co(30 MC)/Au(233) : a) dans l'espace réciproque (H,K,L) ; b) dans le plan (H'(α), L'(α)) pour α = -0,95°.*

$$c/a = 1,65 \pm 0,02.$$

Le modèle de Paterson nous permet de caractériser l'empilement grâce aux positions  $L'$  des taches résumées dans le tableau 5.7. On obtient un système d'équations dont la résolution donne  $\Delta L'$  et  $p_\beta$  :

$$\begin{cases} L'_{(H'-K'=3N+1)} = 1,29 \pm 0,01 \\ L'_{(H'-K'=3N-1)} = 2,10 \pm 0,01 \end{cases} \Leftrightarrow \begin{cases} \Delta L' = 3,39 \pm 0,02 \\ p_\beta = 0,23 \pm 0,01 \end{cases} \quad (5.10)$$

Ces résultats confirment la distance inter-plans du cobalt estimée à partir des taches en (2,0,L) et donc une relaxation perpendiculaire d'un peu plus de 1 % . L'orientation de l'axe de croissance, la relaxation planaire et la probabilité de faute au sein du film sont quasiment identiques au cas des films de 5 et 10 monocouches sur Au(233). Seule la distance inter-plans est légèrement modifiée pour le film de 30 monocouches puisque celle-ci conduit à un rapport  $c/a = 1,65$  au lieu de  $c/a = 1,61$  dans le cas du film de 10 monocouches.

### Co(90 MC)/Au(233)

Le tableau 5.8 résume les positions des taches de diffraction de la couche de cobalt de 90 monocouches sur Au(233) dans le repère (H,K,L) et dans le plan  $(H'(\alpha), L'(\alpha))$  tourné d'un angle  $\alpha_{233/90Co} = -0,4^\circ$  et corrigées de l'erreur de position des Bragg du substrat. On en déduit une relaxation du film de cobalt dans le plan de  $14,2 \pm 0,6\%$  et un paramètre de maille planaire  $d_{Co}^{\parallel} = 2,52 \pm 0,01$  Å qui correspond à une dilatation de 0,5 % par rapport à la maille du cobalt massif.

Le modèle de Paterson nous permet de caractériser l'empilement grâce aux positions  $L'$  des taches résumées dans le tableau 5.7. On obtient un système d'équations

|    | autour de       | $(\bar{2},0,L)$ | $(\bar{1},0,L)$ | $(0,1,L)$ | $(1,0,L)$ | $(1,1,L)$     | $(2,0,L)$ |
|----|-----------------|-----------------|-----------------|-----------|-----------|---------------|-----------|
| a) | $H (\pm 0,005)$ | -2,240          | -1,120          | 0         | 1,140     | 1,140 / 1,155 | 2,300     |
|    | $K (\pm 0,005)$ | 0               | 0               | 1,140     | 0         | 1,140 / 1,155 | 0         |
|    | $L (\pm 0,05)$  | 4,70            | 2,00            | 2,00      | 1,21      | -0,10 / 3,40  | 2,20      |
| b) | $H (\pm 0,005)$ | -2,274          | -1,136          |           | 1,148     |               | 2,311     |
|    | $K (\pm 0,005)$ | 0               | 0               |           | 0         |               | 0         |
|    | $L (\pm 0,05)$  | 4,69            | 2,11            |           | 1,26      |               | 2,11      |

TAB. 5.8: *Localisation des taches d'intensité diffractée par le film ultramince de cobalt  $Co(90\text{ MC})/Au(233)$  : a) dans l'espace réciproque  $(H,K,L)$  ; b) dans le plan  $(H'(\alpha), L'(\alpha))$  pour  $\alpha = -0,4^\circ$ .*

dont la résolution donne  $\Delta L'$  et  $p_\beta$  :

$$\begin{cases} L'_{(H'-K'=3N+1)} = 1,26 \pm 0,01 \\ L'_{(H'-K'=3N-1)} = 2,11 \pm 0,01 \end{cases} \Leftrightarrow \begin{cases} \Delta L' = 3,37 \pm 0,02 \\ p_\beta = 0,21 \pm 0,01 \end{cases} \quad (5.11)$$

Ces résultats permettent de déterminer la distance inter-plans du cobalt, on obtient  $d_{Co}^\perp = 2,09 \pm 0,01$ . Le rapport  $c/a$  de l'empilement du cobalt vaut ici  $c/a = 1,66 \pm 0,02$ .

L'orientation de l'axe de croissance, la relaxation planaire et la probabilité de faute au sein du film sont quasiment identiques au cas des films de 5, 10 et 30 monocouches sur Au(233). Seule la distance inter-plans est légèrement modifiée par rapport aux films de 5 et 10 monocouches puisque celle ci conduit à un rapport  $c/a = 1,66$ , proche de celui trouvé pour le film de 30 monocouches mais légèrement différent de ceux trouvés pour les film de 5 et 10 monocouches.

### Interprétation des résultats

Pour résumer cette étude en épaisseur de la structure des films de cobalt sur le substrat Au(233) nous en avons récapitulé les résultats dans le tableau 5.9.

Le résultat  $p_\beta \sim \frac{1}{5}$  nous indique que les fautes au sein du cristal conduisent à un empilement de nature plutôt cubique à faces centrées de même sens que le substrat d'or (i.e. ...ABCABC...). Rappelons que  $\frac{p_\beta}{1+p_\beta} \sim \frac{1}{6}$  est la proportion de plans fautés ce qui nous permet de fixer les idées en décrivant un empilement qui correspond à une répartition homogène des fautes. On obtient par exemple : ...AB $\perp$ ABCAB $\perp$ ABC... qui est un empilement périodique d'une maille de 5 plans ABABC.

| $\theta [MC]$ | $\alpha [^\circ] \pm 0,5$ | $d_{Co}^{\parallel} [\text{\AA}] \pm 0,02$ | $d_{Co}^{\perp} [\text{\AA}] \pm 0,01$ | $c/a \pm 0,02$ | $p_{\beta} \pm 0,01$ |
|---------------|---------------------------|--------------------------------------------|----------------------------------------|----------------|----------------------|
| 5             | -0,80                     | 2,54                                       | 2,08                                   | 1,64           | 0,19                 |
| 10            | -0,65                     | 2,52                                       | 2,04                                   | 1,62           | 0,21                 |
| 30            | -0,95                     | 2,52                                       | 2,08                                   | 1,65           | 0,23                 |
| 90            | -0,40                     | 2,52                                       | 2,09                                   | 1,66           | 0,21                 |
| < >           | -0,70                     | 2,52                                       | 2,07                                   | 1,64           | 0,21                 |

TAB. 5.9: *Résultats de l'étude de la structure des films de Co/Au(233) en fonction de l'épaisseur. On a reporté les valeurs de l'angle  $\alpha$  de l'orientation de l'axe de croissance de la couche de cobalt, les valeurs de la distance inter-atomique et de la distance inter-plans normale au film et la valeur de la probabilité de fautes déterminée dans le cadre du modèle de Paterson. Ces résultats montrent une indépendance en épaisseur et la dernière ligne donne les valeurs moyennes pour chaque paramètre.*

Nous pouvons vérifier la cohérence des différentes caractéristiques structurales de la couche de cobalt que l'on a déterminé dans le cadre d'une description schématique de l'assemblage d'un film vicinal de cobalt sur un substrat vicinal d'or (cf. figure 5.9). Pour le cas du film de cobalt déposé sur le substrat Au(233) on a  $\theta_{233} = 10,0^\circ$  et  $n_{Au} = 6$ . Comme on vient de déterminer que le sens d'empilement des portions cfc de la couche de cobalt est le même que celui du substrat et que son azimuth est identique on suppose donc la présence de bords de marche identiques à ceux du substrat d'or ce qui impose  $i = 2$ . Avec  $d_{Au}^{\parallel} = 2,88 \text{ \AA}$  et  $d_{Au}^{\perp} = 2,35 \text{ \AA}$  et les paramètres du cobalt déterminés ci-avant on utilise les équations 5.9 pour obtenir :

$$n_{Co} = 6,8 \simeq 7 \text{ et } \alpha \simeq -1^\circ \quad (5.12)$$

L'angle de rotation de l'axe de croissance est compatible avec l'angle de rotation du réseau déterminé expérimentalement. Le nombre de rangées atomiques par terrasse correspond n'est pas un nombre entier. Comme nous l'avons remarqué pour le cas des films de cobalt sur Au(788) la présence de fautes peut expliquer la coexistence de plusieurs largeurs de terrasse à l'interface or/cobalt. Ici, on peut souligner qu'il y a 1 plan sur 5 qui est fauté et que cela correspond à une terrasse sur 5 de largeur différente dans ce cas la valeur 6,8 trouvée ci-dessus peut être vue comme la moyenne de 5 terrasses contenant 7 rangées atomiques et de 1 terrasse fautée contenant 6 rangées atomiques.

Finalement, la croissance du cobalt sur le substrat vicinal Au(233) est assez perturbée. L'angle de rotation de l'axe de croissance est légèrement inférieur à  $1^\circ$  et à l'interface le cobalt présente une face vicinale avec des terrasses contenant 6 ou 7 rangées atomiques contre 6 pour le substrat d'or. Au niveau des déformations de la maille on peut remarquer que le rapport  $c/a$  est légèrement différent de celui du

cobalt massif. Si l'on compare au cas du cristal hc idéal la maille est, ici, plutôt très légèrement étirée selon  $c$  alors qu'en volume le cobalt présente une maille légèrement comprimée selon  $c$ .

## 5.5 Croissance du cobalt sur la surface Au(755)

Nous allons maintenant nous intéresser à la structure des films de cobalt sur Au(755). Nous avons présenté le substrat Au(755) dans la partie précédente, rappelons qu'il possède des terrasses d'une largeur de 6 rangées atomiques séparées par des marches de type  $\{100\}$ . Pour la croissance d'un film de cobalt la perturbation structurale due à la vicinalité de l'interface devrait donc être comparable à celle de la surface Au(233) mais avec une cristallographie des bords de marches différente.

### Effet de l'épaisseur et de la couche de passivation sur la structure des films de cobalt sur Au(755)

Après l'étude détaillée menée sur les films de cobalt déposés sur Au(233) nous allons présenter plus rapidement les résultats mesurés sur le substrat Au(755). Nous avons étudié la structure de films de cobalt de 5, 10, 15 et 30 monocouches sur Au(755). Nous avons aussi étudié l'effet de la couche de passivation sur la structure du film de 5 monocouches.

|                    | autour de       | (1,0,L) | (0,1,L) |
|--------------------|-----------------|---------|---------|
| Au/Co(5MC)/Au(755) | $H (\pm 0,005)$ | 1,111   | 0       |
|                    | $K (\pm 0,005)$ | 0       | 1,115   |
|                    | $L (\pm 0,05)$  | 2,24    | 1,30    |
| Co(5MC)/Au(755)    | $H (\pm 0,005)$ | 1,120   | 0       |
|                    | $K (\pm 0,005)$ | 0       | 1,112   |
|                    | $L (\pm 0,05)$  | 2,25    | 1,29    |
| Co(10MC)/Au(755)   | $H (\pm 0,005)$ | 1,120   | 0       |
|                    | $K (\pm 0,005)$ | 0       | 1,115   |
|                    | $L (\pm 0,05)$  | 2,26    | 1,32    |
| Co(15MC)/Au(755)   | $H (\pm 0,005)$ | 1,120   | 0       |
|                    | $K (\pm 0,005)$ | 0       | 1,120   |
|                    | $L (\pm 0,05)$  | 2,21    | 1,37    |

TAB. 5.10: Positions des taches d'intensité diffractée par la couche de cobalt dans l'espace réciproque au voisinage de  $(10L)$  et  $(01L)$ .

Le tableau 5.10 résume les positions des taches de diffraction mesurées aux voisinages de (10L) et (01L) pour des couches de cobalt d'épaisseurs de 5, 10 et 15 monocouches. Comme dans le cas des films de cobalt sur Au(233) la position des taches de diffraction de la couche de cobalt ne sont que très peu modifiées et ne sortent pas des barres d'erreur dues à l'orientation du cristal et la largeur des taches. On décide alors de mener une étude complète de la structure de la couche pour une épaisseur de 30 monocouches de cobalt.

### Structure du film Co(30 MC)/Au(755)

Le tableau 5.11 résume les positions des taches de diffraction relevées sur les différentes cartes d'intensité diffractée mesurées en différentes zones du réseau réciproque sur l'échantillon Co(30 MC)/Au(755). Les positions de ces taches sont données dans le plan  $(H'(\alpha), L'(\alpha))$ , corrigé de la rotation de l'axe de croissance de la couche de cobalt. On détermine ici que cet axe est tourné d'un angle  $\alpha_{755} = 1,4^\circ \pm 0,5^\circ$ . Le signe positif de cet angle dans le cas présent d'un substrat vicinal à marches {100} nous indique que l'axe de croissance du cobalt est situé entre l'axe [111] et l'axe [755].

|    | autour de        | $(\bar{3},0,L)$ | $(\bar{2},0,L)$ | $(\bar{1},0,L)$ | $(1,0,L)$ | $(2,0,L)$     | $(3,0,L)$ |
|----|------------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------|---------------|-----------|
| a) | $H (\pm 0, 005)$ | -3,410          | -2,290          | -1,159          | 1,124     | 2,266 / 2,240 | 3,380     |
|    | $K (\pm 0, 005)$ | 0               | 0               | 0               | 0         | 0 / 0         | 0         |
|    | $L (\pm 0, 05)$  | -0,20           | 1,80            | 1,37            | 2,13      | 1,49 / 5,00   | 3,65      |
| b) | $H (\pm 0, 005)$ | -3,411          | -2,275          | -1,148          | 1,141     | 2,277 / 2,279 | 3,408     |
|    | $K (\pm 0, 005)$ | 0               | 0               | 0               | 0         | 0 / 0         | 0         |
|    | $L (\pm 0, 05)$  | 0,02            | 1,95            | 1,44            | 2,05      | 1,35 / 4,86   | 3,43      |

TAB. 5.11: Localisation des taches d'intensité diffractée par le film ultramince de cobalt Co(30 MC)/Au(755) : a) dans l'espace réciproque  $(H,K,L)$ ; b) dans le plan  $(H'(\alpha), L'(\alpha))$  pour  $\alpha = 1,4^\circ$ .

De la position des taches de diffraction corrigée de la rotation de l'axe de croissance on déduit une relaxation du film de cobalt dans le plan de  $14,3 \pm 0,5\%$ . Cette relaxation correspond à un paramètre de maille  $d_{Co}^{\parallel} = 2,52 \pm 0,01$  Å qui correspond à une dilatation de 0,5 % par rapport à la maille du cobalt massif.

Nous utilisons maintenant le modèle de Paterson pour caractériser l'empilement. En utilisant les cotes des taches en  $L'$  on détermine facilement les paramètres  $\Delta L'$

et  $p_\beta$ . On obtient :

$$\begin{cases} \Delta L' = 3,40 \pm 0,02 \\ p_\beta = 0,68 \pm 0,01 \end{cases} \quad (5.13)$$

La valeur de  $\Delta L'$  nous permet d'obtenir la distance inter-plans du cobalt. On trouve  $d_{Co}^\perp = 2,07 \pm 0,01$ . Connaissant les deux dimensions de la maille on détermine le rapport  $c/a$  de l'empilement du cobalt qui vaut ici  $c/a = 1,64 \pm 0,02$ .

### Interprétation des résultats

Le résultat  $p_\beta = 0,68$  nous indique que le cristal est de nature plutôt cubique à faces centrées avec une tendance à l'empilement maclé. Cela signifie que les fautes d'empilements finissent par créer (traduire) un empilement cfc de sens inverse que celui du substrat. Rappelons que  $\frac{p_\beta}{1+p_\beta}$  est la proportion de plans fautés. Ici,  $p_\beta \sim \frac{2}{3} \Rightarrow \frac{p_\beta}{1+p_\beta} \sim \frac{2}{5}$  et on peut fixer les idées en décrivant un empilement qui correspond à une répartition homogène des fautes avec 2 plans sur 5 fautés (manquants). On obtient par exemple : ...A<sub>⊥</sub>CA<sub>⊥</sub>C<sub>⊥</sub>BC<sub>⊥</sub>B<sub>⊥</sub>AB<sub>⊥</sub>...<sup>1</sup>

Dans une description schématique de l'assemblage d'un film vicinal de cobalt sur un substrat vicinal d'or on utilise les notations du schéma de la figure 5.9. Pour le cas du film de cobalt déposé sur le substrat Au(755) on vient de déterminer que le sens d'empilement des portions cfc de la couche de cobalt est différent de celui du substrat mais que son azimuth est identique on suppose donc la présence de bords de marche différents de ceux du substrat d'or ce qui impose  $i = 2$ . Avec  $d_{Au}^\parallel = 2,88 \text{ Å}$  et  $d_{Au}^\perp = 2,35 \text{ Å}$  et les paramètres du cobalt déterminés ci-avant on utilise les équations 5.9 pour obtenir :

$$n_{Co} = 7,2 \quad \text{et} \quad \alpha \simeq 1,1^\circ \quad (5.14)$$

Ce résultat est compatible avec l'angle de rotation du réseau déterminé précédemment. La valeur non entière de  $n_{Co}$  est délicate à interpréter mais remarquons encore une fois que la présence de fautes d'empilement dans la couche de cobalt est incompatible avec une largeur unique pour les terrasses à l'interface or/cobalt.

Finalement, la croissance du cobalt sur le substrat vicinal Au(755) est assez perturbée. L'angle de rotation de l'axe de croissance est supérieure à  $1^\circ$  et à l'interface le cobalt présente une face vicinale avec des terrasses contenant plutôt 7 rangées atomiques contre 6 pour le substrat d'or. La probabilité de fautes est très importante et l'empilement cristallin de la couche de cobalt est plutôt de type cfc maclé.

---

<sup>1</sup>Remarquons que l'on peut aussi utiliser la probabilité de faute du cristal cfc mâclé  $p_\beta^* = 1 - p_\beta$  et décrire un empilement avec une proportion  $\frac{p_\beta^*}{1+p_\beta^*} \sim \frac{1}{4}$  de plans fautés à partir de cet empilement. Pour une répartition homogène des fautes on obtient comme dans la description précédente : ...AC<sub>⊥</sub>ACB<sub>⊥</sub>CBA<sub>⊥</sub>B...

Au niveau des déformations de la maille on peut remarquer que le rapport  $c/a$  est légèrement différent de celui du cobalt massif. Si l'on compare au cas du cristal hc idéal la maille est, ici, étirée selon  $c$  alors qu'en volume le cobalt présente une maille légèrement comprimée selon  $c$ .

### Comparaison avec la structure de Co/Au(233)

Il est intéressant de comparer les résultats que nous avons obtenu sur les deux surfaces Au(233) et Au(755). Ces deux substrats présentent des terrasses de largeurs proches mais sont orientées avec des azimuts opposés en ont donc des cristallographies de bords de marches différentes. Les propriétés structurales des films de cobalt déposés sur ces deux surfaces présentent beaucoup de points communs : une rotation de l'axe de croissance d'un angle proche de  $1^\circ$ , des relaxation identiques et donc une légère elongation de la maille selon l'axe  $c$ , une face vicinale de cobalt contenant en moyenne près de 7 rangées atomiques à l'interface. Il existe cependant une très nette différence dans l'empilement cristallographique de la couche de cobalt. Pour le film sur Au(233) on a trouvé  $p_\beta \sim 0,2$  alors que pour celui sur Au(755) on a obtenu  $p_\beta \sim 0,7$ . On voit donc que la densité de fautes est très différente dans les deux cas. De manière surprenante on se rend compte que  $p_\beta(233)$  est comparable à  $1 - p_\beta(755)$  et l'on décrit alors les couches de cobalt sur Au(233) et Au(755) comme des empilement fautés avec une tendance à l'empilement cubique à faces centrées dans deux sens différents. La raison de cette différence dans le "sens de l'empilement fauté" reste une question ouverte. Une piste possible pour tenter d'expliquer cette observation réside peut-être dans la tendance du cobalt à former des bords de marches de type  $\{111\}$ .

## 5.6 Conclusions et perspectives

Nos résultats indiquent clairement que le cobalt présente une croissance différente selon la vicinalité du substrat sur lequel il est déposé. Nous avons pu montrer que le cobalt adopte un axe de croissance légèrement tourné par rapport à l'axe  $[111]$  du substrat et qu'il a tendance à croître avec une légère elongation de sa maille le long de cet axe. Nous avons analysé la structure de films de cobalt sur différents substrats vicinaux en terme de fautes d'empilement dans le cadre du modèle de Paterson [Paterson, 1952]. La figure 5.15 résume ces résultats.

Cette étude structurale des films de cobalt sur les surfaces vicinales de Au(111) nous a permis de mettre en évidence la très forte influence de la vicinalité du substrat sur la cristallographie de la couche de cobalt. Le cobalt a une forte tendance à présenter des empilements cristallographiques de plans denses contenant des fautes. Cette particularité est due à la faible différence d'énergie des formes hc et cfc du cobalt et peut être observée si la croissance du cobalt est perturbée par un paramètre extérieur. La température et la vitesse dépôt ont déjà été identifiées comme de tels

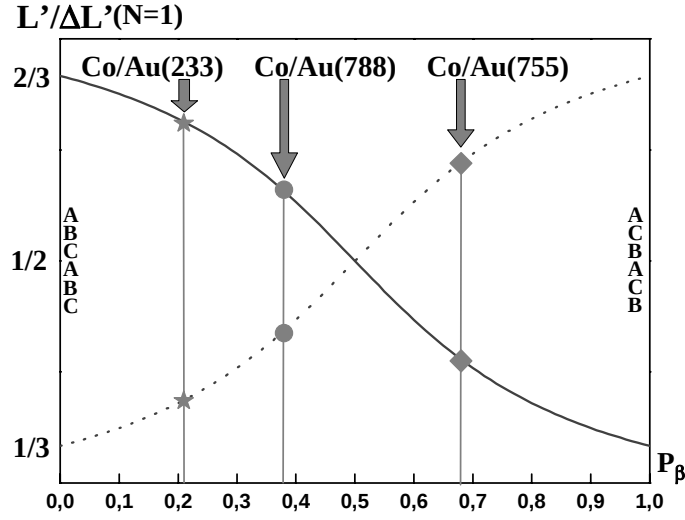


FIG. 5.15: Résumé des positions  $L'$  des taches de diffraction déterminées pour des films de cobalt déposés sur les substrats  $Au(233)$ ,  $Au(788)$  et  $Au(755)$ . Ces positions sont placées sur les courbes du modèle de Paterson et résument les probabilités de fautes déterminées sur chacun des substrats.

paramètres [de Gronckel et al., 1994; Rath et al., 1997; Zheng et al., 1999]. Nous venons de mettre en évidence que la rugosité du substrat et plus particulièrement la densité de marches et leur nature sur un substrat vicinal est aussi un élément déterminant dans la croissance des films ultraminces de cobalt.

Le cobalt est un matériau ferromagnétique très utilisé pour le développement de nano-structures magnétiques et il est très important de bien comprendre ses propriétés dans de tels systèmes. Le couplage spin-orbite induit un lien très fort entre la structure cristallographique et les propriétés magnétiques et la réalisation de propriétés magnétiques contrôlées passe par la maîtrise des propriétés structurales des nano-structures. Il faut donc être très prudent lorsque l'on étudie les propriétés magnétiques de nano-structures de cobalt. Certes les termes de surface, d'interface, voire de bords sont importants pour expliquer des propriétés magnétiques originales d'objets de faible dimensionnalité mais il faut garder à l'esprit que le terme magnéto-cristallin de volume, lorsqu'il existe, est sujet à des modifications importantes si la croissance est perturbée [Dang et al., 1993; Dova et al., 1999; Holloway et Laidler, 2000; Holloway et al., 2001; Bian et al., 2001; Lu et al., 2002; Takahashi et al., 2002].



# Chapitre 6

## Magnétisme des films de cobalt sur les surfaces vicinales de Au(111)

### 6.1 Introduction

Dans ce chapitre nous allons nous intéresser aux propriétés magnétiques des couches de cobalt ultraminces induites par l'utilisation d'un substrat d'or vicinal. Pour cette étude, nous utilisons des mesures d'effet Kerr magnéto-optique effectuées en collaboration avec l'équipe de Jacques Ferré et Jean-Pierre Jamet au Laboratoire de Physiques des Solides à l'université Paris-Sud. Toutes les mesures magnétiques présentées dans ce chapitre ont été réalisées à l'air avec une méthode de modulation de la polarisation et de détection synchrone. Avant de présenter les résultats de ces mesures pour des films ultraminces de cobalt sur différents substrats vicinaux d'or nous présentons un effet magnéto-optique particulier aux interfaces vicinales qui a été mis en évidence au cours de ces mesures. Nous allons, dans un premier temps, exposer le modèle théorique développé par Jaroslav Hamrle [*Hamrle et al.*, 2003; *Hamrle*, 2003] pour intégrer la symétrie vicinale de nos échantillons puis nous verrons comment les résultats prédits par ce modèle ont pu être vérifiés expérimentalement.

Dans un deuxième temps nous présentons les propriétés magnétiques des films ultraminces de cobalt déposés sur les surfaces vicinales d'or. Nos résultats sur les films ultra-minces de cobalt sur Au(111) nous serviront de référence pour mettre en évidence l'influence de la vicinalité du substrat d'or sur le magnétisme des films de cobalt. Nous étudierons notamment le processus de réorientation de l'aimantation avec l'épaisseur. Pour chacun des trois substrats vicinaux Au(788), Au(322) et Au(755), nous tenterons d'interpréter les résultats du magnétisme en lien avec les résultats des études structurales du chapitre précédent.

## 6.2 Un effet magnéto-optique particulier aux interfaces vicinales : Le VISMOKE

### 6.2.1 Introduction

Lorsque nous avons présenté l'effet Kerr magnéto-optique dans le chapitre 2 nous avons considéré un milieu isotrope et nous avons exprimé le tenseur diélectrique dans la base qui diagonalise sa partie symétrique. Ce traitement peut être remis en cause pour des systèmes anisotropes comme des films déposés sur des surfaces de basses symétries [Petukhov *et al.*, 1999]. Dans le cadre de nos travaux sur les systèmes Au/Co/Au vicinaux nous avons été amenés à prendre en compte l'effet de la vicinalité sur les propriétés magnéto-optiques d'un film magnétique ultramince.

### 6.2.2 Un nouvel effet magnéto-optique vicinal : le VISMOKE

Nous allons maintenant montrer comment la vicinalité du substrat peut modifier l'effet Kerr magnéto-optique mesuré pour un film magnétique.

#### Repère de coordonnées

Nous utilisons ici un repère cartésien (x,y,z) fixe dans le laboratoire et lié à la lumière. Le plan d'incidence de la lumière est le plan (y,z) (cf. Fig. 6.1.a) et on note  $\varphi$  l'angle d'incidence. Le plan de la surface vicinale est le plan (x,y). L'orientation de l'aimantation  $\vec{M}$  est repérée dans le repère (x,y,z) par les angles  $\beta$  et  $\gamma$  (cf. Fig. 6.1.b). L'orientation vicinale de la surface est représentée par le vecteur  $\vec{X}$  qui appartient au plan macroscopique de la surface et qui est perpendiculaire aux marches dans le sens descendant (cf. Fig. 6.1.c). L'orientation des marches par rapport au plan d'incidence de la lumière est repérée par l'angle  $\alpha$  (cf. Fig. 6.1.d). L'angle entre la direction vicinale et la composante planaire de l'aimantation est  $\beta - \alpha$  (cf. Fig. 6.1.d).

#### Tenseur diélectrique pour un film magnétique vicinal

Les propriétés optiques et magnéto-optiques d'un film de cobalt sont contenues dans son tenseur diélectrique  $[\varepsilon]$ . En considérant que les perturbations structurales et magnétiques sont faibles et additives on peut écrire la réponse diélectrique du système :

$$\begin{aligned} [\varepsilon] &= [\varepsilon_{str}] + [\varepsilon_{mag}] \quad \text{et} \quad \vec{D} = \vec{D}_{str} + \vec{D}_{mag} \\ \text{avec} \quad \vec{D}_{str} &= [\varepsilon_{str}] \cdot \vec{E} \quad \text{et} \quad \vec{D}_{mag} = [\varepsilon_{mag}] \cdot \vec{E} \end{aligned} \quad (6.1)$$

#### Contribution structurale

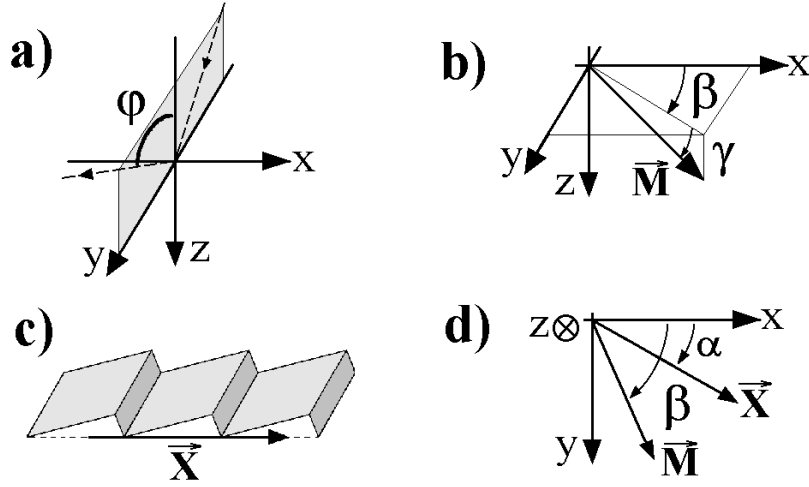


FIG. 6.1: Définition du repère cartésien  $(x,y,z)$  lié à la lumière et des différents angles repérant l'aimantation  $\vec{M}$  et l'échantillon  $(\vec{X})$  dans ce repère. a) Le plan d'incidence de la lumière est le plan  $(y,z)$ .  $\varphi$  est l'angle d'incidence de la lumière. b) L'aimantation  $\vec{M}$  est repérée par les angles  $\beta$  et  $\gamma$ . c)  $\vec{X}$  représente la direction vicinale de l'échantillon : c'est la direction perpendiculaire aux marches du substrat. d) La direction vicinale appartient toujours au plan  $(x,y)$  de la surface et son orientation azimutale est repérée par l'angle  $\alpha$ .

L'orientation du film vicinal est celle schématisée sur la figure 6.1.d, i.e.,  $\alpha = 0$  pour  $\vec{X} \parallel \vec{x}$ . Avec cette convention, le plan miroir  $(x,z)$  laisse inchangé le film et  $[\varepsilon_{str}]$  est donc invariant par cette opération. Cela implique que les composantes  $\varepsilon_{yx}^{str}$ ,  $\varepsilon_{xy}^{str}$ ,  $\varepsilon_{yz}^{str}$  et  $\varepsilon_{zy}^{str}$  sont nulles. Si l'on considère que les perturbations structurales sont symétriques,  $\varepsilon_{ij} = \varepsilon_{ji}$  [Landau et Lifschitz, 1969], que les différences entre les termes diagonaux sont faibles et qu'elles n'influencent pas significativement les coefficients de réflexion, on obtient la partie structurale du tenseur diélectrique :

$$[\varepsilon_{str}]^{(\alpha=0)} = \begin{pmatrix} \varepsilon_0 & 0 & \varepsilon_s \\ 0 & \varepsilon_0 & 0 \\ \varepsilon_s & 0 & \varepsilon_0 \end{pmatrix} \quad (6.2)$$

où le terme non diagonal  $\varepsilon_s$  est dû à la présence d'une surface ou d'une interface de basse symétrie. Cette perturbation n'est non nulle que sur une épaisseur  $t_s$  qui correspond à une "profondeur mémoire" sur laquelle se fait sentir la vicinalité de la surface ou de l'interface et qui est donnée par :  $\varepsilon_s t_s = \int \varepsilon_s(z) dz$

Si l'on considère une orientation quelconque de l'échantillon ( $\alpha \neq 0$ ) la partie structurale du tenseur diélectrique est obtenue en appliquant une rotation d'angle

$\alpha$  autour de l'axe z au tenseur ci-dessus. On obtient :

$$[\varepsilon_{str}](\alpha) = \begin{pmatrix} \varepsilon_0 & 0 & \varepsilon_s \cos \alpha \\ 0 & \varepsilon_0 & \varepsilon_s \sin \alpha \\ \varepsilon_s \cos \alpha & \varepsilon_s \sin \alpha & \varepsilon_0 \end{pmatrix} \quad (6.3)$$

### Contribution magnétique

On s'intéresse maintenant à la partie magnétique du tenseur diélectrique du film vicinal de cobalt. L'aimantation  $\vec{M}$  possède ici une direction quelconque repérée par les angles  $\beta$  et  $\gamma$  (cf. Fig. 6.1). En considérant que la perturbation structurale est faible on écrit que la partie magnétique du tenseur diélectrique induite par l'aimantation  $\vec{M}$  est la même que celle d'une couche isotrope. En notant  $\vec{m}$  le vecteur aimantation unitaire on a donc  $\vec{D}_{mag} = [\varepsilon_{mag}].\vec{E} = -\varepsilon_m \vec{m} \times \vec{E}$  et :

$$[\varepsilon_{mag}] = \begin{pmatrix} 0 & \varepsilon_m \sin \gamma & -\varepsilon_m \cos \gamma \sin \beta \\ -\varepsilon_m \sin \gamma & 0 & \varepsilon_m \cos \gamma \cos \beta \\ \varepsilon_m \cos \gamma \sin \beta & -\varepsilon_m \cos \gamma \cos \beta & 0 \end{pmatrix} \quad (6.4)$$

Finalement, on obtient le tenseur diélectrique total  $[\varepsilon] = [\varepsilon_{str}] + [\varepsilon_{mag}]$  dont on note les composantes  $\varepsilon_{ij}$ .

### Réponse magnéto-optique d'un film magnétique vicinal

Nous voulons calculer l'effet Kerr dû à un film magnétique vicinal d'épaisseur  $t^{(2)}$  pris en sandwich entre un substrat vicinal non magnétique et une couche de passivation d'épaisseur  $t^{(1)}$  du même matériau non magnétique. Ce type de système est représenté sur la figure 6.2 dans le cas de Au/Co/Au. Les indices 0, 1, 2 correspondent respectivement à l'air, au matériau non magnétique (substrat et couche de passivation) et au matériau magnétique (film vicinal). L'indice de réfraction du substrat et de la couche de passivation est donc noté  $N^{(1)}$  alors que celui de l'air est noté  $N^{(0)}$ .

En utilisant la procédure décrite dans [Višňovský et al., 1995] dans le cadre de l'approximation d'un film ultramince on peut résoudre l'équation de propagation du champ électrique et écrire les relations de passage pour une structure sandwich comme celle de la figure 6.2. On obtient ainsi les coefficients de réflexion du tenseur  $[\varepsilon]$ . De ces coefficients on déduit l'expression de l'effet Kerr généralisé<sup>1</sup> pour une

---

<sup>1</sup>Généralement, l'effet Kerr concerne la mesure de la modification de l'état de polarisation de la lumière réfléchi par l'aimantation de l'échantillon. Ici, cette modification est induite par deux types de perturbation : magnétique et structurale. C'est pourquoi nous utilisons le terme d'effet Kerr généralisé.

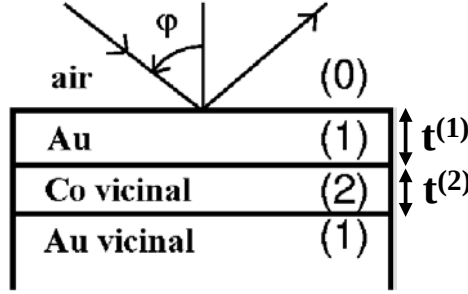


FIG. 6.2: Schéma d'une structure sandwich Au/Co/Au.

polarisation  $s$  ou  $p$  [Hamrle et al., 2003; Hamrle, 2003] :

$$\Phi_s \equiv -\frac{r_{ps}}{r_{ss}} = \chi Q V_s \left( i\varepsilon_{yx} \frac{N_z^{(1)}}{N^{(1)}} t^{(2)} - i \frac{\varepsilon_{zx}\varepsilon_{yz} N_z^{(1)}}{\varepsilon_0 N^{(1)}} t_s + \frac{iN_y N^{(1)} \varepsilon_{zx}}{\varepsilon_0} t^{(2)} \right) \quad (6.5)$$

$$\Phi_p \equiv \frac{r_{sp}}{r_{pp}} = \chi Q V_p \left( -i\varepsilon_{xy} \frac{N_z^{(1)}}{N^{(1)}} t^{(2)} + i \frac{\varepsilon_{xz}\varepsilon_{zy} N_z^{(1)}}{\varepsilon_0 N^{(1)}} t_s + \frac{iN_y N^{(1)} \varepsilon_{xz}}{\varepsilon_0} t^{(2)} \right) \quad (6.6)$$

Les termes  $N_y$  et  $N_z^{(i)}$  sont les composantes selon  $y$  et  $z$  du vecteur d'onde réduit  $\vec{N}^{(i)}$ . Ce vecteur d'onde a pour direction celle de la propagation de la lumière et pour norme la valeur de l'indice de réfraction du milieu. En notant  $k_0 = 4\pi/\lambda^{(0)}$ , avec  $\lambda^{(0)}$  la longueur d'onde de la lumière dans le vide, on a :

$$\vec{N}^{(i)} = \frac{\vec{k}^{(i)}}{k_0} = \begin{pmatrix} 0 \\ N_y \\ N_z^{(i)} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ \frac{N^{(0)} \sin \varphi}{\sqrt{N^{(i)2} - N_y^2}} \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad N^{(i)2} = N_y^2 + N_z^{(i)2}$$

Etant donné le choix du repère  $N_x^{(i)} \equiv 0$ . De plus, la loi de Snell-Descartes impose que la composante selon  $y$  de  $\vec{N}^{(i)}$  soit la même au sein du système et  $N_y = N^{(0)} \sin \varphi$ .

Le terme  $\chi$  dans les équations (6.5) et (6.6) est un terme purement optique valable dans l'approximation d'un film ultramince [Viřnovský et al., 1995] qui décrit l'influence optique du substrat en incidence normale :

$$\chi = \frac{2N^{(0)} (\omega/c)}{N^{(1)2} - N^{(0)2}}$$

Le terme  $Q$  décrit l'influence de la couche de passivation d'épaisseur  $t^{(1)}$  :

$$Q = \exp(2i(\omega/c)N_z^{(1)}t^{(1)})$$

Les termes  $V_s$  et  $V_p$  décrivent l'influence d'un angle d'incidence  $\varphi$  non nul (en incidence normale :  $V_s = V_p = 1$ ) :

$$V_s = \frac{N^{(1)} \cos \varphi}{N_z^{(1)} \cos \varphi + N^{(0)} \sin^2 \varphi} \quad \text{et} \quad V_p = \frac{N^{(1)} \cos \varphi}{N_z^{(1)} \cos \varphi - N^{(0)} \sin^2 \varphi}$$

Les expressions 6.5 et 6.6 contiennent trois contributions à l'effet Kerr généralisé que l'on interprète comme, respectivement, les contributions polaire, vicinale et longitudinale. À partir des expressions 6.3 et 6.4 on peut remplacer les composantes  $\varepsilon_{ij}$  du tenseur diélectrique dans les expressions 6.5 et 6.6. On néglige les contributions magnétiques du second ordre et on différencie les effets magnétiques et structuraux selon qu'ils dépendent ou non de l'aimantation. En utilisant les deux coefficients  $A$  et  $B$  définis par  $A = \frac{i N_z^{(1)}}{N^{(1)}}$  et  $B = \frac{i N_y N^{(1)}}{\varepsilon_0}$ , on obtient les différents termes du tableau 6.1.

|         |              | $\Phi_s / \chi V_s Q$                                                                       | $\Phi_p / \chi V_p Q$                                                                       |
|---------|--------------|---------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------|
| Struct. | Polaire      | 0                                                                                           | 0                                                                                           |
|         | Vicinal      | $-A t_s \frac{\varepsilon_s^2}{2 \varepsilon_0} \sin 2\alpha$                               | $A t_s \frac{\varepsilon_s^2}{2 \varepsilon_0} \sin 2\alpha$                                |
|         | Longitudinal | $B t_s \varepsilon_s \cos \alpha$                                                           | $B t_s \varepsilon_s \cos \alpha$                                                           |
| Mag.    | PMOKE        | $-A t^{(2)} \varepsilon_m \sin \gamma$                                                      | $-A t^{(2)} \varepsilon_m \sin \gamma$                                                      |
|         | VISMOKE      | $-A t_s \frac{\varepsilon_s \varepsilon_m}{\varepsilon_0} \cos \gamma \cos(\beta - \alpha)$ | $-A t_s \frac{\varepsilon_s \varepsilon_m}{\varepsilon_0} \cos \gamma \cos(\beta - \alpha)$ |
|         | LMOKE        | $B t^{(2)} \varepsilon_m \cos \gamma \sin \beta$                                            | $-B t^{(2)} \varepsilon_m \cos \gamma \sin \beta$                                           |

TAB. 6.1: Les différentes contributions normalisées à l'effet Kerr généralisé. L'obtention de ces différents termes à partir des expressions 6.3, 6.4, 6.5 et 6.6 est expliquée dans le texte. On distingue les effets structuraux polaire, vicinal et longitudinal des effets magnétiques que l'on nomme PMOKE, VISMOKE et LMOKE.

Pour les effets magnétiques, on nomme PMOKE la contribution polaire, VISMOKE (Vicinal Interface Sensitive Magneto-optical Kerr Effect) la contribution vicinale et LMOKE la contribution longitudinale. On voit que l'effet VISMOKE est proportionnel à la perturbation structurale  $\varepsilon_s$  et à l'épaisseur  $t_s$  tandis que les effets PMOKE et LMOKE sont proportionnels à l'épaisseur du film  $t^{(2)}$ .

## Analyse des prédictions théoriques

Il y a de nombreux degrés de liberté dans le système et nous nous contenterons d'étudier les effets magnéto-optiques mis en évidence en lien avec les résultats ex-

périmentaux présentés sur Au(322). Une analyse complète des résultats du modèle est présentée dans les références [Hamrle et al., 2003; Hamrle, 2003].

### Symétries de l'effet VISMOKE

Le premier résultat spectaculaire contenu dans le tableau 6.1 est la prédiction d'un signal d'effet Kerr magnétique non nul pour une aimantation planaire ( $\gamma = 0$ ) en incidence normale ( $\varphi = 0$ ). Cet effet inattendu est une conséquence du terme  $\varepsilon_s$  qui découle de la faible symétrie de l'interface vicinale. Avant de confronter ces prédictions avec l'expérience il est intéressant de bien analyser les différentes propriétés de ce nouvel effet. Expérimentalement, nous allons effectuer des mesures en champ magnétique et nous nous focalisons donc sur la partie magnétique de la réponse. Afin d'exalter le terme vicinal nous nous plaçons dans le cas d'une incidence normale ( $\varphi = 0$ ). Dans ces conditions on peut résumer les résultats du tableau 6.1 et réécrire les dépendances des trois termes de l'effet Kerr magnéto-optique avec les angles de la figure 6.1.

$$\text{PMOKE} \propto \varepsilon_m t^{(2)} \sin \gamma \quad (6.7)$$

$$\text{VISMOKE} \propto \frac{\varepsilon_s \varepsilon_m}{\varepsilon_0} t_s \cos \gamma \cos(\beta - \alpha) \quad (6.8)$$

$$\text{LMOKE} = 0 \quad (6.9)$$

Détaillons maintenant les symétries de l'effet VISMOKE. Cet effet magnéto-optique vicinal est proportionnel à  $\cos(\beta - \alpha)$  c'est-à-dire qu'il dépend de l'angle  $\beta - \alpha$  entre l'aimantation  $\vec{M}$  et la direction vicinale  $\vec{X}$ .

- Si l'on fait une rotation de l'échantillon autour de sa normale l'effet VISMOKE s'annule pour  $\beta - \alpha = 90^\circ$  ou  $270^\circ$  c'est à dire lorsque l'aimantation est perpendiculaire à la direction vicinale ( $\vec{M} \perp \vec{X}$ ). Ce sera le cas à la saturation avec un champ magnétique appliqué parallèlement aux bords de marche. Au contraire, l'effet maximal est obtenu lorsque l'aimantation est parallèle à la direction vicinale ( $\vec{M} \parallel \vec{X}$ ). Ce sera le cas à la saturation avec un champ magnétique appliqué perpendiculairement aux bords de marche.
- Si l'on effectue une rotation de l'échantillon autour de sa normale avec  $\alpha \rightarrow \alpha + 180^\circ$  le signe du signal VISMOKE est inversé.

### 6.2.3 Etude expérimentale du VISMOKE

Le modèle théorique présenté ci-dessus prédit l'existence d'un effet Kerr magnéto-optique nouveau, propre aux interfaces vicinales. Cet effet VISMOKE, tel qu'il est exprimé en 6.8, est exalté pour une aimantation planaire ( $\gamma=0^\circ$ ). Pour tester expérimentalement cet effet il paraît judicieux de choisir un échantillon à aimantation la

plus planaire possible c'est-à-dire avec un angle  $\gamma$  faible. C'est le cas d u système Au(8 MC)/Co(5 MC)/Au(322).

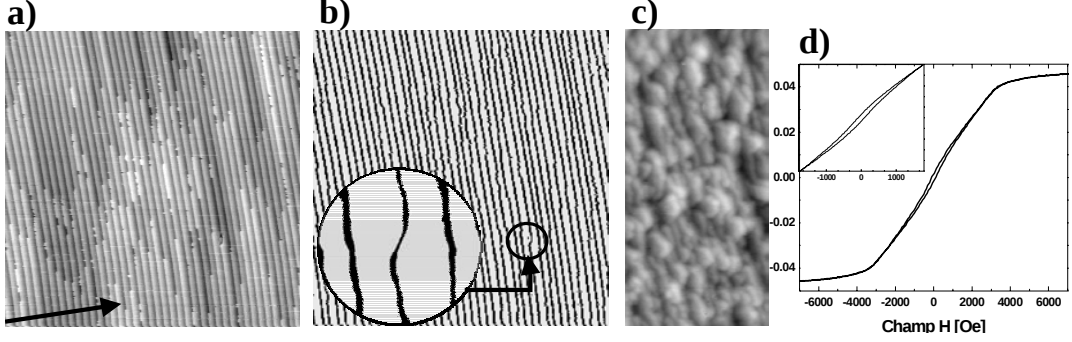


FIG. 6.3: a) Image STM ( $50 \text{ nm} \times 50 \text{ nm}$ ) de la surface Au(322), la flèche indique la direction  $[211]$ , perpendiculaire aux marches dans le sens descendant. b) Dérivée de l'image a) montrant clairement les bords de marche. En encart, on visualise la présence de crans mono-atomiques en bords de marche. c) Image STM ( $25 \text{ nm} \times 60 \text{ nm}$ ) de la couche de cobalt de 5 MC déposée sur Au(322), l'orientation est la même que sur l'image a). d) Courbe d'aimantation polaire mesurée en ellipticité Kerr sur Au(8 MC)/Co(5 MC)/Au(322).

### Choix de l'échantillon

La surface Au(322) est une surface vicinale stable désorientée de  $11,4^\circ$  qui présente des terrasses de largeur 1,2 nm séparées par des marches de type  $\{100\}$ . Les figures 6.3.a et b montrent deux images de microscopie à effet tunnel de la surface Au(322) nue alors que la figure 6.3.c montre une image d'un film de 5 MC de cobalt déposé sur ce substrat. La courbe d'aimantation mesurée en configuration polaire sur Au(8 MC)/Co(5 MC)/Au(322) est représentée sur la figure 6.3.d. Sur celle-ci, l'effet à rémanence mesuré est de 1,1 mdeg et le rapport entre l'effet à rémanence et celui à saturation permet de déterminer l'angle de désorientation de l'aimantation  $\gamma_0 = \arcsin(M_{rem.}/M_{sat.}) \simeq 1,5^\circ$ . Le système Au(8 MC)/Co(5 MC)/Au(322) possède donc une aimantation quasi-planaire ce qui en fait un échantillon adapté à l'étude expérimentale de l'effet VISMOKE.

### Description de la mesure

Les résultats présentés dans la suite ont été obtenus en incidence normale. Dans ce cas on ne peut plus définir de plan d'incidence et on choisit comme convention d'appliquer le champ magnétique extérieur  $\vec{H}$  selon l'axe x. Les orientations du champ  $\vec{H}$ , de l'aimantation  $\vec{M}$  et de la direction vicinale  $\vec{X}$  sont résumées dans la figure 6.4. Les mesures présentées dans la suite ont été faites pour différentes

orientations azimutales de l'échantillon c'est à dire différentes orientations de  $\vec{X}$  par rapport à  $x$  et donc différentes valeurs de l'angle  $\alpha$ .

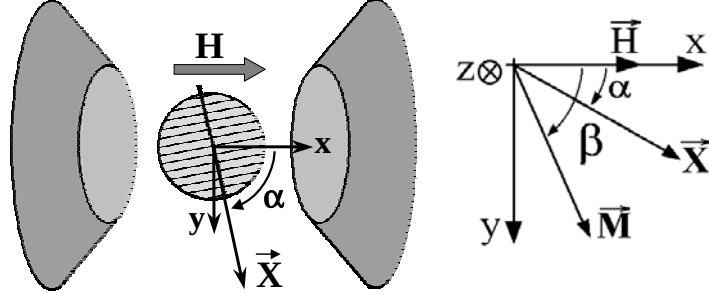


FIG. 6.4: Schéma du dispositif expérimental "vu" par la lumière incidente. Le plan  $(x, y)$  est le plan de la surface macroscopique de l'échantillon. Les angles du schéma de droite sont en accord avec la figure 6.1. Le champ magnétique est appliqué selon l'axe  $x$  et l'angle  $\alpha$  est donc l'angle entre le champ  $\vec{H}$  et la direction vicinale  $\vec{X}$ .

## Résultats et mise en évidence du VISMOKE

La figure 6.5 présente les résultats des mesures effectuées en incidence normale et en champ planaire pour différentes valeurs de l'angle azimutal  $\alpha$  (cf. Fig. 6.4). Le premier résultat spectaculaire est l'inversion de signe du signal lorsque l'échantillon est tourné de  $180^\circ$  ce qui correspond à la symétrie du VISMOKE tel qu'il est exprimé en 6.8. Avant de conclure sur l'accord entre les résultats expérimentaux et les prédictions du modèle théorique il est nécessaire de bien comprendre les cycles de la figure 6.5.

Lorsque l'on applique le champ perpendiculairement à la direction vicinale c'est-à-dire parallèlement aux marches avec  $\alpha = 90^\circ$  ou  $270^\circ$  on mesure un cycle d'hystérésis carré (cf. Fig. 6.5). Dans cette configuration les expressions 6.7 et 6.8 montrent que le signal VISMOKE s'annule et que seul existe un effet PMOKE. Les cycles carrés mesurés pour  $\alpha = 90^\circ$  et  $\alpha = 270^\circ$  sont attribués à la petite composante polaire qui persiste pour le film de 5 MC de cobalt sur Au(322). L'amplitude de ce cycle carré est d'ailleurs égale à 1,1 mdeg ce qui est cohérent avec l'effet à rémanence du cycle polaire de la figure 6.3.d. et avec l'angle de désorientation de l'aimantation  $\gamma_0 = 1,5^\circ$ .

De manière plus générale, on observe que tous les cycles de la figure 6.5 comportent une partie carrée et une partie non hystérétique en forme de S. La partie carrée de ces cycles est attribuée à l'effet PMOKE résultant de la composante hors plan de l'aimantation alors que la partie en S est attribuée à l'effet VISMOKE. Nous avons analysé séparément les composantes carrée et "en S" des cycles d'hystérésis de

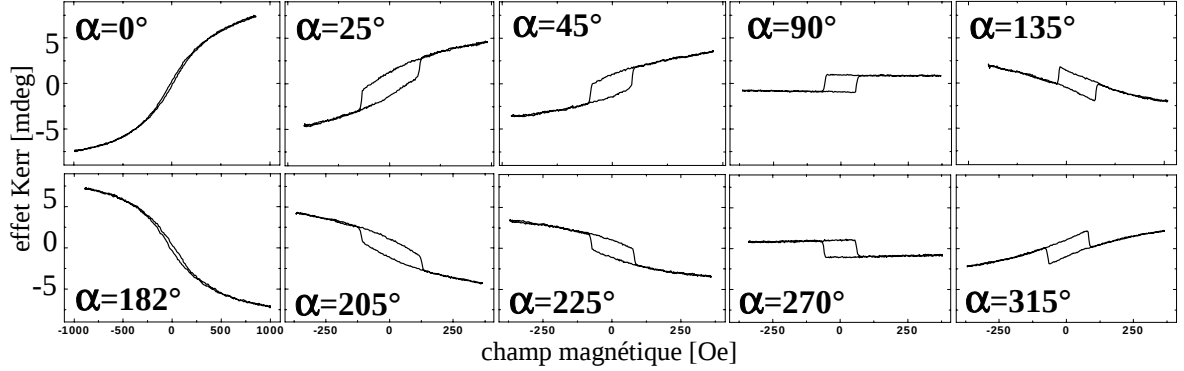


FIG. 6.5: Cycles d'hystérésis mesurés en ellipticité Kerr en incidence normale et en champ planaire ( $\vec{H}$  selon  $x$ ) sur  $\text{Au}(8 \text{ MC})/\text{Co}(5 \text{ MC})/\text{Au}(322)$  en fonction de l'orientation azimutale  $\alpha$ .

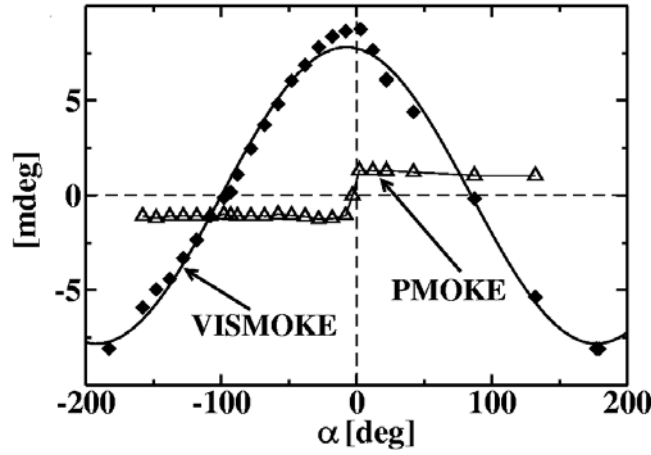


FIG. 6.6: Amplitudes des composantes carrée (PMOKE) et en  $S$  (VISMOKE) des cycles de la figure 6.5 en fonction de l'orientation azimutale de l'échantillon.

la figure 6.5. Pour cela nous avons séparé ces deux parties de manière à tracer leur amplitude en fonction de l'orientation de l'échantillon. La figure 6.6 montre cette évolution des deux parties du signal magnéto-optique avec l'orientation azimutale  $\alpha$ . Deux résultats importants découlent de l'observation de la figure 6.6 :

- Comme prévu dans le tableau 6.1 le signal VISMOKE suit une loi sinusoïdale en fonction de l'orientation azimutale de l'échantillon. On trouve bien le zéro de l'effet pour  $\beta - \alpha = 90^\circ$  et  $270^\circ$  c'est-à-dire lorsque le champ aligne l'aimantation perpendiculairement à la direction vicinale (parallèlement aux bords de marche) et son maximum pour  $\beta - \alpha = 0^\circ$  et  $180^\circ$  c'est-à-dire lorsque le champ aligne l'aimantation parallèlement à la direction vicinale (perpendiculairement

aux bords de marche).

- On constate que l'amplitude du signal carré reste constante. Ce résultat est important car il permet de dire que l'angle de désorientation  $\gamma$  repéré par rapport au plan moyen du film magnétique est constant et vaut  $\gamma_0$ .

### Orientation de l'axe d'anisotropie :

Puisque l'interface vicinale possède une symétrie miroir, l'axe d'anisotropie devrait être dégénéré ce qui correspondrait à deux axes de facile aimantation avec  $\gamma_0 = \pm 1,5^\circ$ . Dans ce cas, des domaines magnétiques correspondant aux deux orientations équivalentes devraient coexister en proportions égales et, en moyenne, aucun signal Kerr polaire ne devrait être mesuré. La mesure de cet effet Kerr suggère l'existence d'une anisotropie uniaxiale dans notre système. Or l'étude STM du substrat Au(322) montre qu'il existe une légère désorientation azimutale dans l'angle de coupe de l'échantillon. Cet effet se voit très bien dans les crans atomiques présents en bords de marche sur la figure 6.3.b. Cette désorientation pourrait lever la dégénérescence entre les deux directions  $\gamma_0 = \pm 1,5^\circ$  et ainsi stabiliser un axe d'anisotropie unique.

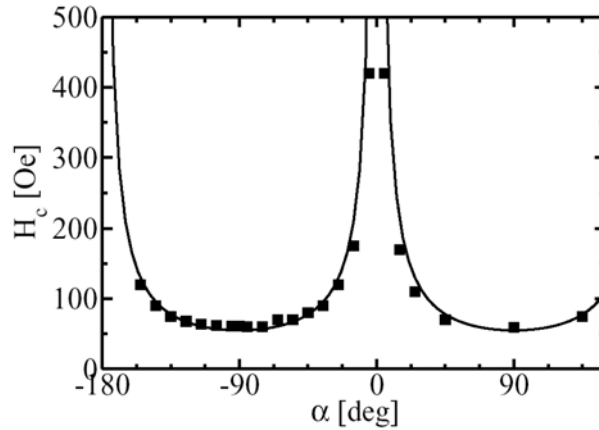


FIG. 6.7: Variation du champ de basculement des cycles de la figure 6.5 en fonction de l'orientation azimutale  $\alpha$  de l'échantillon.

Pour confirmer l'existence d'une anisotropie uniaxiale nous avons tracé sur la figure 6.7 l'évolution du champ coercitif des cycles de la figure 6.5 en fonction de l'orientation azimutale de l'échantillon. Le résultat montre que le champ coercitif varie en  $\frac{1}{\sin \alpha}$  et diverge pour  $\alpha = 0^\circ$  et  $180^\circ$  ce qui correspond tout à fait au cas d'une anisotropie uniaxiale avec un axe de facile aimantation pour  $\alpha_0 = 90^\circ$  [Kondorsky, 1940]. On a donc établi que l'axe facile d'aimantation est désorienté d'un petit angle  $\gamma_0 = 1,5^\circ$  par rapport au plan moyen du film et que sa projection dans le plan moyen du film est parallèle aux bords de marche.

On voit donc que, dans cette géométrie d'étude (incidence normale et champ planaire), c'est l'ouverture du cycle carré qui permet d'identifier la direction de la projection de l'axe de facile aimantation dans le plan du film. Cette caractéristique nous permettra, dans la troisième partie de ce chapitre, d'étudier plus en détail l'orientation de l'axe de facile aimantation en fonction de l'épaisseur du film.

### Discussion de l'effet VISMOKE :

Pour démontrer que le signal que l'on mesure s'interprète bien par l'effet VISMOKE, il faut prouver que les cycles d'hystérésis présentés en figure 6.5 ne peuvent pas s'expliquer uniquement par la petite composante polaire de l'aimantation. Un résultat marquant qui va dans ce sens est la valeur de 8 mdeg atteint par le signal Kerr mesuré dans la configuration  $\alpha = 0^\circ$  ou  $180^\circ$ . Ce signal, très supérieur au 1,1 mdeg du signal rémanent mesuré en configuration polaire, ne peut être simplement expliqué par un effet PMOKE. En fait, la seule possibilité pour obtenir un tel signal avec un effet polaire serait que l'application du champ dans le plan moyen du film induise une rotation hors plan de l'aimantation. Envisageons donc un paysage d'énergie magnéto-cristalline complexe pour lequel un champ planaire appliqué avec  $\alpha = 0^\circ$  entraînerait une augmentation conjointe de l'angle  $\beta$  et de l'angle  $\gamma$  avec une rotation hélicoïdale de l'aimantation sous champ. Dans ce cas, l'angle  $\gamma$  augmenterait avec l'amplitude du champ appliqué.

Expérimentalement, on observe que pour un angle  $0^\circ < \alpha < 90^\circ$  le champ de basculement de l'aimantation est plus élevé que celui mesuré pour  $\alpha = 90^\circ$  (cf. Fig 6.7). On s'attend donc à ce que le basculement de l'aimantation corresponde alors à un angle  $\gamma > \gamma_0$  et que l'amplitude du signal carré soit supérieure à celle mesurée pour un champ planaire appliqué avec  $\alpha = 90^\circ$ . Finalement, on s'attend à voir l'amplitude du signal PMOKE augmenter lorsque l'angle  $\alpha$  varie de  $90^\circ$  à  $0^\circ$ . L'analyse de la figure 6.6 montre que l'amplitude du signal carré est constante en fonction de l'orientation  $\alpha$  ce qui met en défaut l'hypothèse précédente. La composante hors plan de l'aimantation ne peut donc pas expliquer les cycles de la figure 6.5. Finalement, tous nos résultats sont cohérents avec l'effet VISMOKE du à la vicinalité du substrat.

### Estimation et discussion du terme $\varepsilon_s$

Nous allons maintenant essayer d'extraire des résultats expérimentaux une estimation de  $\varepsilon_s$ . Une caractéristique importante de l'effet VISMOKE est son caractère localisé. Le terme  $\varepsilon_s$  qui provient de la vicinalité du substrat a une influence sur l'épaisseur  $t_s$  qui correspond à l'épaisseur sur laquelle la vicinalité de l'interface se fait sentir. Cet effet est donc un effet d'interface et il permet une grande sensibilité à cette région de l'échantillon puisqu'il se mesure dans une configuration où les effets de volume sont nuls. Nous proposons deux manières de déterminer  $\varepsilon_s$ .

## Méthode magnéto-optique

Une première méthode magnéto-optique consiste à faire le rapport du signal VISMOKE maximum mesuré en champ planaire ( $\gamma = 0$ ) avec  $\alpha - \beta = 0$  [ $\pi$ ] et du signal PMOKE maximum mesuré en champ polaire ( $\gamma = \pi/2$ ). Les expressions des effets polaire et vicinal en incidence normal données en (6.7) et (6.8) permettent de calculer ce rapport :

$$\frac{\text{VISMOKE}_{(\gamma=0, \alpha-\beta=0)}}{\text{PMOKE}_{(\gamma=\pi/2)}} = \frac{\varepsilon_s t_s}{\varepsilon_0 t^{(2)}} \quad (6.10)$$

Connaissant  $\varepsilon_0$ ,  $t^{(2)}$  et  $t_s$  il est alors possible de déterminer  $\varepsilon_s$ . Les mesures en rotation (partie réelle) et en ellipticité (partie imaginaire) donnent les valeurs des amplitudes des signaux polaire et vicinal maximum. On considère dans un premier temps que la brisure de symétrie due à l'interface vicinale se fait sentir sur une épaisseur  $t_s=2$  plans atomiques (PA). En utilisant l'équation (6.10) avec  $\varepsilon_0(\text{Co})=-12,6+18,5i$  [Johnson et Christy, 1974] on obtient :

$$\begin{aligned} & \text{VISMOKE}_{(\gamma=0, \alpha=\beta)} = 0 - 9i \text{ mdeg} \\ \text{et} & \quad \text{PMOKE}_{(\gamma=\pi/2)} = -23 + 48i \text{ mdeg} \\ \text{soit} & \quad \frac{\varepsilon_s t_s}{\varepsilon_0 t^{(2)}} = (-0,15 + 0,07i) \\ \text{et} & \quad \varepsilon_s \approx 1,4 - 9,46i \end{aligned} \quad (6.11)$$

## Origine du terme $\varepsilon_s$

Nous allons maintenant essayer de comprendre l'origine du terme  $\varepsilon_s$  dans le cadre d'un petit modèle électromagnétique [Hamrle, 2003]. Au delà de la détermination numérique de  $\varepsilon_s$  il est important de comprendre l'origine de la perturbation structurale  $\varepsilon_s$ . Considérons une interface vicinale séparant deux milieux isotropes (a) et (b). Si l'on écrit les conditions de passage locales du champ électrique qui s'appliquent à chaque terrasse d'orientation cristallographique (111) et non au plan vicinal moyen désorienté d'un angle  $\psi$  on obtient la discontinuité du déplacement électrique :

$$\vec{D}^{(b)} - \vec{D}^{(a)} = (\varepsilon_0^{(b)} - \varepsilon_0^{(a)}) \begin{bmatrix} E_x^{(a)} \cos^2 \psi + \frac{1}{2} E_z^{(a)} \sin 2\psi \\ E_y^{(a)} \\ \frac{1}{2} E_x^{(a)} \sin 2\psi + E_z^{(a)} \sin^2 \psi \end{bmatrix} \quad (6.12)$$

$\varepsilon_0^{(a)}$  et  $\varepsilon_0^{(b)}$  sont les constantes diélectriques des deux milieux isotropes (a) et (b). Si l'on veut rétablir la discontinuité du déplacement électrique due à une interface plane correspondant au plan moyen de l'interface à longue distance on doit modifier les tenseurs diélectriques des milieux (a) et (b) en y rajoutant des termes non-diagonaux. On peut montrer que la composante non diagonale est donnée par [Hamrle, 2003] :

$$\varepsilon_s = \frac{1}{4} (\varepsilon_0^{(b)} - \varepsilon_0^{(a)}) \sin 2\psi \quad (6.13)$$

On peut appliquer ce résultat au cas du système Au(8 MC)/Co(5 MC)/Au(322). Avec  $\varepsilon_0^{Au} = -13,5 + 1,3i$  [Johnson et Christy, 1972] et  $\psi_{Au(322)} = 11,4^\circ$  on calcule :

$$\varepsilon_s^{calc} = 0,1 + 1,7i \quad (6.14)$$

Ce résultat donne une valeur très faible par rapport à celle déterminée expérimentalement mais permet de présenter l'origine électromagnétique de la perturbation  $\varepsilon_s$ . Pour être plus performant il faudrait sans doute développer des calculs plus complets de structures de bandes au voisinage de l'interface vicinale combinés avec des mesures de la dépendance spectrale de  $\varepsilon_s$ .

### 6.2.4 Conclusion

L'effet VISMOKE est un effet magnéto-optique nouveau que nous avons mis en évidence lors des mesures d'effet Kerr sur des films de cobalt sur des substrats vicinaux d'or. Cet effet trouve son origine dans la basse symétrie de l'interface vicinale et il entraîne un couplage des effets magnétiques et structuraux qui se manifeste par un terme supplémentaire dans le signal magnéto-optique global. Nous venons de voir que le modèle théorique développé par Jaroslav Hamrle [Hamrle et al., 2003; Hamrle, 2003] donne une description du VISMOKE en accord avec les résultats expérimentaux.

Dans la suite de ce chapitre nous allons étudier en détail les propriétés magnétiques des films de cobalt sur les surfaces vicinales d'or et nous devons garder à l'esprit l'existence du VISMOKE pour interpréter correctement nos résultats. Etant donné les nombreuses études magnéto-optiques menées sur des substrats vicinaux le VISMOKE est un effet très important dans l'étude du magnétisme des films ultraminces et de son lien avec la structure de l'interface. On peut s'attendre à ce que de nouveaux systèmes viennent confirmer, dans le futur, l'existence de cet effet.

## 6.3 Anisotropie magnétique dans les films de cobalt sur les surfaces vicinales d'or

Dans cette partie, nous voulons caractériser les propriétés magnétiques des films ultraminces de cobalt sur différentes surfaces vicinales d'or. Nous sommes particulièrement intéressés par la modification des propriétés d'anisotropie magnétique et de la transition de réorientation magnétique qui en découle. Le système Co/Au qui présente une anisotropie de surface perpendiculaire est particulièrement adapté à cette étude et nous allons voir que la vicinalité des interfaces a des conséquences importantes sur le magnétisme des films ultraminces.

### 6.3.1 Propriétés magnétiques des films de Co/Au(111)

Nous commençons par présenter nos mesures du magnétisme des films de cobalt sur Au(111) car ils nous serviront de référence pour discuter la modification des propriétés magnétiques des films de cobalt sur les substrats vicinaux d'or.

#### La transition de réorientation magnétique de Au/Co/Au(111)

Dans le but de caractériser précisément le magnétisme de nos échantillons nous avons effectué des mesures d'effet Kerr magnéto-optique en géométrie polaire sur des sandwichs Au(8 MC)/Co/Au(111) pour des épaisseurs de 4, 8 et 12 monocouches de cobalt. Les trois cycles d'hystérésis que nous avons mesurés sont représentés sur la figure 6.8

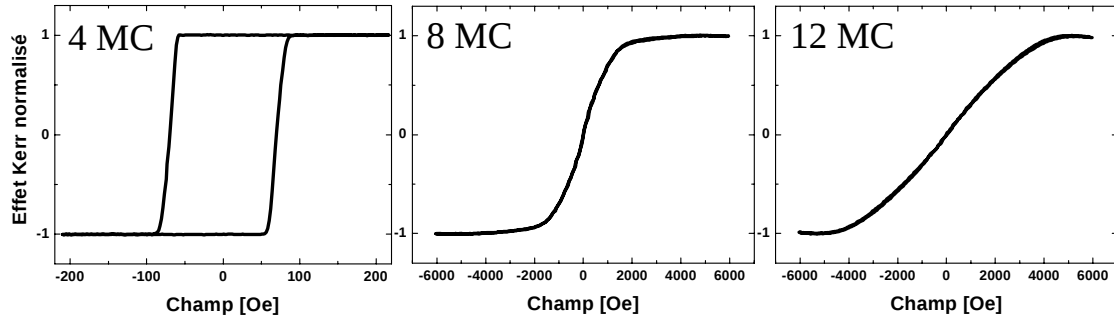


FIG. 6.8: Cycles d'hystérésis mesurés par effet Kerr polaire pour des échantillons Au(8 MC)/Co( $x$  MC)/Au(111) avec : a)  $x=4$  MC, b)  $x=8$  MC et c)  $x=12$  MC.

La figure 6.8.a présente le cycle d'hystérésis mesuré en champ polaire et en incidence normale sur Au/Co(4 MC)/Au(111). On observe un cycle carré dont le champ coercitif vaut 70 Oe. Ce résultat indique clairement l'existence d'une anisotropie uniaxiale perpendiculaire à la couche de cobalt. Cette anisotropie est bien connue et provient d'un terme d'interface Co/Au. Notons que la valeur du champ coercitif mesurée ici est relativement faible comparée à celles reportées dans la littérature sur des films de cobalt d'épaisseurs équivalentes déposés sur des substrats poly-cristallins [Chappert *et al.*, 1986b; Chappert *et Bruno*, 1988; Ferré *et al.*, 1990; Pommier *et al.*, 1990; Ferré *et al.*, 1997; Ding *et al.*, 2001; Langer *et al.*, 2001; Pütter *et al.*, 2001; Sellman *et al.*, 2001; Langer *et al.*, 2002]. Même si cette différence peut être attribuée à un retournement plus propagatif et à une densité de défauts plus faible au sein du film, le champ de 60 Oe que nous mesurons pour la nucléation est assez faible.

En comparant les trois cycles de la figure 6.8 on observe une réorientation de l'axe facile d'aimantation qui passe de perpendiculaire à la couche pour une épaisseur de 4 MC à parallèle à la couche pour une épaisseur de 8 MC. On estime donc l'épaisseur

de transition de réorientation de l'axe facile d'aimantation à 6 MC. Cette transition est due à l'annulation de la constante d'anisotropie globale de la couche magnétique et cette annulation intervient lorsque le terme d'anisotropie d'interface à tendance perpendiculaire est compensé par les termes d'anisotropie de volume et de forme à tendance planaire (cf. chapitre 1).

### Propagation de parois de domaines

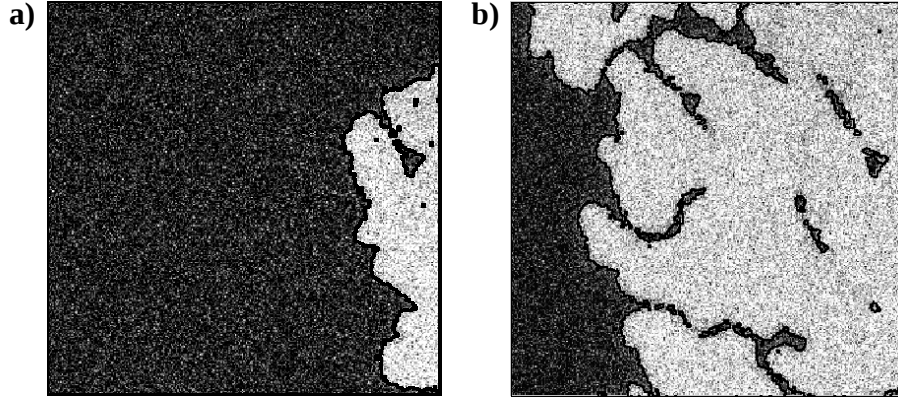


FIG. 6.9: Images ( $33 \times 33 \mu\text{m}^2$ ) de microscopie Kerr, la teinte noire ou grise est liée au signe de la composante perpendiculaire de l'aimantation : si les zones noires correspondent à un domaine d'aimantation "up", les zones grises correspondent à un domaine d'aimantation "down". a) La paroi apparaît dans la zone imagée après 2 secondes d'application d'un champ de 48 Oe. b) Image obtenue à partir de la situation a) après 1 seconde d'application d'un champ de 48 Oe.

Pour étudier la propagation de parois de domaines dans un film magnétique nous utilisons la technique d'imagerie par microscopie Kerr PMOKE [Hubert et Schafer, 1998]. On obtient une image magnétique après réflexion de la lumière sur l'échantillon entre deux polariseurs légèrement décroisés. Pour optimiser la résolution on utilise un objectif de microscope et on restitue l'image grâce à une caméra CCD. Le contraste observé est alors relié à la rotation Kerr. Cette technique permet notamment de suivre la propagation des parois séparant des domaines magnétiques d'aimantation perpendiculaire au plan du film et opposées.

La figure 6.9 montre les structures en domaines obtenues sous champ pour Au(8 MC)/Co(4 MC)/Au(111). Leur forme et leur propagation est assez isotrope ce qui a déjà été observé sur des substrats polycristallins [Allenspach et al., 1990; Pommier et al., 1990; Ferré et al., 1997]. On doit noter le caractère propagatif du renversement de l'aimantation par déplacement des parois de domaines. On observe cependant des points d'ancrage de ces parois sur des défauts qui conduisent à des structures filamenteuses non retournées correspondant à des parois à  $360^\circ$ .

### 6.3.2 Propriétés magnétiques des films de Co/Au(788)

Le substrat Au(788) présente une assez faible densité de marches (16 rangées atomiques par terrasse) et nous avons vu dans la partie précédente qu'il perturbe relativement peu la structure cristallographique du cobalt.

#### La transition de réorientation magnétique de Au/Co/Au(788)

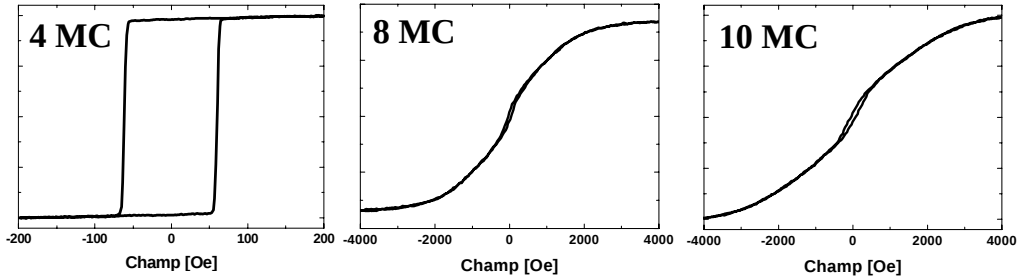


FIG. 6.10: Cycles d'hystérésis mesurés par effet Kerr polaire pour des échantillons Au(8 MC)/Co( $x$  MC)/Au(788) avec : a)  $x=4$  MC, b)  $x=8$  MC et c)  $x=10$  MC.

La figure 6.10.a montre le cycle d'hystérésis mesuré en champ polaire et en incidence normale sur Au/Co(4 MC)/Au(788). On observe un cycle carré dont le champ coercitif vaut 60 Oe. Ce résultat indique clairement l'existence d'une anisotropie uniaxiale perpendiculaire à la couche de cobalt. La valeur du champ coercitif mesurée ici est très voisine de celle mesurée pour le même dépôt sur Au(111) (70 Oe) ce qui indique la faible influence des marches lorsqu'elles sont, comme sur Au(788), présentes avec une faible densité. Nous savons que le rapport  $c/a$  qui détermine le rapport d'aspect de la maille de cobalt est un paramètre important pour les propriétés magnéto-cristallines et nous avons vu qu'il est sensiblement différent pour les films de 4 monocouches de cobalt sur Au(788) et sur Au(111)<sup>1</sup>. Malgré ces différences de structure et hormis la présence d'un très faible hystérésis à bas champ, on observe une grande similitude des cycles mesurés sur Au/Co(4 MC)/Au(788) et Au/Co(4 MC)/Au(111).

On observe, sur la figure 6.10, une réorientation de l'axe facile d'aimantation qui passe de perpendiculaire à la couche pour une épaisseur de 4 MC à parallèle à la couche pour une épaisseur de 8 MC. Si l'on compare les cycles mesurés pour une épaisseur de cobalt de 8 monocouches sur Au(788) (cf. figure 6.10.b) et Au(111) (cf. figure 6.8.b) on remarque que le champ de saturation est légèrement plus faible pour le film déposé sur Au(111). Puisque l'aimantation est déjà planaire à cette

---

<sup>1</sup>Pour un empilement hc idéal ce rapport vaut  $c/a = \sqrt{8/3} \approx 1,63$ , pour le cobalt massif il vaut  $c/a \approx 1,62$ , dans le cas de Au(8 MC)/Co(4 MC)/Au(111) on a trouvé  $c/a \approx 1,66$  et dans le cas de Au(8 MC)/Co(4 MC)/Au(788) on a trouvé  $c/a \approx 1,68$

épaisseur on en déduit que l'anisotropie du film de 8 monocouches sur Au(788) est légèrement plus élevée en valeur absolue. L'épaisseur de basculement correspondant à l'annulation de l'anisotropie magnétique est donc légèrement décalée vers les faibles épaisseurs.

### Orientation de l'axe de facile aimantation

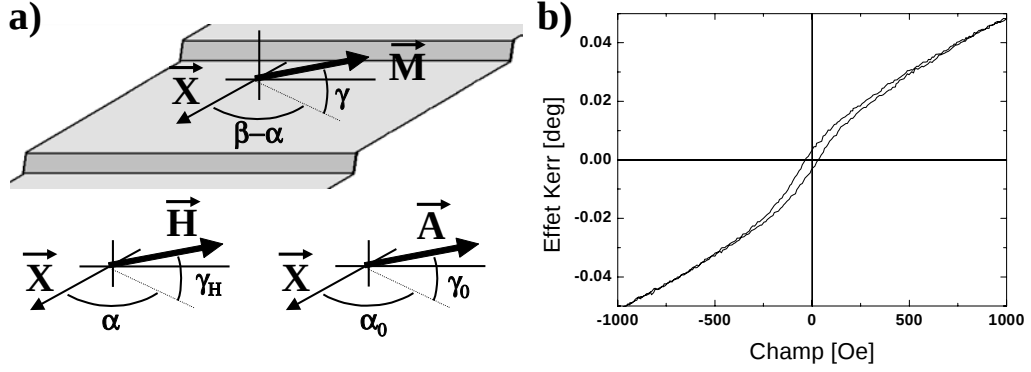


FIG. 6.11: a) Schéma des conventions pour les angles qui repèrent le champ  $\vec{H}$ , l'aimantation  $\vec{M}$  et l'axe d'anisotropie magnétique  $\vec{A}$  par rapport à la direction vicinale  $\vec{X}$ . b) Détail du cycle d'hystérésis mesuré par effet Kerr polaire pour Au(8 MC)/Co(8 MC)/Au(788)

Nous voulons maintenant déterminer plus précisément la direction de l'axe facile d'aimantation du système Au/Co(8 MC)/Au/(788). On peut en effet se poser la question de l'orientation de cet axe par rapport aux bords de marche. Le schéma 6.11.a résume nos notations et schématise les orientations du champ  $\vec{H}$ , de l'aimantation  $\vec{M}$  et de l'axe d'anisotropie magnétique  $\vec{A}$  par rapport à la direction vicinale  $\vec{X}$ . En accord avec la figure 6.1,  $\alpha$  est l'angle entre la composante planaire du champ  $\vec{H}$  et la direction vicinale  $\vec{X}$ ,  $\beta - \alpha$  est l'angle entre la composante planaire de l'aimantation  $\vec{M}$  et la direction vicinale  $\vec{X}$  et  $\gamma$  est l'angle entre la composante perpendiculaire de l'aimantation  $\vec{M}$  et la normale au film. En complément de ces angles on définit l'angle  $\gamma_H$  entre la composante perpendiculaire du champ  $\vec{H}$  et la normale au film, l'angle  $\gamma_0$  entre l'axe d'anisotropie magnétique  $\vec{A}$  et la normale au film et l'angle  $\alpha_0$  entre la projection planaire de l'axe d'anisotropie magnétique  $\vec{A}$  et la direction vicinale  $\vec{X}$ .

La figure 6.11.b montre le détail du cycle polaire de la figure 6.10.b. On observe que l'aimantation rémanente n'est pas nulle ce qui nous permet de déterminer un angle de désorientation de l'axe de facile aimantation par rapport au plan du film :  $\gamma_0 = \arcsin(M_{rem.}/M_{sat.}) \simeq 2^\circ$ .

Nous pouvons maintenant effectuer des mesures magnéto-optique pour déterminer la direction de l'aimantation dans le plan du film. Il faut se rappeler que

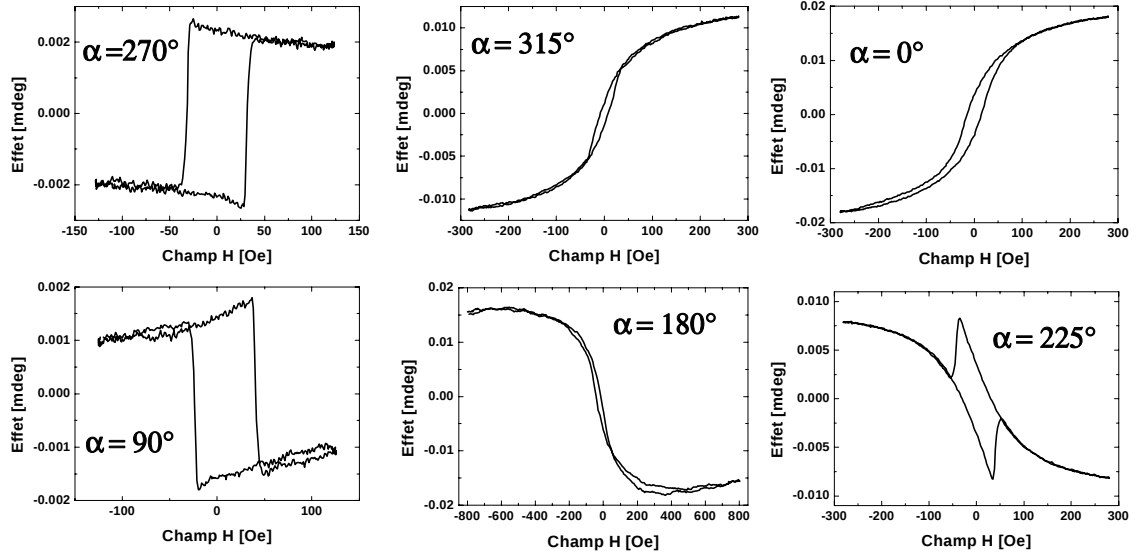


FIG. 6.12: Cycles mesurés sur  $Au(8\text{ MC})/Co(8\text{ MC})/Au(788)$  en incidence normale, en champ planaire ( $\gamma_H = 0^\circ$ ) et pour différentes valeurs de  $\alpha$

l'interface vicinale induit un effet magnéto-optique supplémentaire : le VISMOKE. Nous avons présenté cet effet de manière détaillée dans la partie précédente et nous n'allons pas revenir sur son interprétation. On effectue des mesures en incidence normale et en champ planaire ( $\gamma_H = 0$ ). On sait que, dans cette configuration, on va mesurer un effet polaire PMOKE dû à la désorientation  $\gamma_0$  et un effet VISMOKE dont l'amplitude varie avec l'angle azimutal  $\alpha$ . La figure 6.12 résume les mesures faites avec une orientation  $\alpha$  variable. Ces cycles nous permettent de déterminer la direction de la projection de l'axe facile d'aimantation sur le plan du film. On attend en effet que lorsque le champ est appliqué selon l'axe de facile aimantation on mesure un cycle d'hystérésis carré avec un champ coercitif minimum. Ici, on obtient un tel cycle pour  $\alpha = 90^\circ$  et  $270^\circ$  et on a donc un axe d'anisotropie parallèle aux bords de marche correspondant à  $\alpha_0 = 90^\circ$ .

Les cycles carrés mesurés pour  $\alpha = 90^\circ$  et  $270^\circ$  sont des cycles purement polaires dus à la faible désorientation de l'axe d'anisotropie par rapport au plan du film<sup>1</sup>. L'amplitude de ces cycles polaires est de l'ordre de 1,5 mdeg contre 2 mdeg pour le cycle de la figure 6.11.b<sup>2</sup>. Cette différence peut être attribuée à l'incertitude expé-

<sup>1</sup>Les cycles polaires ( $\alpha = 90^\circ$  et  $270^\circ$ ) de la figure 6.12 appelle une remarque importante que nous avons déjà faite lors de l'étude du VISMOKE sur le film de 5 monocouches déposé sur le substrat  $Au(233)$  (cf. chapitre 3). La symétrie miroir de l'interface vicinal devrait induire la coexistence de deux axes d'anisotropie dégénérés et conduire à un signal polaire nul or ce n'est pas du tout ce que l'on observe. Comme nous l'avons déjà souligné nous avons considéré qu'il existe une légère désorientation azimutale de la surface vicinale qui explique l'existence d'une anisotropie uniaxiale.

<sup>2</sup>Les amplitudes des cycles de la figure 6.12 résultent d'un étalonnage fait dans les mêmes

rimentale sur l'angle  $\gamma_H$ . Il n'est pas facile d'orienter le champ magnétique dans le plan d'un échantillon de  $12 \text{ mm}^2$  avec une précision meilleure que  $0,5^\circ$ . La valeur du signal polaire de  $1,5 \text{ mdeg}$  correspond à  $\gamma_0 = 1^\circ$  et nous concluons donc sur ce point en considérant que  $\gamma_0 = 1,5^\circ \pm 0,5^\circ$ .

Finalement, on a déterminé l'orientation de l'axe de facile aimantation qui est quasi-planaire ( $\gamma_0 \simeq 1,5^\circ$ ) et parallèle aux bords de marche ( $\alpha_0 = 90^\circ$ ).

Connaissant l'orientation de l'axe de facile aimantation nous avons voulu effectuer des mesures supplémentaires pour vérifier la cohérence de nos résultats. Nous avons tout d'abord effectué des mesures en appliquant un champ magnétique dans le plan perpendiculaire à  $\vec{X}$  ( $\alpha = 90^\circ$ ) avec différentes orientations de l'angle  $\gamma_H$ . A saturation, l'aimantation s'aligne selon le champ et  $\gamma = \gamma_H$ . Compte tenu des déterminations précédentes on s'attend donc à mesurer un signal magnétique qui, à fort champ, doit, soit saturer en augmentant si  $\gamma_H > \gamma_0$ , soit rester constant si  $\gamma_H \approx \gamma_0$ , soit saturer en diminuant si  $\gamma_H < \gamma_0$ . Les résultats de ces mesures sont présentés sur la figure 6.13. On voit que le cycle qui correspond au cas  $\gamma_H \approx \gamma_0$  est obtenu pour  $\gamma_H \approx 1^\circ$  ce qui confirme la désorientation  $\gamma_0$  de l'axe de facile aimantation.

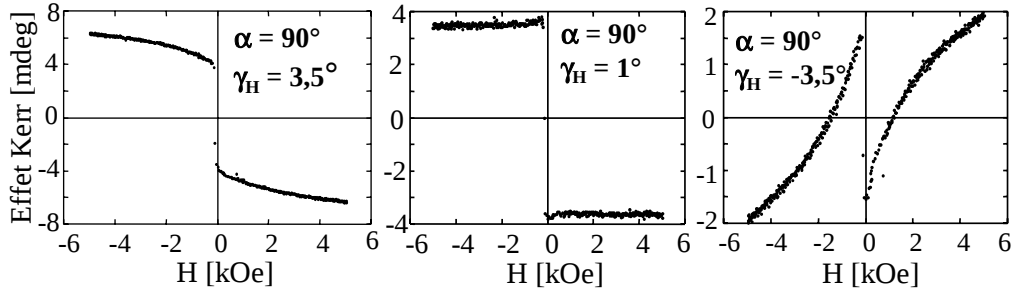


FIG. 6.13: *Cycles mesurés sur  $\text{Au}(8 \text{ MC})/\text{Co}(8 \text{ MC})/\text{Au}(788)$  pour  $\alpha = \alpha_0 = 90^\circ$  et différentes valeurs de  $\gamma_H$ . L'étalonnage des mesures n'est pas correct et les valeurs des effets ne peuvent pas être utilisées.*

Puisque l'aimantation présente une désorientation par rapport au plan du film il est légitime de se demander si l'application d'un champ magnétique perpendiculaire aux bords de marche ( $\alpha = 0^\circ$  ou  $180^\circ$ ) n'induit pas une rotation hélicoïdale de l'aimantation. En d'autres termes, lorsque l'aimantation s'oriente perpendiculairement à l'axe d'anisotropie sous l'effet du champ est-ce que la rotation en  $\beta$  n'est pas accompagnée d'une rotation en  $\gamma$ ? Pour répondre à cette question nous avons effectué des mesures en appliquant le champ magnétique avec  $\alpha = 0^\circ$  et en variant l'angle  $\gamma_H$ . La figure 6.14 présente les résultats de ces mesures. Il apparaît clairement que lorsque le champ appliqué est purement planaire ( $\gamma_H = 0^\circ$ ) l'aimantation pivote dans le plan perpendiculaire aux marches tout en sortant du plan ( $\gamma$  augmente),

---

conditions que pour les cycles des figures 6.10 et 6.11.b.

le signal atteint alors une valeur maximale de 17 mdeg qui est bien la valeur mesurée sur le troisième cycle de la figure 6.12. Ensuite, à fort champ, l'aimantation bascule doucement le long du champ et le signal polaire tend vers 0 ce qui signifie que le signal total tend vers la valeur maximale du VISMOKE que l'on peut estimer à 7 mdeg. Lorsque l'on applique le champ avec  $\gamma_H = 12^\circ$  on obtient un effet de 20 mdeg, constant à fort champ.

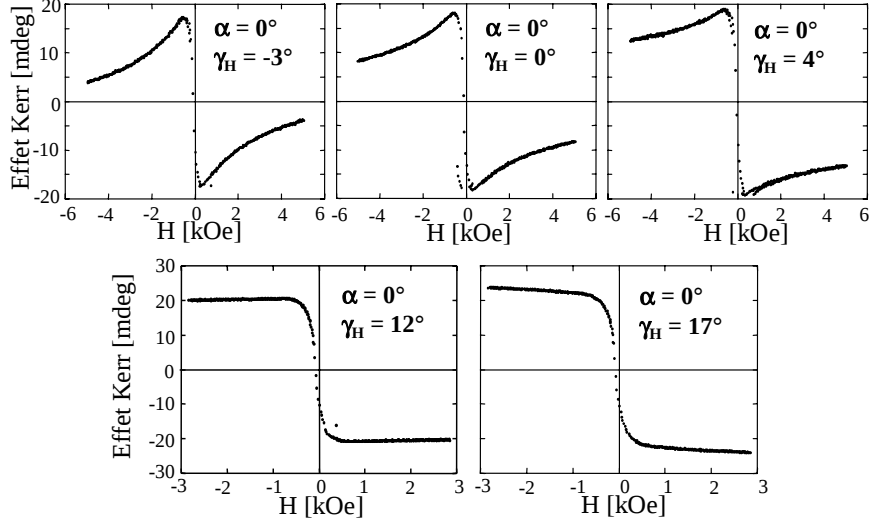


FIG. 6.14: Cycles mesurés sur  $Au(8 MC)/Co(8 MC)/Au(788)$  pour  $\alpha = 0^\circ$  et différentes valeurs de  $\gamma_H$

En conclusion on peut dire qu'il existe un axe d'anisotropie principal caractérisé par les angles  $\alpha_0 = 90^\circ$  et  $\gamma_0 \simeq 1^\circ$  et un axe secondaire caractérisé par les angles  $\alpha'_0 = 0^\circ$  et  $\gamma'_0 = 12^\circ$ . Un tel axe secondaire correspond à un minimum local, faiblement marqué, de l'énergie magnétique qui se révèle sous champ. Cet effet peut sans doute être expliqué par un terme d'anisotropie magnéto-cristalline de plus haute symétrie qu'un terme uniaxial.

### Propagation de parois de domaines magnétiques

Le système  $Au/Co(4 MC)/Au(788)$  présente un axe facile d'aimantation perpendiculaire. Une question se pose néanmoins sur la propagation des parois de domaines dans ce système : les marches peuvent elles induire une anisotropie de cette propagation ?

La figure 6.15 montre deux images obtenues en microscopie Kerr. Entre ces deux images, on a appliqué, pendant un temps de 1300 s, un champ magnétique perpendiculaire de 40 Oe. On observe un gros domaine dont la propagation se fait de manière plutôt isotrope et décorrélée de la direction des marches (repérée par la flèche sur l'image de la figure 6.15.a). Comme pour le dépôt sur  $Au(111)$ , on peut

voir qu'il y a parfois accrochage de la paroi sur des défauts et que la structure en filament qui en résulte correspond à une paroi à  $360^\circ$ .

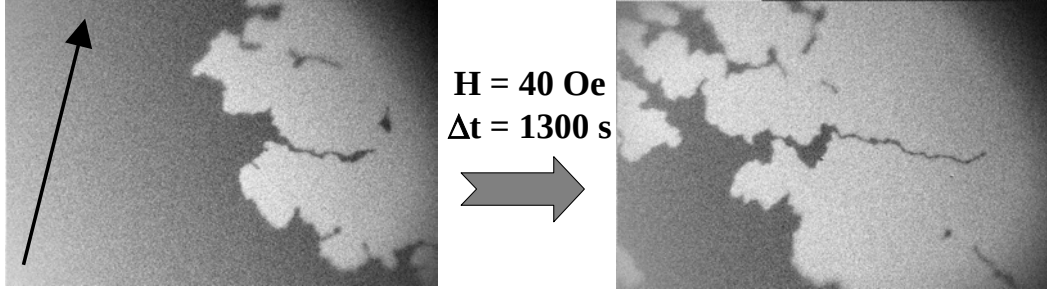


FIG. 6.15: Images de microscopie magnéto-optique montrant la propagation de parois de domaines sur l'échantillon  $\text{Au}/\text{Co}(4 \text{ MC})/\text{Au}(788)$ . La flèche sur l'image de gauche représente la direction des bords de marche. Le contraste correspond à la composante polaire de l'aimantation, les zones foncées sont les zones d'aimantation "down" alors que les zones plus claires sont celles d'aimantation "up". Entre les deux images on a appliqué un champ polaire de  $+40 \text{ Oe}$  pendant  $1300 \text{ s}$ .

Le fait que les marches du substrat  $\text{Au}(788)$  n'influence pas la propagation de parois de domaines magnétiques sur le film de 4 monocouches de cobalt n'est pas vraiment surprenant si l'on considère que la largeur des terrasses ( $3,8 \text{ nm}$ ) y est plutôt plus faible que la largeur de paroi ( $\approx 10 \text{ nm}$ ) [Allenspach et al., 1990] et que l'épaisseur du film ( $4 \text{ MC}$ ) est assez grande devant la hauteur de marche ( $1 \text{ MC}$ ).

### 6.3.3 Propriétés magnétiques des films de $\text{Co}/\text{Au}(322)$

Le substrat  $\text{Au}(322)$  présente une densité de marches assez élevée (5 rangées atomiques par terrasse) et nous voulons voir comment cela peut modifier les propriétés magnétiques des films de cobalt ultra-minces.

#### La transition de réorientation magnétique de $\text{Au}/\text{Co}/\text{Au}(322)$

Nous avons effectué des mesures d'effet Kerr polaire sur des sandwichs  $\text{Au}/\text{Co}/\text{Au}(322)$  avec plusieurs épaisseurs du film de cobalt pour caractériser la transition de réorientation de l'aimantation. Les mesures d'effet Kerr polaire sur des sandwichs  $\text{Au}(8 \text{ MC})/\text{Co}(x)/\text{Au}(322)$  avec  $x=3, 4$  et  $5 \text{ MC}$  sont présentées sur la figure 6.16.

Sur le cycle de la figure 6.16.b on observe que le film  $\text{Au}(8 \text{ MC})/\text{Co}(4 \text{ MC})/\text{Au}(322)$  présente une aimantation inclinée. On peut estimer l'angle  $\gamma_0$  de désorientation de l'axe de facile aimantation avec le plan de la surface en calculant le rapport entre le signal à rémanence et celui à saturation. On obtient  $\gamma_0 \simeq 14^\circ$ .

Sur la figure 6.16, on observe une transition de réorientation entre un système à anisotropie quasi perpendiculaire pour  $x=3 \text{ MC}$  et une anisotropie quasi planaire

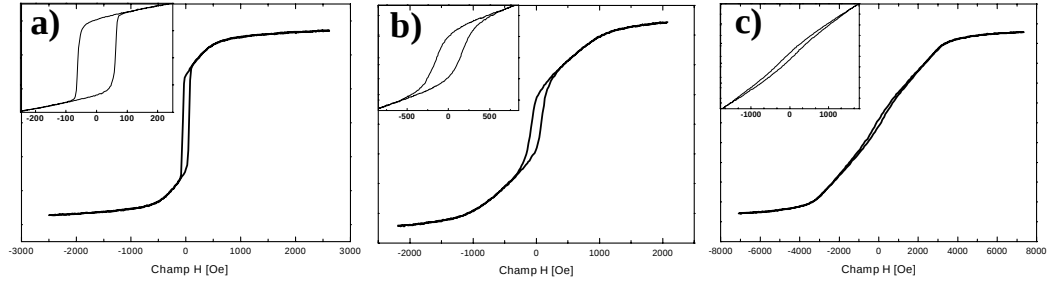


FIG. 6.16: *Cycles d'hystérésis polaires : a) Au(8 MC)/Co(3 MC)/Au(322), b) Au(8 MC)/Co(4 MC)/Au(322), c) Au(8 MC)/Co(5 MC)/Au(322) (identique à la figure 6.3.d).*

pour  $x=5$  MC. Notons que pour 3 MC le champ coercitif vaut 80 Oe, valeur voisine de celles mesurées sur le même dépôt sur les films de 4 MC à anisotropie perpendiculaire sur Au(111) (70 Oe) et Au(788) (60 Oe).

### Orientation de l'axe de facile aimantation

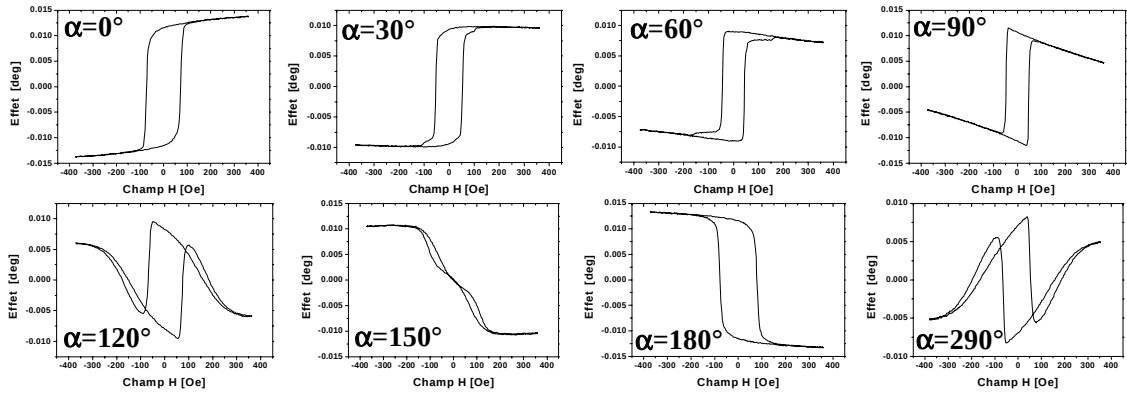


FIG. 6.17: *Cycles mesurés sur Au(8 MC)/Co(3 MC)/Au(322) en incidence normale et champ planaire ( $\gamma_H = 0^\circ$ ) pour différentes valeurs de  $\alpha$*

Nous allons maintenant essayer de déterminer l'évolution de la direction de l'axe d'anisotropie au cours de la transition de réorientation magnétique. Cet axe est décrit par les deux angles  $\beta_0$  et  $\gamma_0$  schématisés sur la figure 6.11. Nous avons vu lors de l'étude précédente sur Au(788) que  $\gamma_0$  peut être déterminé de deux manières. Il est donné par une mesure de cycle d'hystérésis polaire en utilisant la relation  $\gamma_0 = \arcsin(M_{rem}/M_{sat})$ . On peut aussi le calculer grâce à une mesure en incidence normale et en champ planaire avec  $\alpha = 90^\circ$ . Pour ce qui est de l'angle  $\alpha_0$ , on le

détermine en faisant une série de mesures en configuration transverse avec différentes orientations azimutales du champ par rapport aux bords de marches. On repère alors l'apparition d'un cycle carré lorsque le champ est appliqué selon l'axe de facile aimantation. De manière plus précise, on détermine l'angle  $\alpha_0$  que fait l'axe de facile aimantation avec la direction vicinale en mesurant l'angle  $\alpha$  qui correspond au minimum de champ coercitif.

Les cycles polaires qui permettent la détermination de  $\gamma_0$  sont reproduits sur la figure 6.16. Les cycles mesurés en géométrie transverse et pour une direction azimutale de champ variable sont reproduits sur la figure 6.17 pour le cas du système Au(8 MC)/Co(3 MC)/Au(322). La figure 6.18 montre l'analyse de l'évolution du champ coercitif mesuré en incidence normale et champ planaire pour Au(8 MC)/Co(3 MC)/Au(322) en fonction de l'orientation  $\alpha$  de l'échantillon. On voit que dans ce cas le maximum de champ coercitif est obtenu pour  $\alpha \simeq 150^\circ$  et  $330^\circ$  alors qu'un minimum de champ coercitif est observé pour  $\alpha \simeq 60^\circ$ . Ce type d'analyse permet de déterminer  $\alpha_0$ , pour Au(8 MC)/Co(3 MC)/Au(322)  $\alpha_0 \simeq 60^\circ$ .

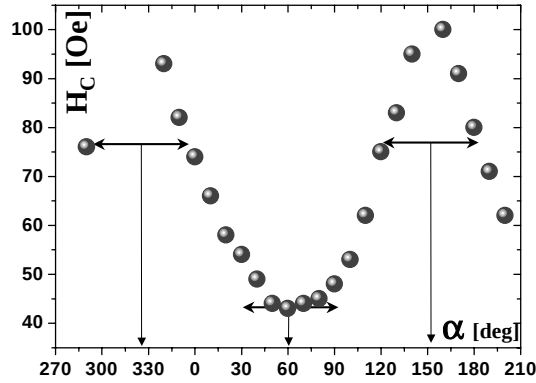


FIG. 6.18: *Evolution du champ coercitif mesuré en incidence normale et champ planaire pour Au(8 MC)/Co(3 MC)/Au(322) en fonction de l'orientation  $\alpha$  de l'échantillon.*

De telles séries de mesures, faites sur les échantillons Au(8 MC)/Co(x MC)/Au(322) avec  $x=3, 4$  et  $5$  nous ont permis de déterminer la direction de facile aimantation pour de tels films. Ces résultats sont synthétisés dans le tableau 6.2 ci-dessous qui donnent les angles  $\gamma_0$  et  $\alpha_0$  qui décrivent cet axe d'anisotropie.

On voit ici clairement que la transition de réorientation de l'aimantation dans le cas d'un film ultramince de cobalt sur la surface Au(322) est non seulement décalée en épaisseur par rapport au cas de la surface Au(111) mais qu'elle procède par une lente rotation hélicoïdale de l'axe d'anisotropie.

|                            | 3 MC       | 4 MC       | 5 MC       |
|----------------------------|------------|------------|------------|
| $\gamma_0(\pm 0, 5^\circ)$ | $28^\circ$ | $13^\circ$ | $2^\circ$  |
| $\alpha_0(\pm 5^\circ)$    | $60^\circ$ | $75^\circ$ | $90^\circ$ |

TAB. 6.2: Tableau récapitulatif des angles  $\gamma_0$  et  $\alpha_0$  que fait l'aimantation avec le plan du film et les bords de marches pour des films de 3 ; 4 et 5 MC de cobalt sur Au(322).

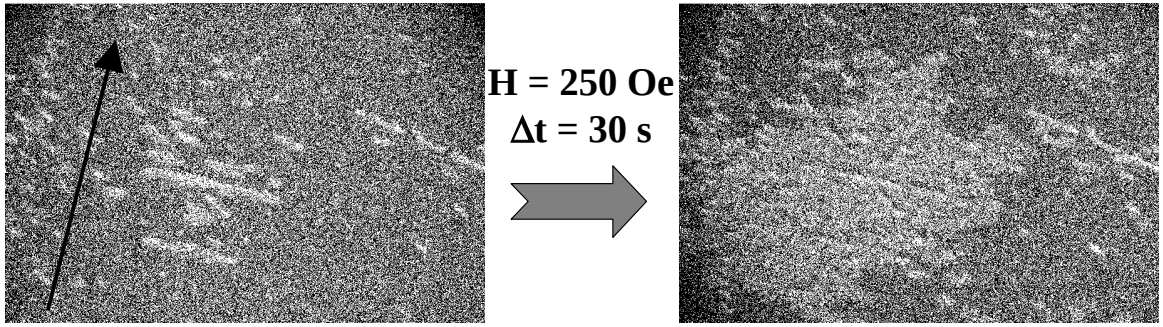


FIG. 6.19: Images de microscopie magnéto-optique montrant l'évolution de la structure en domaines magnétiques sur l'échantillon Au/Co(4 MC)/Au(322). La flèche sur l'image de gauche représente la direction des bords de marche. Le contraste correspond à la composante polaire de l'aimantation, les zones foncées sont les zones d'aimantation "down" alors que les zones plus claires sont celles d'aimantation "up". Les deux images sont enregistrées en champ nul. Entre les deux images on a appliqué un champ polaire de +250 Oe pendant 30 s.

### 6.3.4 Propagation de parois de domaines magnétiques

Le système Au/Co(4 MC)/Au(322) présente un axe facile d'aimantation incliné tel que la composante polaire de l'aimantation nous permet d'effectuer une imagerie magnétique en microscopie magnéto-optique par effet Kerr. La figure 6.19 montre deux de ces images entre lesquelles on a appliqué, pendant un temps de 30 s, un champ magnétique polaire de 250 Oe. Remarquons que, contrairement à l'étude précédente sur Au(788), le retournement de l'aimantation est plutôt nucléatif et on observe de nombreux petits domaines dont la propagation se fait difficilement à cause de défauts qui sont des points d'ancrage pour les parois. On peut cependant noter que cette propagation semble se faire de manière plutôt isotrope et décorrélée de la direction des marches.

### 6.3.5 Propriétés magnétiques des films de Co/Au(755)

La surface Au(755) est très semblable à la surface Au(322) puisque la seule différence est que ses terrasses contiennent 6 rangées atomiques contre 5 pour Au(322). Les mesures magnétiques que nous présentons ici sont donc, logiquement, en accord avec celles faites sur Co/Au(322) et présentées dans la partie précédente. Cette étude sur Au(755) a pour but de montrer la grande similitude des propriétés magnétiques des films Co/Au(322) et Co/Au(755). Pour cela nous n'avons pas fait une étude détaillée de la transition de réorientation de l'aimantation mais nous présentons les mesures réalisées sur un film de 5 monocouches de cobalt.

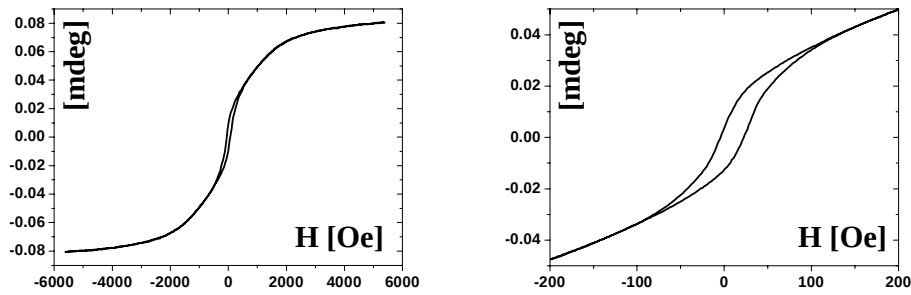


FIG. 6.20: Cycles d'hystérésis polaires mesurés sur Au(8 MC)/Co(5 MC)/Au(755).

La figure 6.20 montre le cycle polaire mesuré sur Au(8 MC)/Co(5 MC)/Au(755). Comme sur Au(322) on voit que cette épaisseur correspond à une aimantation quasi planaire. Sur la figure 6.20 on peut estimer l'angle  $\gamma_0$  de désorientation de l'axe de facile aimantation avec le plan de la surface en calculant le rapport entre le signal à rémanence et celui à saturation. On obtient  $\gamma_0 = 7,5^\circ$ .

Les cycles mesurés en incidence normale et en champ planaire sur le système Au(8 MC)/Co(5 MC)/Au(755) et pour une direction azimutale de champ variable sont reproduits sur la figure 6.21. Ces cycles permettent de déterminer la direction de facile aimantation et notamment l'angle  $\alpha_0$ . On sait que l'on mesure un cycle d'hystérésis carré lorsque le champ est appliqué selon l'axe de facile aimantation. Sur la figure 6.21 on voit que c'est le cas pour  $\alpha = 90^\circ$  ou  $270^\circ$  et on en déduit que la composante planaire de l'aimantation est parallèle aux bords de marche avec  $\alpha_0 = 90^\circ$ .

Comme les films de 4 et 5 monocouches de cobalt sur Au(322), le système Au(8 MC)/Co(5 MC)/Au(755) présente une aimantation quasiment dans le plan du film avec un angle  $\gamma_0$  très faible. La composante planaire de l'aimantation ressent, dans les deux cas, une anisotropie magnétique qui l'oriente parallèlement aux bords des marches.

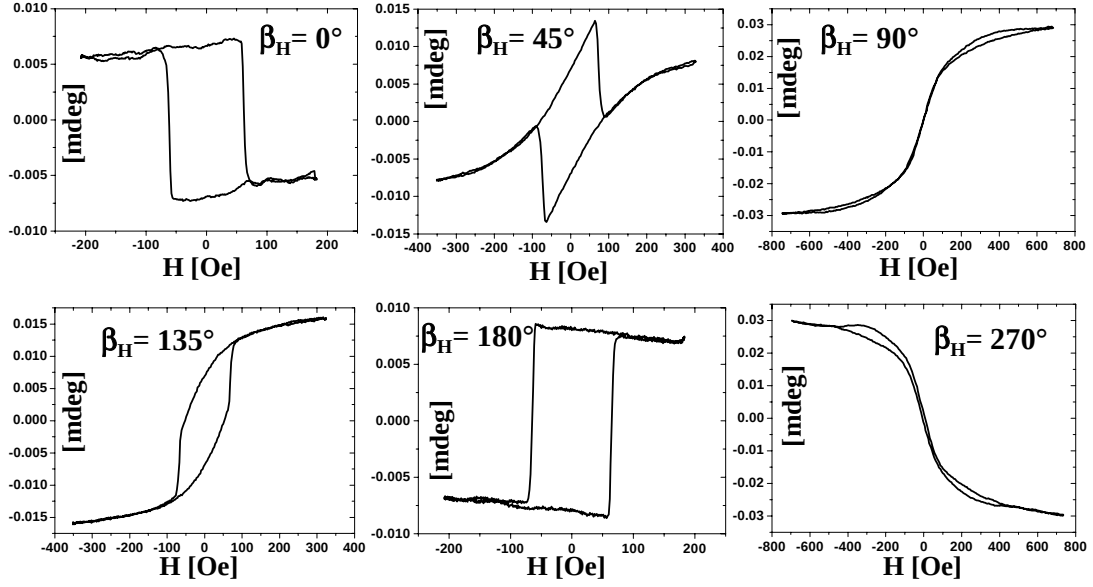


FIG. 6.21: *Cycles d'hystérésis mesurés en incidence normale et en champ planaire sur Au(8 MC)/Co(5 MC)/Au(755) pour différentes orientations  $\alpha$  du champ magnétique.*

### 6.3.6 Conclusion

Pour conclure cette partie expérimentale sur les propriétés magnétiques des films de cobalt sur les substrats vicinaux d'or rappelons en les deux principaux résultats.

- La transition de réorientation magnétique pour un film ultramince de cobalt déposé sur une surface vicinale d'or est très semblable à celle que l'on observe sur la surface Au(111) tant que la densité de marches est faible (comme sur Au(788)) mais elle est décalée à des épaisseurs plus faibles et s'opère par une lente rotation hélicoïdale de l'axe d'anisotropie dans le cas de films de cobalt sur un substrat à haute densité de marches (comme Au(322) et Au(755)).
- Lorsque l'épaisseur est telle que le film présente une aimantation avec une grande composante planaire, il existe une anisotropie au sein du plan du film qui oriente cette composante parallèlement aux bords de marches.

## 6.4 Relation entre le magnétisme et la structure des films ultra-minces de cobalt sur les surfaces vicinales d'or

Nous venons de voir comment la vicinalité des substrats d'or modifie la transition de réorientation magnétique des films ultraminces de cobalt. Nous présentons dans cette partie différents éléments structuraux qui peuvent expliquer une transition de réorientation magnétique décalée en épaisseur, intervenant sur une large gamme d'épaisseur et de manière hélicoïdale.

### 6.4.1 La transition de réorientation magnétique sur Au(111)

Dans la partie précédente nous avons estimé expérimentalement l'épaisseur de transition de réorientation de l'axe facile d'aimantation à 6 MC pour le système Au/Co/Au(111). En utilisant l'hamiltonien d'un film mince écrit au chapitre 1 on peut estimer de manière théorique cette épaisseur de transition en annulant l'énergie magnétique du film :

$$E_{film} = \left( K_v + K_d + \frac{K_s}{t} \right) \sin^2 \theta \quad \text{donc} \quad t_{TRM} = \frac{K_s}{|K_d| - K_v} \quad (6.15)$$

Si on utilise les valeurs pour Au/Co/Au(111) que l'on trouve dans la littérature c'est à dire  $K_d = -1,2 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}$ , avec  $K_v = 4 \times 10^5 \text{ J.m}^{-3}$  et  $K_s = 10^{-3} \text{ J.m}^{-2}$  [Bruno, 1988b] ou bien  $K_v = 7,5 \times 10^5 \text{ J.m}^{-3}$  et  $K_s = 0,6 \times 10^{-3} \text{ J.m}^{-2}$  [Grolier et al., 1993], on obtient une épaisseur de basculement de l'aimantation  $t_{TRM} = 1,1 \text{ nm}$  soit  $t_{TRM} = 5,5 \text{ MC}$  ce qui correspond assez bien à nos résultats expérimentaux.

### 6.4.2 L'effet de la rugosité de surface : le cas des surfaces vicinales

D'une manière générale, peu de travaux ont été réalisés sur la réorientation de l'aimantation pour un système à anisotropie perpendiculaire vicinal. La majorité des études présentes dans la littérature traitent de l'influence de l'anisotropie de marches sur l'orientation de l'aimantation dans le plan du film [Hyman et al., 1998; Kawakami et al., 1998; Qiu et Bader, 1999; Elmers et al., 2000; Cherifi et al., 2001]. Que ce soit qualitativement, en montrant l'existence d'une réorientation parallèle ou perpendiculaire aux marches, ou quantitativement, en reliant l'épaisseur de réorientation à la densité de marches, toutes ces études démontrent clairement l'importance de l'anisotropie de marche dans les systèmes vicinaux. Dans le cas des systèmes à anisotropie perpendiculaire, seuls les systèmes Ni/Cu [Dhesi et al., 1999; Shick et al., 1999; Jähnke et al., 2001] et Fe/Ag [Kawakami et al., 1996] ont été étudiés. Ces travaux ont mis en évidence l'importance de l'anisotropie magnéto-cristalline et

magnéto-élastique de marche et ont illustré la possibilité d'observer une transition de réorientation magnétique modifiée par la présence de ces marches<sup>1</sup>.

## Présentation de l'effet de rugosité de surface

Dans le chapitre 1 nous avons considéré un volume ferromagnétique infini d'énergie  $E_v$  puis nous avons introduit des surfaces qui ont brisé la symétrie du volume et donné une contribution  $E_s$  à l'énergie du système. De façon analogue, à une surface qui présente une rugosité, c'est à dire des marches atomiques, doit être associé un terme énergétique supplémentaire. L'introduction d'une rugosité en surface d'un film mince ferromagnétique a déjà été discutée dans la littérature [Yafet *et al.*, 1986; Bruno, 1988a; Bruno, 1988b; Albrecht *et al.*, 1992; Chuang *et al.*, 1994; Pouloupoulos *et al.*, 1999] et nous allons ici en donner une rapide description.

• **Anisotropie magnéto-cristalline de marche** : Avec le même raisonnement que Néel employa pour introduire l'anisotropie magnéto-cristalline de surface on peut considérer une marche atomique en surface comme un site d'environnement atomique sous-coordonné. On attribue à cet effet une densité volumique d'énergie d'anisotropie dont la dépendance angulaire peut être variée et intègre les angles  $\theta$  et  $\phi$  que fait l'aimantation avec la normale au film et le bord de marche<sup>2</sup>. Si on considère un réseau de marches atomiques identiques et distantes d'une largeur de terrasse  $L$  on peut écrire :

$$E_m^{mc} = \frac{K_m^{mc}}{tL} f(\theta, \phi) \quad (6.16)$$

$K_m$  est la constante d'anisotropie de marche magnéto-cristalline.  $f(\theta, \phi)$  est une fonction qui détermine le paysage énergétique du à cette anisotropie. Toute la difficulté est d'utiliser le modèle de Néel pour calculer  $K_m$  et  $f(\theta, \phi)$ . On peut noter que dans une approche plus générale d'anisotropie magnéto-cristalline isotrope P. Bruno [Bruno, 1988b] a évalué la modification de l'anisotropie de surface due à une rugosité  $(h, L)$  :  $\Delta K_s/K_s = -2h/L$  ce qui conduit à une correction énergétique magnéto-cristalline de rugosité :

$$E_m^{mc} = -2K_s \frac{h}{tL} \sin^2 \theta \quad (6.17)$$

• **Anisotropie dipolaire de marche** : Le tenseur de champ démagnétisant  $[N]$  qui contient toute la géométrie du système peut être compliqué à calculer et

---

<sup>1</sup>On peut remarquer que le système Ni/Cu présente une double réorientation magnétique avec une transition d'un état planaire à faible épaisseur à un état perpendiculaire vers 9-10 MC. Dans ce système les effets magnéto-élastiques sont très importants et induisent une rotation hélicoïdale de l'aimantation avec une réorientation dans le plan simultanée à la réorientation hors-plan [Dhesi *et al.*, 1999; Shick *et al.*, 1999; Jähnke *et al.*, 2001].

<sup>2</sup>On considère des marches rectilignes. L'angle  $\phi$  est un angle orienté.

on préfère ici procéder en deux étapes. On fait l'approximation du film ultramince parfait ( $[N] \equiv N_{zz} = 1$ ) puis on introduit l'effet des marches en surface. On a alors deux contributions envisageables : la première correspond à la rugosité intrinsèque des interfaces, la seconde est un terme de couplage entre les deux interfaces si les rugosités de celles-ci sont spatialement corrélées [Neel, 1962]. L'origine et le calcul de ces deux effets sont présentés dans l'annexe B. Le premier effet est prédominant et il a tendance à aligner l'aimantation parallèlement aux marches. On peut donc tenir compte de l'existence de marches atomiques en surface par l'introduction du terme dipolaire suivant :

$$E_m^{dip} = -\epsilon K_d \sin^2 \theta \quad \text{avec} \quad 0 \leq \epsilon \equiv \epsilon(h, L, t, \phi) \ll 1 \quad (6.18)$$

Finalement, l'effet de rugosité peut être résumé dans une constante d'anisotropie de marches  $K_m$  et le bilan énergétique pour un film magnétique ultra-mince déposé sur un substrat vicinal peut s'écrire :

$$E_{film} = \left( K_v + K_d + \frac{K_s}{t} + \frac{K_m}{tL} \right) \sin^2 \theta \quad (6.19)$$

$$\text{avec} \quad K_m = -2hK_s - \epsilon t L K_d \quad (6.20)$$

## Discussion expérimentale de l'effet de rugosité de surface

Les effets dipolaires de rugosité ont tendance à abaisser la barrière de basculement de l'aimantation dans le plan. Ces effets sont faibles et apportent une correction minime (quelques %) à l'énergie dipolaire. S'il ne peuvent pas expliquer un décalage dans l'épaisseur de basculement de l'aimantation ces effets peuvent jouer un rôle dans l'orientation de la composante planaire de l'aimantation. Ces effets dipolaires peuvent expliquer l'aimantation parallèle aux bords de marches que nous observons lorsque celle-ci est planaire. Notons que cette orientation parallèle aux bords de marche n'est pas compatible avec un modèle magnéto-cristallin simple qui prend en compte les interactions aux premiers voisins. Un tel modèle explique l'existence d'un terme d'anisotropie de surface perpendiculaire mais conduit systématiquement à un terme d'anisotropie magnéto-cristalline de bords de marche avec  $\alpha_0 = 90^\circ$ .

Les effets magnéto-cristallins de rugosité peuvent être estimés dans un premier temps grâce au modèle de Bruno [Bruno, 1988b] de rugosité magnéto-cristalline isotrope. La correction énergétique magnéto-cristalline de rugosité est alors donnée par  $\Delta K_s = -2K_s h/L$  ce qui permet de calculer la correction magnéto-cristalline de rugosité et d'obtenir une constante d'anisotropie de surface modifiée qui vaut  $K_s^* = K_s(1 - 2h/L)$ . L'épaisseur de basculement de l'aimantation pour un film à anisotropie uniaxiale est donnée par :  $t_{TRM} = K_s^*/(|K_d| - K_v)$  et on obtient donc une baisse de  $t_{TRM}$  d'un facteur  $2h/L$ .

### • Au/Co/Au(788)

Dans le cas de Au/Co/Au(788) on a  $L \approx 16h$  et on obtient donc une baisse de l'épaisseur de basculement de l'ordre de 13% compatible avec les observations expérimentales.

- **Au/Co/Au(322)**

Dans le cas de Au/Co/Au(322) on a  $L \approx 6h$  et on obtient une baisse de l'épaisseur de basculement de l'ordre de 35%. Ce calcul simple donne donc une épaisseur de basculement  $t_{TRM} \simeq 4$  MC qui est compatible avec les observations expérimentales.

### 6.4.3 L'effet de la structure de volume : constantes d'anisotropie d'ordres élevés

Lorsque nous avons exprimé l'anisotropie magnéto-cristalline de volume dans le chapitre 1 nous avons considéré un unique terme d'ordre deux que nous avons noté  $K_v^{mc}$ . Nous avons remarqué qu'il s'agissait du premier ordre d'un développement et que dans le cas d'une symétrie cristalline cfc ce terme s'annule. D'une manière générale, et au vu des résultats du chapitre 5 sur la structure des films de cobalt sur les substrats vicinaux d'or il faut remarquer que la variation des termes d'anisotropie magnéto-cristalline peut modifier le processus de basculement de l'aimantation [Purcell et al., 1992; Fritzsche et al., 1994]. Alors que la diminution de l'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline de volume peut décaler ce basculement vers les faibles épaisseurs, l'apparition de termes d'anisotropie magnéto-cristalline d'ordres supérieurs peut étendre la réorientation de l'aimantation sur une large gamme d'épaisseur.

- **Au/Co/Au(788)**

L'étude de la structure des films de cobalt sur Au(788) nous a permis de déterminer que l'empilement de ces films est de type hexagonal compact avec des fautes d'empilement réparties dans le film avec une densité telle qu'il y a en moyenne 1 plan sur 7 du cristal hexagonal qui est fauté entraînant une section d'empilement cfc. Dans le cas d'un film de 8 monocouches on peut donc raisonnablement envisager que ces fautes d'empilements aient une influence sur les propriétés magnétiques. Un cristal cubique à faces centrées est de symétrie moins élevée qu'un cristal hexagonal compact et possède trois axes d'anisotropie équivalents qui deviennent des axes d'anisotropie secondaires lorsqu'un film (111) est coupé dans un tel cristal. La rotation hélicoïdale de l'aimantation observé sous champ dans le cas de Au/Co(8 MC)/Au(788) est sans doute le résultat de l'existence d'axes d'anisotropie secondaires que l'on peut imputer à la structure fautée du cristal.

Les résultats du chapitre 5 ne montrent pas de déformation anisotrope de la maille des films de Co/Au(788) dans le plan. Nous ne pouvons donc pas invoquer d'effets magnéto-élastiques tels qu'ils ont été introduits dans le cas de Ni/Cu pour rendre compte de la rotation hélicoïdale de l'aimantation [Dhesi et al., 1999; Shick

*et al.*, 1999; Jähnke *et al.*, 2001]. Nous avons commencé à développer un modèle basé sur le modèle de Néel appliqué aux cristaux hcp dans le but d'étudier les effets d'anisotropie magnéto-cristallin et magnéto-élastique de marche. L'extension du modèle de Néel à la symétrie hexagonale compacte à déjà été tentée par Bruno [Bruno, 1989a; Bruno, 1988b; Gutjahr-Löser *et al.*, 2000] mais de manière erronée [Gutjahr-Löser *et al.*, 2000].

### • Au/Co/Au(322)

Avant de faire le lien entre les propriétés magnétiques des films de cobalt déposés sur la surface Au(322) et les déterminations structurales du chapitre précédent il est nécessaire de souligner que les surfaces Au(322) et Au(233) sont des surfaces différentes<sup>1</sup> et que nous n'avons pas mené d'études approfondies de la structure des films de cobalt sur Au(322). Nous avons cependant mené une étude complète sur la structure des films de cobalt sur la surface Au(755)<sup>2</sup>. La conclusion de ces études est que, quel que soit le type de bords de marche, les films de cobalt déposés sur des surfaces vicinales avec une grande densité de marche présentent une structure cristallographique proche de la structure cubique à faces centrées. D'un point de vue magnétique, nous avons remarqué la similitude des propriétés magnétiques de Co/Au(322) et Co/Au(755) et, finalement, nous pouvons rapprocher les propriétés structurales mesurées sur Co/Au(755) et les propriétés magnétiques mesurées sur Co/Au(322).

Lorsque le cobalt adopte un empilement cristallographique proche de l'empilement cubique à faces centrées la constante d'anisotropie magnétique de volume d'ordre un que nous avons notée  $K_v$  est vraisemblablement diminuée par rapport au cas de l'empilement hexagonal compact<sup>3</sup>. En ce qui concerne la réorientation de l'aimantation cet effet a donc tendance à diminuer la valeur de l'épaisseur qui annule l'énergie d'anisotropie magnétique totale du film mince. En effet, on a  $t_{TRM} = K_s/(|K_d| - K_v)$  et donc si  $K_v$ , qui est une constante positive pour le Co hcp, diminue ou s'annule  $t_{TRM}$  diminue. Finalement, le décalage de l'épaisseur de réorientation de l'aimantation vers les faibles épaisseurs observé sur les films de cobalt sur Au(322) peut être expliquée par la rugosité de surface et par la baisse de la constante d'anisotropie volumique d'ordre 1 due à la modification de la structure de volume de la couche de cobalt.

La transition de réorientation qui s'opère entre 3 et 5 monocouches et qui pro-

---

<sup>1</sup>La surface Au(322) possède des terrasses non reconstruites d'une largeur  $L = 1,2 \text{ nm}$  séparées par des bords de marches  $\{100\}$  alors que la surface Au(233) possède des terrasses non reconstruites d'une largeur  $L = 1,3 \text{ nm}$  séparées par des bords de marches  $\{111\}$ . Finalement, ces deux surfaces présentent une densité de marches très semblable, pas de reconstruction mais des cristallographies de bords de marche différentes.

<sup>2</sup>Au(755) possède des terrasses non reconstruites d'une largeur  $L = 1,4 \text{ nm}$  séparées par des bords de marches  $\{111\}$ .

<sup>3</sup>Dans le cas d'un empilement cubique à faces centrées parfait cette constante de volume d'ordre 1 est nulle par raison de symétrie.

cède par une rotation hélicoïdale peut être interprétée en introduisant des constantes d'anisotropie magnéto-cristallines d'ordre 4 typique d'un cristal cubique. Ces constantes d'ordre élevé modifient la transition de réorientation magnétique de manière radicale [Fritzsche *et al.*, 1994]. Comme sur Au(788), les résultats du chapitre précédent ne permettent pas de mettre en évidence une quelconque contrainte anisotrope de la maille cristalline du cobalt dans le plan des films et il n'est pas aisée de justifier l'existence d'anisotropie magnéto-élastique qui pourrait expliquer la rotation hélicoïdale de l'aimantation.

## 6.5 Conclusions et perspectives

Les films ultra-minces à anisotropie magnétique perpendiculaire sont d'un grand intérêt technologique puisque ce sont de bons candidats pour l'enregistrement magnéto-optique à haute densité. L'étude de l'influence des marches, défauts très répandus sur tous les substrats métalliques, est donc primordiale pour bien maîtriser les propriétés d'anisotropie de ces systèmes.

Dans le cas des films de cobalt sur les substrats vicinaux d'or, la présence d'une grande densité de marches aux interfaces induit des modifications de leurs propriétés magnétiques. Nous avons mis en évidence deux conséquences de la présence de marches sur les substrats vicinaux utilisés pour la croissance de film magnétique ultramince.

- La structure cristallographique de volume est modifiée puisque l'empilement du cobalt est de type cfc sur les surfaces Au(233) et Au(755) alors qu'il est de type hc sur les surfaces Au(788) et Au(111). Cette modification d'empilement entraîne une modification de l'anisotropie magnétique de volume et l'apparition de termes magnéto-cristallins de symétrie différente.
- Les marches introduisent un terme supplémentaire d'anisotropie magnétique. L'effet de rugosité (dipolaire ou magnéto-cristallin) modifie notamment la valeur de la constante d'anisotropie de surface et décale l'épaisseur de réorientation de l'aimantation.

Nos résultats suggèrent l'absence de contraintes anisotropes au sein des films et nous anticipons donc sur l'absence d'effets magnéto-élastiques.



# Conclusion générale

La découverte des microscopies à champ proche a permis l'observation directe et l'étude intensive des phénomènes d'auto-organisation de surface en complément des techniques de diffraction. Les systèmes auto-organisés fournissent des **substrats pré-structurés** variés, tout à fait adaptés à l'étude de la croissance auto-organisée. Dans ce travail de thèse, nous avons choisi les surfaces d'or vicinales comme substrats pré-structurés modèles. Lorsque celles-ci sont reconstruites, elles présentent une nano-structuration bidimensionnelle que nous avons exploitée dans la première partie de ce travail pour faire croître des **nano-plots de cobalt** réguliers et organisés. D'une manière générale, les surfaces d'or vicinales présentent une anisotropie unidimensionnelle dont on peut faire varier la période en changeant la densité de marches, c'est-à-dire l'angle de vicinalité. Dans une deuxième partie, nous avons mis à profit cette caractéristique pour la croissance de **films ultraminces de cobalt**. Nous avons cherché à déterminer les effets structuraux et magnétiques induits par une grande densité de marches.

Nous avons proposé, dans la première partie de ce travail de thèse, un système original pour la **croissance auto-organisée** de nano-plots de taille très régulière et distribués sur un réseau présentant un ordre à grande distance. L'originalité de l'approche qui est démontrée ici sur le système "cobalt sur surface vicinale d'or" est de combiner un réseau de marches (surface vicinale) avec une reconstruction de surface. La reconstruction de  $22 \times \sqrt{3}$  de la surface Au(111) est un exemple des réseaux de dislocations à grande maille. Nous avons utilisé notre bonne connaissance des surfaces vicinales d'or pour obtenir des surfaces vicinales reconstruites comme Au(788) et Au(11,12,12). La combinaison d'un réseau de dislocations et d'un réseau de marches donne alors des substrats nano-structurés dans deux directions perpendiculaires avec un **ordre à grande échelle** conservé sur la taille macroscopique de l'échantillon. La croissance du cobalt sur ces substrats en réplique la pré-structuration et aboutit à un réseau de plots de cobalt organisés avec une cohérence établie sur l'ensemble de la surface de l'échantillon. La densité surfacique des plots que nous avons obtenue est de l'ordre du Tera plots par  $\text{cm}^2$ . La distance entre plots ainsi que le diamètre des plots est de quelques nanomètres. La taille des **nano-plots** augmente avec le taux de cobalt déposé et les paramètres du réseau varient avec la vicinalité du substrat. On peut, par exemple, changer la symétrie du réseau d'un réseau rectangulaire à

un réseau carré. En étudiant l'influence de la température de dépôt sur la morphologie du réseau de nano-plots nous avons déterminé les conditions optimales pour obtenir une taille régulière et un **ordre local excellent**. Ces expériences de microscopie à effet tunnel in-situ et à température variable nous ont servi de guide pour le développement de simulations Monte-Carlo cinétique de la croissance de plots sur un réseau de sites de nucléation préférentielle. La confrontation des expériences et des simulations nous a permis d'élucider les **mécanismes atomiques** responsables de la croissance auto-organisée et d'en déterminer les paramètres énergétiques. Le mécanisme prépondérant est l'adsorption préférentielle mais l'insertion préférentielle activée à plus haute température permet d'observer une gamme en température plus large (60 K à 300 K) pour la croissance organisée.

L'intérêt des systèmes auto-organisés est de fournir une assemblée de nano-objets les plus identiques possibles et en grande densité. Ainsi, ces systèmes ouvrent la voie à l'utilisation de méthodes de mesures moyennes, faciles à mettre en oeuvre pour mesurer les **propriétés physiques** des nano-objets. Ces méthodes font une mesure intégrée sur une surface importante de l'échantillon (de quelques microns à quelques millimètres) et donc sur un grand nombre d'objets. Lorsque les objets sont très semblables il est possible de remonter à leurs **propriétés individuelles** ainsi qu'à leurs éventuelles interactions. C'est ce que nous avons montré sur le système modèle Co/Au(788) et Au(11,12,12) grâce à des mesures optiques in-situ (réflectivité anisotrope différentielle) et des mesures magnétiques ex-situ et in-situ (effet Kerr magnéto-optique) :

- (i) La **mesure optique** s'est révélée sensible aux plasmons de la nano-particule anisotrope. C'est donc une technique adaptée à la caractérisation de la forme des particules. De plus, nous avons pu suivre l'évolution de la croissance des particules grâce à ce signal d'anisotropie.
- (ii) La **mesure magnétique** permet d'étudier le **super-paramagnétisme** des nano-plots qui apparaît lorsque les particules ont une anisotropie trop faible pour empêcher la fluctuation thermique de leur moment magnétique. Les mesures de la **susceptibilité magnétique** en température en lien avec la connaissance des distributions de tailles des plots nous ont permis de déterminer leur énergie d'anisotropie. Malgré la très haute densité spatiale des plots de cobalt sur la surface Au(788) nous ne mesurons pas de signature claire d'un **couplage dipolaire** entre plots et nous en déduisons que ces plots à anisotropie perpendiculaire sont indépendants. La **distribution d'énergie d'anisotropie** que nous mesurons est très étroite ce qui est un point crucial dans le cadre des applications au stockage de l'information à très haute densité. Sur ce point, nous illustrons de manière claire l'avantage des systèmes auto-organisés pour la croissance épitaxiale de nano-structures. La voie chimique qui permet, elle aussi, la synthèse de nano-particules colloïdales très régulières ne permet pas le contrôle de l'orientation des nano-particules pendant leur croissance et

la monodispersité en taille ne se reflète pas dans une monodispersité en anisotropie. Dans le cas de nano-structures épitaxiées l'interaction avec le substrat a l'avantage de favoriser une **anisotropie uniaxiale** de direction commune pour toutes les particules.

Les **films magnétiques ultraminces** sont des nano-structures bidimensionnelles très étudiées et largement utilisées dans les applications. La connaissance structurale de ces nano-structures est un point primordial pour la compréhension de leurs propriétés magnétiques. Les **marches atomiques** sont de loin les défauts les plus répandus en surface des substrats. Ces marches peuvent avoir des conséquences dramatiques sur la **structure cristallographique** des films et en modifier fortement les propriétés physiques. Pour étudier l'influence des marches sur la structure et le magnétisme des films ultra-minces de cobalt nous avons choisi d'utiliser des substrats d'or vicinaux présentant un réseau régulier de marches atomiques dont on contrôle facilement la période par le choix de l'angle de désorientation.

Le cobalt présente une structure **hexagonale compacte** (hc) en volume mais il présente une forme **cubique à faces centrées** (cfc) proche en énergie. Il est ainsi connu que de petites perturbations (flux de dépôt, température de croissance, couche de passivation) peuvent induire des **fautes cristallographiques** de son empilement hc qui traduisent sa tendance à présenter une structure cfc. En étudiant la croissance des films de cobalt sur les substrats vicinaux d'or nous avons montré que la présence de marches atomiques à l'interface Au/Co peut induire la croissance d'un empilement de cobalt de type cfc avec de nombreuses fautes d'empilement. Nous déterminons que la densité de fautes d'empilements est d'autant plus grande que la **densité de marches** à l'interface est importante. Les films de cobalt relaxent tout le désaccord paramétrique qu'il existe entre Co et Au si bien que la distance inter-atomique est proche de celle du cobalt volumique. Pour mener cette étude nous avons réalisé des mesures extensives de **diffraction des rayons X en incidence rasante** que nous avons interprétées dans le cadre d'un modèle de fautes d'empilement de plans denses pour aboutir à une description complète et cohérente de la structure des films.

Les films ultra-minces à **anisotropie perpendiculaire** présentent un processus de réorientation de l'aimantation avec l'épaisseur qui est une signature des effets d'anisotropie magnétique. Ces systèmes sont des candidats intéressants pour les applications d'enregistrement magnéto-optique et cette **transition de réorientation** est une caractéristique importante.

Lors de l'étude des propriétés magnétiques des films vicinaux de cobalt nous avons mis en évidence un nouvel effet Kerr magnéto-optique : **l'effet VISMOKE**. Contrairement à l'effet Kerr magnéto-optique généralement utilisé dans l'étude des

films minces magnétiques qui est un effet de volume, l'effet VISMOKE présente l'avantage d'être un effet sélectif, sensible uniquement à la région de l'interface vicinale Au/Co. Cet effet provient d'un couplage entre les termes d'anisotropie structurale dus à la basse symétrie de l'interface vicinale avec les termes magnéto-optiques habituels. Une prédiction spectaculaire de cet effet est l'observation d'un signal magnéto-optique en incidence normale et en champ planaire. Les études magnéto-optiques détaillées que nous avons menées sur un film de 5 MC de Co/Au(322) semblent mettre en évidence l'existence d'un tel effet.

Nous avons étudié les modifications des propriétés magnétiques des films de cobalt ultraminces déposés sur des substrats vicinaux d'or avec des densités de marche importantes. Pour des tels systèmes, on s'attend à trois types d'effets : les effets de surface qui comprennent les effets de **rugosité** (dipolaire et magnéto-cristalline), les effets de structure de volume qui comprennent les effets magnéto-cristallins dus à la **modification de l'empilement** cristallographique et les effets magnéto-élastiques dus à la déformation de la maille cristalline. Les résultats préliminaires que nous avons obtenus montrent que la transition de réorientation de l'aimantation est affectée de plusieurs manières. Elle est tout d'abord décalée à des épaisseurs d'autant plus faible que la densité de marches à l'interface est importante. De plus, cette transition intervient sur une gamme d'épaisseur plus large. Ce résultat est cohérent avec la présence de termes d'anisotropie de basse symétrie qui découle de la structure cfc fautée des films. Enfin, le basculement de l'aimantation dans le plan du film procède par une **rotation hélicoidale** qui couple une réorientation hors plan/dans le plan et une rotation perpendiculaire/parallèle à la direction des bords de marche.

## Perspectives

L'utilisation combinée du processus d'auto-organisation en surface et d'un réseau de marches vicinales est très intéressante pour la croissance d'assemblées de nano-structures organisées. Dans le cas du cobalt sur les surfaces vicinales d'or reconstruites, nous avons acquis une connaissance complète du système. L'utilisation conjointe d'un réseau de dislocations et d'un réseau de marche peut, en principe, être généralisée à de nombreux systèmes qu'ils soient métalliques ou semi-conducteurs. Nous envisageons notamment d'étudier l'apparition d'une reconstruction sur les surfaces vicinales de Pt(111) dans le but d'y faire croître des nano-structures de cobalt et de caractériser leurs propriétés magnétiques. D'autres systèmes comme les pavés d'azote adsorbés sur la surface de Cu(100) pourraient être étudiés en présence d'un réseau de marches pour voir s'il est possible d'obtenir un ordre à grande distance et

créer un réseau de plots métalliques organisés dans certaines conditions de dépôt.

Les études magnétiques sur des nano-structures épitaxiées montrent un effet très net de la coordination atomique sur l'anisotropie. Sur des nano-particules cette tendance est illustrée par l'effet prépondérant des atomes de bord dans l'anisotropie magnétique de la particule. Les systèmes auto-organisés de nano-structures régulières sont très bien adaptés à la mesure des propriétés magnétiques individuelles des particules. Ce sont donc des systèmes idéaux pour étudier l'évolution de l'anisotropie avec la taille des particules ce qui est un moyen direct de confirmer et de quantifier ces effets de coordination. Il est évidemment primordial de bien comprendre l'origine de l'anisotropie magnétique des nano-structures. Nous avons vu que le régime superparamagnétique empêche la stabilité du moment magnétique des nano-particules à température ambiante interdisant toute application technologique. Le renforcement de l'anisotropie des nano-structures est donc un défi important qui doit passer par une meilleure compréhension des mécanismes microscopiques de l'anisotropie magnétique.

Dans le cadre de toutes ces études magnétiques, l'utilisation du rayonnement synchrotron est très intéressante. Les mesures de Dichroïsme Circulaire Magnétique en Rayons X (XMCD) permettent notamment la mesure de l'évolution des moments magnétiques orbitaux et de spin en fonction de la taille des nano-structures. C'est une technique qui est aussi tout à fait adaptée à la caractérisation de l'anisotropie magnéto-cristalline des nano-structures. Si l'on s'intéresse aux assemblées de nano-structures présentant un fort couplage dipolaire la diffraction magnétique permet d'étudier l'établissement d'un ordre super-anti-ferromagnétique au sein, par exemple, d'un réseau organisé de nano-structures. Nous avons entrepris à l'ESRF de telles études complémentaires sur le système Co/Au(11,12,12).

L'influence des marches atomiques à l'interface des films ultra-minces est une perturbation dont il est important de bien connaître les conséquences. Pour des films magnétiques les marches et la modification de la structure qu'elles peuvent induire s'accompagnent de changements des propriétés magnétiques. Dans le cas des films de cobalt sur les substrats vicinaux d'or nous sommes arrivés à une compréhension globale de la structure cristallographique. L'origine de l'apparition de la structure cfc du cobalt déposé sur ces substrats reste cependant à élucider. La présence des marches correspond à des contraintes géométriques fortes pour la croissance. Est-ce que ces contraintes sont à l'origine de la modification de l'empilement ? Est-ce que le type de marches a une influence systématique ?

Le magnétisme des films ultraminces et, notamment, les différentes sources d'anisotropie magnétique qui y co-existent méritent encore de nombreuses études expérimentales. On y retrouve un effet d'anisotropie magnétique intrinsèque aux marches

qui peut être relié à une modification de l'environnement atomique en bord de marche semblable à celle qui existe à la périphérie d'un îlot. S'il est clair que l'anisotropie de bord de marche existe, son origine microscopique reste à élucider. En particulier, la description phénoménologique que l'on peut faire dans le cadre d'un modèle de Néel peut être discutée. La richesse du système Co/Au vicinal nous a convaincu de la nécessité de mener des études systématiques de l'influence de l'épaisseur sur l'anisotropie magnétique globale de ces films. L'enceinte ultra-vide de mesure magnéto-optique dont nous avons réalisé le développement est un outil performant pour mener, dans un futur très proche, ces études. Les mesures d'effets Kerr polaire et longitudinal in-situ nous permettront de détailler la transition de ré-orientation magnétique sur des substrats vicinaux en fonction du taux de couverture et de la densité de marches ainsi que d'étudier l'effet de la couche de passivation.

## Annexe A

# Susceptibilité à l'équilibre d'une nano-particule magnétique à anisotropie uniaxiale

### Fonction de partition d'une particule

La fonction de partition d'une particule s'écrit :

$$\begin{aligned} Z &= \frac{1}{4\pi} \int e^{-\beta E} d\Omega = \frac{1}{4\pi} \int_0^{2\pi} \int_0^\pi e^{\beta\mu H \cos\theta} e^{-\beta K \sin^2\theta} \sin\theta d\theta d\varphi \\ Z &= \frac{1}{2} \int_0^\pi e^{-\frac{h^2+4d^2}{4d}} e^{d(\cos\theta+h/2d)^2} \sin\theta d\theta \quad \text{avec } d = \beta K \text{ et } h = \beta\mu H \end{aligned}$$

On fait un changement de variable,

$$\begin{aligned} Z &= -\frac{e^{-\frac{h^2+4d^2}{4d}}}{2} \int_{\sqrt{d}(1+h/2d)}^{\sqrt{d}(-1+h/2d)} \frac{e^{t^2}}{\sqrt{d}} dt \quad \text{avec } t^2 = d(\cos\theta + h/2d)^2 \\ Z &= \frac{e^{-\frac{h^2+4d^2}{4d}}}{2\sqrt{d}} \frac{\sqrt{\pi}}{2} \left[ \text{Erfi} \left[ \sqrt{d} + \frac{h}{2\sqrt{d}} \right] + \text{Erfi} \left[ \sqrt{d} - \frac{h}{2\sqrt{d}} \right] \right] \quad \text{avec } \text{Erfi}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{t^2} dt \end{aligned}$$

Finalement,

$$Z = \frac{\sqrt{\pi}}{4\sqrt{d}} e^{-\frac{h^2+4d^2}{4d}} \xi(d, h) \tag{A.1}$$

$$\text{avec } \xi(d, h) = \text{Erfi} \left[ \sqrt{d} + \frac{h}{2\sqrt{d}} \right] + \text{Erfi} \left[ \sqrt{d} - \frac{h}{2\sqrt{d}} \right] \tag{A.2}$$

## Moment magnétique d'une particule

La composante du moment de chaque particule selon la direction du champ s'écrit :

$$\begin{aligned}\mu_z &= \frac{\partial F}{\partial H} = \frac{1}{\beta} \frac{\partial \ln Z}{\partial H} = \frac{\mu}{Z} \frac{\partial Z}{\partial h} \\ \mu_z &= -\frac{\mu h}{2d} + \mu \frac{\partial \xi(d, h)/\partial h}{\xi(d, h)}\end{aligned}$$

Avec  $\xi(d, h)$  définit en (A.2) on obtient :

$$\mu_z = -\frac{\mu h}{2d} + \frac{2\mu}{\sqrt{\pi d}} \frac{e^{d+\frac{h^2}{4d}} \sinh h}{\xi(d, h)} \quad (\text{A.3})$$

## Susceptibilité d'une particule

La susceptibilité d'une particule est donnée par la dérivée de son moment  $\mu_z$  par rapport au champ magnétique calculée à champ nul.

$$\begin{aligned}\chi_{eq} &= \left( \frac{\partial \mu_z}{\partial H} \right)_{H=0} = \beta \mu \left( \frac{\partial \mu_z}{\partial h} \right)_{h=0} \\ \chi_{eq} &= \left\{ -\frac{\beta \mu^2}{2d} + \frac{2\beta \mu^2}{\sqrt{\pi d}} e^{d+\frac{h^2}{4d}} \left[ \frac{\frac{h}{2d} \sinh h + \cosh h}{\xi(d, h)} + \sinh h \frac{\partial \xi(d, h)/\partial h}{\xi(d, h)^2} \right] \right\}_{h \rightarrow 0}\end{aligned}$$

Soit,

$$\chi_{eq} = \frac{\mu^2}{k_B T} \left[ \sqrt{\frac{k_B T}{K}} \frac{e^{\frac{K}{k_B T}}}{\sqrt{\pi} \operatorname{Erfi}(\sqrt{\frac{K}{k_B T}})} - \frac{k_B T}{2K} \right] \quad (\text{A.4})$$

## Annexe B

# L'anisotropie dipolaire de rugosité

Nous allons étudier la perturbation du terme d'anisotropie dipolaire induite par l'introduction d'une rugosité en surface. On rappelle que dans le cas d'un film ultramince avec des interfaces planes la densité d'énergie dipolaire ou de champ démagnétisant est donnée par :

$$E_d = K_d \sin^2 \theta \quad \text{avec} \quad K_d = -\frac{1}{2} \mu_0 M^2 \quad (\text{B.1})$$

Nous considérons ici le cas d'interfaces vicinales avec une rugosité unidimensionnelle. Par convention on place l'axe x du repère le long des bords de marche. On note  $\phi$  l'angle entre l'aimantation et le bord des marches. Avec cette géométrie aucune énergie de champ démagnétisant n'est associée à la direction planaire et parallèle aux marches de l'aimantation :

$$E_x = E_{(\parallel, \parallel)} = 0 \quad (\text{B.2})$$

### B.1 Interfaces vicinales indépendantes

Nous appliquons le modèle établi par Bruno [Bruno, 1988a] au cas d'un film ferromagnétique avec des interfaces vicinales. Dans le cas général d'une direction quelconque de l'aimantation, la densité volumique d'énergie magnétostatique du film s'écrit :

$$\begin{aligned} & E_d^{vic} = E_z \sin^2 \theta + E_y \sin^2 \theta \sin^2 \phi + E_x \sin^2 \theta \cos^2 \phi \\ \text{soit} \quad & E_d^{vic} = (E_{(\parallel, \perp)} \sin^2 \phi - E_{(\perp, \perp)}) \sin^2 \theta \end{aligned} \quad (\text{B.3})$$

Le modèle de Bruno [Bruno, 1988a] permet d'établir l'expression de la densité volumique d'énergie magnétostatique pour une aimantation perpendiculaire au film.

On considère tout d'abord un film avec une interface vicinale schématisée sur la figure B.1.a. On utilise, de plus, la règle de somme établie par Yafet [Yafet et al.,

1986] qui impose une conservation de l'énergie magnétostatique. On obtient :

$$\begin{aligned} E_{(\perp)} &= \frac{1}{2} \mu_0 M^2 \left[ 1 - \frac{h}{4t} (1 - f_B(r)) \right] \\ \text{et} \quad E_{(\parallel, \perp)} + E_{(\perp)} &= \frac{1}{2} \mu_0 M^2 \\ \text{soit} \quad E_{(\parallel, \perp)} &= \frac{1}{2} \mu_0 M^2 \times \frac{h}{4t} (1 - f_B(r)) \end{aligned}$$

Dans ces expressions  $r = h/2L$  est la rugosité d'interface et la fonction  $f_B$  est la fonction déterminée par P. Bruno dans la référence [Bruno, 1988a]. Il faut noter que  $f_B(0) = 1$  et  $f_B(\infty) = 0$ .

On réécrit l'équation (B.3) en utilisant les résultats ci-dessus pour obtenir la densité volumique d'énergie magnétostatique pour le film avec une interface vicinale :

$$E_d^{vic} = E_d \left[ 1 - \frac{h}{4t} (1 - f_B(r))(1 + \sin^2 \phi) \right] \quad (\text{B.4})$$

On peut vérifier que pour une rugosité nulle ou très faible devant l'épaisseur on retrouve l'énergie dipolaire  $E_d$  d'un film mince. On isole maintenant l'effet de rugosité d'interface en définissant une modification de l'énergie dipolaire liée à cette rugosité :

$$\Delta E_d^{vic} = E_d^{vic} - E_d = -E_d \times \frac{h}{4t} (1 - f_B(r))(1 + \sin^2 \phi) \quad (\text{B.5})$$

Si l'on considère le cas d'un film avec deux interfaces rugueuses décorrélées les contributions  $\Delta E_d^{vic}$  des deux interfaces s'ajoutent. Dans le cas d'un film vicinal parfait avec deux interfaces identiques à celle schématisée sur la figure B.1.a. On a donc :

$$\Delta E_d^{vic} = -E_d \times \frac{h}{2t} (1 - f_B(r))(1 + \sin^2 \phi) \quad (\text{B.6})$$

C'est ce terme qu'il faudrait rajouter à l'énergie magnétique d'un film ferromagnétique vicinale pour tenir compte des effets dipolaires dus à la rugosité des interfaces. La tendance de ce terme est de diminuer la stabilisation de l'orientation planaire due à l'effet de forme principal du film et de stabiliser l'orientation parallèle aux marches.

## B.2 Couplage des interfaces vicinales

Nous utilisons ici le modèle développé par Néel pour introduire le couplage dipolaire entre deux films magnétiques séparées par une couche amagnétique présentant des interfaces ondulées de manière cohérente [Neel, 1962]. Le terme énergétique qui

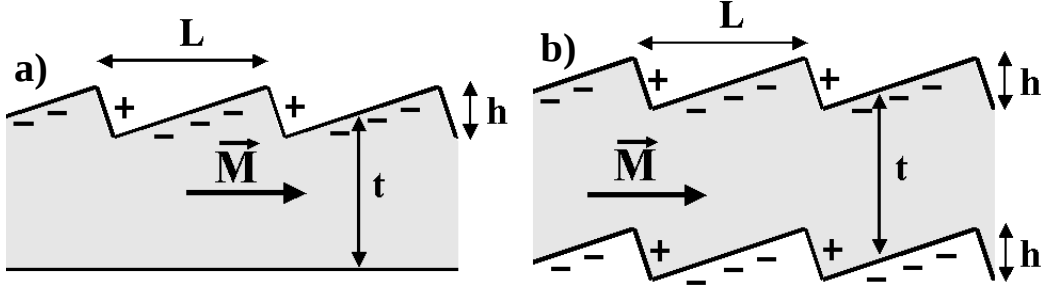


FIG. B.1: a) Schéma d'une interface vicinale de rugosité  $r = h/2L$ . b) Schéma d'un film avec deux interfaces rugueuses de rugosités  $r = h/2L$  corrélées.

résulte de cette interaction dipolaire entre les deux interfaces peut en être extrapolé pour la configuration de la figure B.1.b. On considère une description sinusoïdale des interfaces de la forme  $z = h \sin(2\pi y/L)$  et on obtient la modification de la densité énergétique pour le film [Neel, 1962] :

$$\Delta E_d^{coup} = E_d \times \frac{\pi h^2}{4 L t} e^{-2\pi \frac{t}{L}} \sin^2 \phi \quad (\text{B.7})$$

Ce terme a pour effet de favoriser une orientation de l'aimantation planaire et perpendiculaire aux marches.

### B.3 Effet dipolaire total de rugosité

Le terme de couplage ci-dessus s'ajoute à l'effet de rugosité des deux interfaces indépendantes de l'expression B.6 pour donner le terme de modification dipolaire total dû aux marches. On obtient :

$$\Delta E_d = \Delta E_d^{vic} + \Delta E_d^{coup} = -\epsilon(h, L, t, \phi) K_d \sin^2 \theta$$

avec 
$$\epsilon(h, L, t, \phi) = -\frac{h}{2t} \left[ \frac{\pi h e^{-\frac{2\pi t}{L}}}{2L} \sin^2 \phi - (1 - f_B(h/L))(1 + \sin^2 \phi) \right]$$

Si l'on veut obtenir la densité globale d'énergie dipolaire tenant compte des effets de rugosité pour un film ferromagnétique vicinale on peut définir un facteur multiplicatif de correction  $g(h, L, t, \phi) = 1 - \epsilon(h, L, t, \phi)$ . On a alors :

$$E_d^* = \Delta E_d + E_d \quad \text{soit} \quad E_d^* = g(h, L, t, \phi) K_d \sin^2 \theta$$

avec 
$$g(h, L, t, \phi) = 1 + \frac{h}{2t} \left[ \frac{\pi h e^{-\frac{2\pi t}{L}}}{2L} \sin^2 \phi - (1 - f_B(h/L))(1 + \sin^2 \phi) \right]$$

Ce facteur correspond au coefficient multiplicatif à appliquer à  $K_d$  pour obtenir les différentes barrière d'énergie dipolaire pour le basculement de l'aimantation.

Ainsi,  $g(h, L, t, 0) \times |K_d|$  est la barrière à franchir pour passer de l'état d'aimantation dans le plan, parallèle aux marches à l'état d'aimantation hors plan. De même,  $g(h, L, t, \frac{\pi}{2}) \times |K_d|$  est la barrière à franchir pour passer de l'état d'aimantation dans le plan, perpendiculaire aux marches à l'état d'aimantation hors plan. La différence  $[g(h, L, t, 0) - g(h, L, t, \frac{\pi}{2})] \times |K_d|$  correspond à la barrière à franchir pour passer de l'état d'aimantation planaire parallèle aux marches à l'état d'aimantation planaire perpendiculaire aux marches.

$$\begin{aligned} E_{d(\perp)}^* - E_{d(\parallel, \parallel)}^* &= g(h, L, t, 0) |K_d| \\ E_{d(\perp)}^* - E_{d(\parallel, \perp)}^* &= g(h, L, t, \frac{\pi}{2}) |K_d| \\ E_{d(\parallel, \perp)}^* - E_{d(\parallel, \parallel)}^* &= [g(h, L, t, 0) - g(h, L, t, \frac{\pi}{2})] |K_d| \end{aligned}$$

## B.4 Estimation quantitative des effets dipolaires de rugosité

Afin de quantifier ces effets nous prenons le cas d'un film de 5 MC de cobalt ( $M = 1,37.10^6 \text{ A.m}^{-1}$ ) sur un substrat vicinal d'or composé de marches monoatomiques et de terrasse de  $n$  rangées atomiques. On a alors :

$$h = \sqrt{\frac{2}{3}} a_{Au} ; \xi = L = n \frac{\sqrt{3}}{2} a_{Au} ; t = 5 \sqrt{\frac{2}{3}} a_{Co} ; r = \frac{1}{n} \frac{\sqrt{2}}{3}$$

Nous allons estimer les effets dipolaires dus à la rugosité des interfaces vicinales du film de cobalt. La valeur de référence est celle de la constante d'anisotropie de forme  $K_d$  :

$$K_d = -\frac{1}{2} \mu_0 M^2 \simeq -1,2.10^6 \text{ J.m}^{-3} \quad (\text{B.8})$$

Dans le cas de la surface Au(233),  $n = 5$  et on obtient  $f_B(r) \simeq 0,55$ . On peut alors estimer le terme intrinsèque à la rugosité des interfaces et celui du couplage des interfaces corrélées. On obtient :

$$\Delta E_d^{vic} \simeq 2.10^4 \sin^2 \theta (1 + \sin^2 \phi) \text{ J.m}^{-3} \quad (\text{B.9})$$

$$\Delta E_d^{coup} \simeq -60 \sin^2 \theta \sin^2 \phi \text{ J.m}^{-3} \quad (\text{B.10})$$

Ces deux fonctions sont représentées sur les graphes polaires de la figure B.2.a. Alors que l'effet de la rugosité est de favoriser une orientation de l'aimantation planaire et parallèle aux marches celui du couplage entre les interfaces est de favoriser une orientation de l'aimantation planaire et perpendiculaire aux marches. Il est à noter que les effets dipolaires de rugosité sont des petites corrections au terme

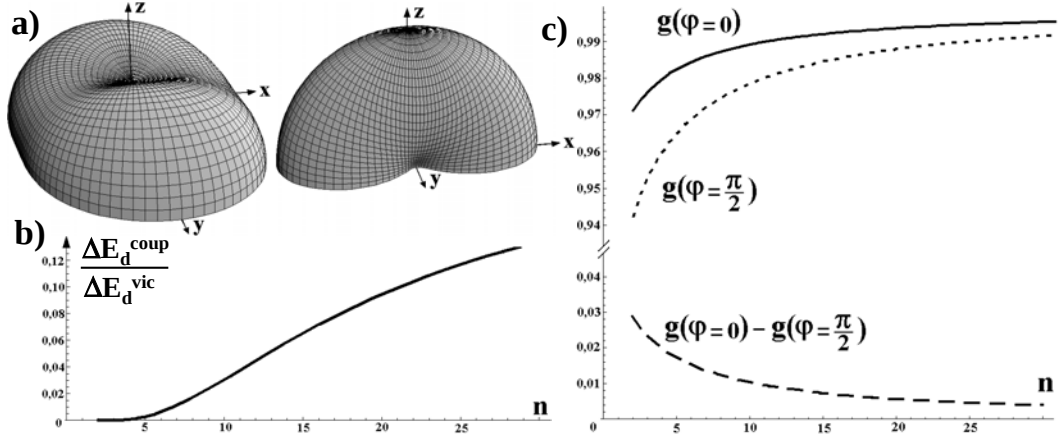


FIG. B.2: a) Graphes polaires des fonctions  $\Delta E_d^{vic}(\theta, \phi)$  et  $\Delta E_d^{coup}(\theta, \phi)$ . b) Comparaison des effets de rugosité intrinsèque et de couplage des interfaces. c) Barrières d'énergie correspondantes aux différents basculements de l'aimantation.

dipolaire principale du à l'effet de forme du film ultramince. On voit, en effet sur la figure B.2.c que  $g \simeq 1$  c'est-à-dire que  $\epsilon \ll 1$ .

Si l'on fait le rapport des amplitudes de variation en  $\phi$  de ces deux effets on obtient :

$$\frac{\Delta E_d^{coup}}{\Delta E_d^{vic}} = \frac{\pi r e^{-\frac{2\pi t}{L}}}{1 - f_B(r)} \quad (B.11)$$

Si l'on trace l'évolution de ce rapport en fonction du nombre de rangées atomiques par terrasse on voit (cf. figure B.2.b) que dans la gamme de rugosité qui nous intéresse l'effet de couplage est toujours très petit devant l'effet de rugosité intrinsèque des interfaces.

La figure B.2.c montre les barrières d'énergie correspondantes aux différents basculements de l'aimantation. On constate que les barrières de basculement sont peu modifiées par les effets dipolaires de rugosité. Pour des largeurs de terrasses très faibles la barrière de basculement  $[(\parallel, \perp) \rightarrow \perp]$  est quand même diminuée de plus de 10 %. Dans le plan de la couche magnétique l'orientation de l'aimantation parallèle aux marches est favorisée par les effets dipolaires de rugosité.

## B.5 Effet global de la rugosité des interfaces

Si l'on ajoute une contribution magnéto-cristalline de la forme  $\frac{K_m}{tL} f(\theta, \phi)$  à la contribution dipolaire due à la vicinalité des interfaces du film on obtient le terme complet rendant compte de l'effet des marches sur l'énergie du film. On peut alors

écrire l'hamiltonien complet pour un film ferromagnétique vicinal :

$$E_{film} = \left( K_v + K_d + \frac{K_s}{t} - \epsilon(h, L, t, \phi) K_d \right) \sin^2 \theta + \frac{K_m}{tL} f(\theta, \phi) \quad (\text{B.12})$$

# Références bibliographiques

- ABERNATY, D., D. GIBBS, G. GRÜBEL, K. HUANG, S. MOCHRIE, A. SANDY et D. ZEHNER, Reconstruction of the (111) and (001) surfaces of Au and Pt : thermal behavior, *Surf. Sci.*, **283**, 260, 1993.
- ALBRECHT, M., T. FURUBAYASHI, M. PRZYBYLSKI, J. KORCKI et U. GRADMANN, Magnetic step anisotropies, *J. Magn. Magn. Mat.*, **113**, 207, 1992.
- ALLENSPACH, R. et A. BISCHOF, Magnetization direction switching in Fe/Cu(100) epitaxial films : Temperature and thickness dependence, *Phys. Rev. Lett.*, **69**, 3385, 1992.
- ALLENSPACH, R., M. STAMPANONI et A. BISCHOF, Magnetic domains in thin epitaxial Co/Au(111) films, *Phys. Rev. Lett.*, **65**, 3344, 1990.
- ALTMAN, E. et R. COLTON, Growth of Rh on Au(111) : surface intermixing of immiscible metals, *Surf. Sci.*, **304**, L400, 1994.
- ASPNES, D., J. HARBISON, A. STUDNA et L. FLOREZ, Application of reflectance difference spectroscopy to molecular-beam epitaxy growth of GaAs and AlAs, *J. Vac. Sci. Tech.*, **6**, 1327, 1988.
- AYADI, M., R. BELHI, N. MLIKI, K. ABDELMOULA, J. FÉRRE et J. JAMET, Face centered cubic cobalt layer on Au(111) : a magneto-optical study, *J. Mag. Mag. Mat.*, **247**, 215, 2002.
- BACH, C., M. GIESEN, H. IBACH et T. EINSTEIN, Stress Relief in Reconstruction, *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 4225, 1997.
- BARRERA, R., M. DEL CASTILLO, G. MONSIVAIS, P. VILLASENOR et W. MOCHAN, Optical properties of two-dimensional disordered systems on a substrate, *Phys. Rev. B*, **43**, 13819, 1991.
- BARTELS, L., G. MEYER et K. RIEDER, Basic Steps of Lateral Manipulation of Single Atoms and Diatomic Clusters with a Scanning Tunneling Microscope Tip, *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 697, 1997.
- BARTH, J., H. BRUNE, G. ERTL et R. BEHM, Scanning tunneling microscopy observations on the reconstructed Au(111) surface : Atomic structure, long-range superstructure, rotational domains and surface defects, *Phys. Rev. B*, **42**, 9307, 1990.

- BAUDOT, G., S. ROHART, V. REPAIN, H. ELMER, Y. GIRARD et S. ROUSSET, Temperature dependence of ordered cobalt nanodots growth on Au(788), *Appl. Surf. Sci.*, **212**, 360, 2003.
- BAUMBERGER, F., T. HERRMANN, A. KARA, S. STOLBOV, N. ESSER, T. RAHMAN, J. OSTERWALDER, W. RICHTER et T. GREBER, Optical Recognition of Atomic Steps on Surfaces, *Phys. Rev. Lett.*, **90**, 177402, 2003.
- BEAUVILLAIN, P., A. BOUNOUH, C. CHAPPERT, R. MÉGY, S. OULD-MAHFOUD, J. RENARD, D. WELLER et J. CORNO, Effect of submonolayer coverage on magnetic anisotropy of ultrathin cobalt films M/Co/Au(111) with M=Au, Cu, Pd, *J. Mag. Mag. Mat.*, **76**, 6078, 1994.
- BEAUVILLAIN, P., C. CHAPPERT, V. GROLIER, R. MÉGY, S. OULD-MAHFOUD, J. RENARD et P. VEILLET, Magnetic interface anisotropy in ultrathin cobalt films Au/Co/M/Au with M=Au, Cu, Pd or Pt, *J. Appl. Phys.*, **121**, 503, 1993.
- BEITIA, C. et Y. BORENSZTEIN, Formation and stability of small particles of potassium studied by real-time surface differential reflectance, *Surf. Sci.*, **402-404**, 445, 1998.
- BIAN, B., W. YANG, D. LAUGHLIN et D. LAMBETH, Stacking faults and their effect on magnetocrystalline anisotropy in Co and Co-alloy thin films, *IEEE Trans. Magn.*, **32**, 1456, 2001.
- BILLAS, I., A. CHATELAIN et W. DE HEER, Magnetism from the Atom to the Bulk in Iron, Cobalt, and Nickel Clusters, *Science*, **265**, 1682, 1994.
- BINDER, K., H. RAUCH et V. WILDPANER, MonteCarlo calculation of the magnetization of superparamagnetic particles, *J. Phys. Chem. Solids*, **31**, 391, 1970.
- BINNIG, G., H. ROHRER, C. GERBER et E. WEIBEL, Tunneling through a controllable vacuum gap, *Appl. Phys. Lett.*, **40**, 178, 1982.
- BLACK, C., C. MURRAY, R. SANDSTROM et S. SUN, Spin-Dependent Tunneling in Self-Assembled Cobalt Nanocrystal Superlattices, *Science*, **290**, 1131, 2000.
- BOBBERT, P. et J. VIEGER, The polarizability of a spheroidal particle on a substrate, *Physica A*, **147**, 115, 1987.
- BODE, M., A. KUBETZKA, O. PIETZSCH et R. WIESENDANGER, Spin-resolved spectro-microscopy of magnetic nanowire arrays, *Phys. Rev. Lett.*, **514**, 135, 2002.
- BORENSZTEIN, Y., R. ALAMEH et M. ROY, Determination of the morphology of Ag deposits by photoreflectance, *Phys. Rev. B*, **50**, 1973, 94.
- BORTZ, A., M. KALOS et J. LEIBOWITZ, A new algorithm for Monte Carlo simulation of Ising spin systems, *J. Comp. Phys.*, **17**, 10, 1975.
- BRUNE, H., Microscopic view of epitaxial metal growth : nucleation and aggregation, *Surf. Sci. Rep.*, **31**, 121, 1998.

- BRUNE, H., G. BALES, J. JACOBSEN, C. BORAGNO et K. KERN, Measuring surface diffusion from nucleation island densities, *Phys. Rev. B*, **60**, 5991, 1999.
- BRUNE, H., M. GIOVANNINI, K. BROMANN et K. KERN, Self-organized growth of nanostructure arrays on strain-relief patterns, *Nature*, **394**, 451, 1998.
- BRUNO, P., Dipolar magnetic surface anisotropy in ferromagnetic thin films with interfacial roughness, *J. Appl. Phys.*, **64**, 3153, 1988a.
- BRUNO, P., Magnetic surface anisotropy of cobalt and surface roughness effects within Néel's model, *J. Phys. F : Met. Phys.*, **18**, 1291, 1988b.
- BRUNO, P., *Anisotropie magnétique et hystérésis du cobalt à l'échelle du plan atomique : théorie et expérience*, Thèse de doctorat, Université de Paris-Sud (Paris 11), 1989a.
- BRUNO, P., Tight-binding approach to the orbital magnetic moment and magnetocrystalline anisotropy of transition-metal monolayers, *Phys. Rev. B*, **39**, 865, 1989b.
- BRUNO, P. et J.-P. RENARD, Magnetic Surface Anisotropy of Transition Metal Ultrathin Films, *Appl. Phys. A*, **49**, 499, 1989.
- BUBENDORFF, J., C. MÉNY, E. BEAUREPAIRE, P. PANISSOD et J. BUCHER, Electrodeposited cobalt films :, *Eur. Phys. J. B*, **17**, 635, 2000.
- BULOU, H., O. LUCAS, M. KIBALY et C. GOYHENEX, Long-time scale molecular dynamics study of Co diffusion on the Au(111) surface, *Comp. Mat. Sci.*, **27**, 181, 2003.
- CHAMBLISS, D., R. WILSON et S. CHIANG, Nucleation of ordered Ni island arrays on Au(111) by surface-lattice dislocations, *Phys. Rev. Lett.*, **66**, 1721, 1991.
- CHANTRELL, R. W., N. WALMSLEY, J. GORE et M. MAYLIN, Calculations of the susceptibility of interacting superparamagnetic particles, *Phys. Rev. B*, **63**, 024410, 2000.
- CHAPPERT, C. et P. BRUNO, Magnetic anisotropy in metallic ultrathin films and related experiments on cobalt films, *J. Appl. Phys.*, **64**, 5736, 1988.
- CHAPPERT, C., K. L. DANG, P. BEAUVILLAIN, H. HURDEQUINT et D. RENARD, Ferromagnetic resonance studies of very thin cobalt films on a gold substrate, *Phys. Rev. B*, **34**, 3192, 1986a.
- CHAPPERT, C., D. RENARD, P. BEAUVILLAIN, J. P. RENARD et J. SEIDEN, Ferromagnetism of very thin films of nickel and cobalt, *J. Magn. Magn. Mater.*, **54-57**, 795, 1986b.
- CHEN, J., C. SORENSEN, K. KLABUNDE, G. HADJIPANAYIS, E. DEVLIN et A. KOSTIKAS, Size-dependent magnetic properties of  $\text{MnFe}_2\text{O}_4$  fine particles synthesized by coprecipitation, *Phys. Rev. B*, **54**, 9288, 1996.

- CHERIFI, S., C. BOEGLIN, S. STANESCU, J. DEVILLE, C. MOCUTA, H. MAGNAN, P. L. FÈVRE, P. OHRESSER et N. BROOKES, Step-induced in-plane orbital anisotropy in FeNi films on Cu(111) probed by magnetic circular x-ray dichroism, *Phys. Rev. B*, **64**, 184405, 2001.
- CHRISTIAN, J., A Note on Deformation Stacking Faults in Hexagonal Close-Packed Lattices, *Acta Cryst.*, **7**, 415, 1954.
- CHUANG, D., C. BALLENTINE et R. O'HANDLEY, Surface and step magnetic anisotropy, *Phys. Rev. B*, **49**, 15084, 1994.
- COFFEY, W., D. CROTHERS, J. DORMANN, Y. KALMYKOV, E. KENNEDY et W. WERNSDORFER, Thermally Activated Relaxation Time of a Single Domain Ferromagnetic Particle Subjected to a Uniform Field at an Oblique Angle to the Easy Axis : Comparison with Experimental Observations, *Phys. Rev. Lett.*, **80**, 5655, 1998.
- CREN, T., D. RODITCHEV, W. SACKS et J. KLEIN, Nanometer scale mapping of the density of states in an inhomogeneous superconductor, *Europhys. Lett.*, **54**, 84, 2001.
- CROMMIE, M., C. LUTZ et D. EIGLER, Confinement of electrons to quantum corrals on a metal surface, *Science*, **262**, 218, 1993.
- CROSET, B., Y. GIRARD, G. PRÉVOT, M. SOTTO, Y. GARREAU, R. PINCHAUX et M. SAUVAGE-SIMKIN, Measuring Surface Stress Discontinuities in Self-Organized Systems with X Rays, *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 056103, 2002.
- DALLMEYER, A., C. CARBONE, W. EBERHARDT, C. PAMPUCH, O. RADER, W. GUDAT, P. GAMBARDELLA et K. KERN, Electronic states and magnetism of monoatomic Co and Cu wires, *Phys. Rev. B*, **61**, R5133, 2000.
- DANG, K. L., P. VEILLET, E. VÉLU, S. PARKIN et C. CHAPPERT, Influence of crystal structure on the magnetoresistance of Co/Cu multilayers, *Appl. Phys. Lett.*, **63**, 108, 1993.
- DE GRONCKEL, H., P. BLOEMEN, E. VAN ALPHEN et W. DE JONGE, Structure and local magnetic anisotropy of MBE-grown Co films, *Phys. Rev. Lett.*, **49**, 11327, 1994.
- DE LA FIGUERA, J., M. HUERTA-GARNICA, J. E. PRIETO, C. OCAL et R. MIRANDA, Fabrication of magnetic quantum wires by step-flow growth of cobalt on copper surfaces, *Appl. Phys. Lett.*, **66**, 1006, 1995.
- DEN BROEDER, F., D. KUIPER, A. VAN DE MOSSELAER et W. HOVING, Perpendicular Magnetic Anisotropy of Co-Au Multilayers Induced by Interface Sharpening, *Phys. Rev. Lett.*, **60**, 2769, 1988.
- DHESI, S. S., H. A. DÜRR et G. VAN DER LAAN, Canted spin structures in Ni films on stepped Cu(001), *Phys. Rev. B*, **59**, 8408, 1999.

- DING, H., S. PÜTTER, H. OEPEN et J. KIRSCHNER, Spin-reorientation transition in thin films studied by the component-resolved Kerr effect, *Phys. Rev. B*, **63**, 134425, 2001.
- DJURBERG, C., P. SVEDLINDH, P. NORDBLAD, M. HANSEN, F. B. DKER et S. M. RUP, Dynamics of an Interacting Particle System : Evidence of Critical Slowing Down, *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 5154, 1997.
- DOVA, P., H. LAIDLER, K. O'GRADY, M. TONEY et M. DOERNER, Effects of stacking faults on magnetic viscosity in thin film magnetic recording media, *J. Appl. Phys.*, **85**, 2775, 1999.
- DÜRR, H., S. DHESI, E. DUDZIK, D. KNABEN, G. VAN DER LAAN, J. GOEDKOOP et F. HILLEBRECHT, Spin and orbital magnetization in self assembled Co clusters on Au(111), *Phys. Rev. B*, **59**, R701, 1999.
- EIGLER, D. et E. SCHWEIZER, Positioning single atoms with a scanning tunnelling microscope, *Nature*, **344**, 524, 1990.
- EL-BATANOUNY, M., S. BURDICK, K. MARTINI et P. STANCIOFF, Double Sine Gordon Solitons : A Model for Misfit Dislocations on the Au(111) Reconstructed Surface, *Phys. Rev. Lett.*, **58**, 2762, 1987.
- ELLMER, H., V. REPAIN, S. ROUSSET, B. CROSET, M. SOTTO et P. ZEPPEFELD, Self-ordering in two dimensions : nitrogen adsorption on copper (100) followed by STM at elevated temperature, *Surf. Sci.*, **476**, 95, 2001.
- ELMERS, H., J. HAUSCHILD et U. GRADMANN, Morphology and magnetism of Fe on vicinal W(100) surfaces with different step orientation, *J. Mag. Mag. Mat.*, **221**, 219, 2000.
- ELMERS, H., J. HAUSCHILD, H. HÖCHE, U. GRADMANN, H. BETHGE, D. HEUER et U. KÖLHER, Submonolayer Magnetism of Fe(110) on W(110) : Finite Width Scaling of Stripes and Percolation between Islands, *Phys. Rev. Lett*, **73**, 898, 1994.
- EMUNDS, A., H. BONZEL, P. WYNBLATT, K. THÜRMER, J. REUTT-ROBEY et E. WILLIAMS, Continuous and discontinuous transitions on 3D equilibrium crystal shapes : a new look at Pb and Au, *Surf. Sci.*, **481**, 13, 2001.
- ESTEVEZ-RAMS, E., J. MARTINEZ, A. PENTON-MADRIGAL et R. LORA-SERRANO, Direct solution of the diffraction pattern of a crystal with planar faulting, *Phys. Rev. B*, **63**, 054109-1, 2001.
- FARLE, M., B. MIRWALDŮSCHULZ, A. ANISIMOV, W. PLATOW et K. BABERSCHKE, Higher-order magnetic anisotropies and the nature of the spin-reorientation transition in face-centered-tetragonal Ni(001)/Cu(001), *Phys. Rev. B*, **55**, 3708, 1997.
- FEIDENHANS, R., Surface Structure Determination by X-ray Diffraction, *Surf. Sci. Rep.*, **10**, 105, 1989.

- FERRÉ, J., J. JAMET, J. POMMIER, P. BEAUVILLAIN, C. CHAPPERT, R. MEGY et P. VEILLET, Domains and magnetization reversal dynamics in Au/Co/Au(111) ultrathin films : Co and Au thickness dependence, *J. Mag. Mag. Mat.*, **174**, 77, 1997.
- FERRÉ, J., G. PÉNISSARD, C. MARLIÈRE, D. RENARD, P. BEAUVILLAIN et J. RENARD, Magneto-optical studies of Co/Au ultrathin metallic films, *Appl. Phys. Lett.*, **56**, 1588, 1990.
- FRANK, F. et J. V. DER MERWE, One-dimensional dislocations : Influence of the second harmonic term in the potential representation, on the properties of the model, *Proc. Roy. Soc. London*, **200 A**, 125, 1949.
- FRITZSCHE, H., J. KOHLHEEP, H. ELMERS et U. GRADMANN, Angular dependence of perpendicular magnetic surface anisotropy and the spin-reorientation transition, *Phys. Rev. B*, **49**, 15665, 1994.
- FRUCHART, O., P. JUBERT, C. MEYER, M. KLAUA, J. BARTHEL et J. KIRSCHNER, Vertical self-organization of epitaxial magnetic nanostructures, *J. Magn. Magn. Mat.*, **239**, 224, 2002.
- FRUCHART, O., M. KLAUA, J. BARTHEL et J. KIRSCHNER, Self-Organized Growth of Nanosized Vertical Magnetic Co Pillars on Au(111), *Phys. Rev. Lett.*, **83**, 2769, 1999.
- GAMBARDELLA, P., M. BLANC, L. BÜRGI, K. KUHNKE et K. KERN, Co growth on Pt(997) : From monatomic chains to monolayer completion, *Surf. Sci.*, **449**, 93, 2000a.
- GAMBARDELLA, P., M. BLANC, K. KUHNKE et K. KERN, One-dimensional metal chains on Pt vicinal surfaces, *Phys. Rev. B*, **61**, 2254, 2000b.
- GAMBARDELLA, P., M. BLANC, K. KUHNKE, K. KERN, F. PICAUD, C. RAMSEYER, C. GIRARDET, C. BARRETEAU, D. SPANJAARD et M. DESJONQUÈRES, Growth of composition-modulated Ag/Co wires on Pt(997), *Phys. Rev. B*, **64**, 045404, 2001.
- GAMBARDELLA, P., A. DALLMEYER, K. MAITI, M. MALAGOLI, W. EBERHARDT, K. KERN et C. CARBONE, Ferromagnetism in one-dimensional monatomic metal chains, *Nature*, **416**, 301, 2002a.
- GAMBARDELLA, P., S. DHESI, S. GARDONIO, C. GRAZIOLI, P. OHRESSER et C. CARBONE, Localized Magnetic States of Fe, Co, and Ni Impurities on Alkali Metal Films, *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 047202, 2002b.
- GAMBARDELLA, P., S. RUSPONI, M. VERONESE, S. DHESI, C. GRAZIOLI, A. DALLMEYER, I. CABRIA, R. ZELLER, P. DEDERICH, K. KERN, C. CARBONE et H. BRUNE, Anisotropy of Single Cobalt Atoms and Nanoparticles, *Science*, **300**, 1130, 2003.
- GARREAU, Y., A. COATI, A. ZOBELLI et J. CREUZE, "Magic" Heteroepitaxial Growth on Vicinal Surfaces, *Phys. Rev. Lett.*, **91**, 116101, 2003.

- GENTNER, T., F. SCHEURER, T. DETZEL et J. BUCHER, Growth, morphology and annealing of thin Co layers on Au/mica, *Thin Solid Films*, **275**, 58, 1996.
- GOYHENEX, C., communication privée, 2003.
- GOYHENEX, C. et H. BULOU, Theoretical insight in the energetics of Co adsorption on a reconstructed Au(111) substrate, *Phys. Rev. B*, **63**, 235404, 2001.
- GOYHENEX, C., H. BULOU, J. DEVILLE et G. TRÉGLIA, Atomistic simulations of relaxation and reconstruction phenomena in heteroepitaxy : Co/Au (111), *Appl. Surf. Sci.*, **188**, 134, 2002.
- GROLIER, V., J. FERRÉ, M. GALTIER et M. MULLOY, Spin reversal in Co/Au(111)/Co trilayers, *J. Appl. Phys.*, **76**, 6983, 1994.
- GROLIER, V., J. FERRÉ, A. MAZIEWSKI, E. STEFANOWICZ et D. RENARD, Magneto-optical anisometry of ultrathin cobalt films, *J. Appl. Phys.*, **73**, 5939, 1993.
- GUINIER, A., *Théorie et technique de la radiocristallographie*, Dunod, Paris, 1964.
- GÜNTHER, C., J. VRIJMOETH, R. HWANG et R. BEHM, Strain Relaxation in Hexagonally Close-Packed Metal-Metal Interfaces, *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 754, 1994.
- GUTJAHR-LÖSER, T., D. SANDER et J. KIRSCHNER, Magnetoelastic coupling in Co films on W(001), *J. Mag. Mag. Mat.*, **220**, L1, 2000.
- HAMRLE, J., *Détermination du profil de l'aimantation en profondeur dans des structures multicouches magnétiques par magnéto-optique*, Thèse de doctorat, Université Paris XI, UFR Scientifique d'Orsay - Faculté de Mathématique et de Physique, Université Charles de Prague, 2003.
- HAMRLE, J., J. FERRÉ, J. JAMET, V. REPAIN, G. BAUDOT et S. ROUSSET, Vicinal interface sensitive magneto-optical Kerr effect : Application to Co/Au(322), *Phys. Rev. B*, **67**, 155411, 2003.
- HAMRLE, J., J. FERRÉ, M. NÝVLT et S. VIŠŇOVSKÝ, In-depth resolution of the magneto-optical Kerr effect in ferromagnetic multilayers, *Phys. Rev. B*, **66**, 224423, 2002.
- HÄNGGI, P., P. TALKNER et M. BORKOVEC, Reaction-rate theory : fifty years after Kramers, *Rev. Mod. Phys.*, **62**, 251, 1990.
- HARTEN, U., A. LAHEE, J. TOENNIS et C. WÖMM, Observation of a Soliton Reconstruction of Au(111) by High-Resolution Helium-Atom Diffraction, *Phys. Rev. Lett.*, **54**, 2619, 1985.
- HAUSCHILD, J., H. ELMERS et U. GRADMANN, Dipolar superferromagnetism in monolayer nanostripes of Fe(110) on vicinal W(110) surfaces, *Phys. Rev. B*, **57**, R677, 1998.
- HEINRICH, B., K. URQUHART, A. ARROTT, J. COCHRAN, K. MYRTLE et S. PURCELL, Ferromagnetic-resonance study of ultrathin bcc Fe(100) films grown epitaxially on fcc Ag(100) substrates, *Phys. Rev. Lett.*, **59**, 1756, 1987.

- HELD, G., G. GRINSTEIN, H. DOYLE, S. SUN et C. MURRAY, Competing interactions in dispersions of superparamagnetic nanoparticles, *Phys. Rev. B*, **64**, 012408, 2001.
- HENDRIKSEN, P., S. LINDEROTH et P. LINDGÅRD, Finite-size modifications of the magnetic properties of clusters, *Phys. Rev. B*, **48**, 7529, 1993.
- HEYRAUD, J. et J. METOIS, Establishment of the equilibrium shape of metal crystallites on a foreign substrate. Gold on graphite, *J. Cryst. Growth*, **50**, 571, 1980.
- HOFMANN, P., K. ROSE, V. FERANADEZ, A. BRADSHAW et W. RICHTER, Study of Surface States on Cu(110) Using Optical Reflectance Anisotropy, *Phys. Rev. Lett.*, **75**, 2039, 1995.
- HOLLOWAY, L. et H. LAIDLER, Measurement of stacking fault densities in CoCrPt thin film media using grazing incidence x-ray scattering, *J. Appl. Phys.*, **87**, 5690, 2000.
- HOLLOWAY, L., H. LAIDLER, N. TELLING et S. WU, Role of crystallographic structure on magnetization reversal of (10 $\bar{1}0$ ) and (11 $\bar{2}0$ ) textured thin film media, *J. Appl. Phys.*, **90**, 4056, 2001.
- HUANG, K., D. GIBBS, D. ZEHNER, A. SANDY et S. MOCHRIE, Phase Behavior of the Au(111) Surface : Discommensurations and Kinks, *Phys. Rev. Lett.*, **65**, 3313, 1990.
- HUBERT, A. et R. SCHAFFER, *Magnetic Domains*, Springer, 1998.
- HULME, H., *Proc. Roy. Soc. A*, **135**, 237, 1932.
- HYMAN, R., A. ZANGWILL et M. STILES, Magnetic reversal on vicinal surfaces, *Phys. Rev. B*, **58**, 9276, 1998.
- IBACH, H., The role of surface stress in reconstruction, epitaxial growth and stabilization of mesoscopic structures, *Surf. Sci. Rep.*, **29**, 193, 1997.
- JACOBSEN, J., L. P. NIELSEN, F. BESENBACHER, I. STENSGAARD, E. L. GSGAARD, T. RASMUSSEN, K. JACOBSEN et J. N. RSKOV, Atomic-Scale Determination of Misfit Dislocation Loops at Metal-Metal Interfaces, *Phys. Rev. Lett.*, **75**, 489, 1995.
- JÄHNKE, V., J. GÜDDE et E. MATTHIAS, Spiral-like motion of the magnetization direction during reorientation in Ni-films on Cu(001), *J. Mag. Mag. Mat.*, **237**, 69, 2001.
- JAMET, M., W. WERNSDORFER, C. THIRION, D. MAILLY, V. DUPUIS, P. MELINON et A. PÉREZ, Magnetic anisotropy of a single cobalt nanocluster, *Phys. Rev. Lett.*, **86**, 4676, 2000.
- JENSEN, P., A. BARABÁSI, H. LARRALDE, S. HAVLIN et H. STANLEY, Deposition, diffusion, and aggregation of atoms on surfaces : A model for nanostructure growth, *Phys. Rev. B*, **50**, 15316, 1994.

- JEONG, H. et E. WILLIAMS, Steps on surfaces : experiment and theory, *Surf. Sci. Rep.*, **34**, 171, 1999.
- JESSER, W. et J. V. DER MERWE, The size dependence of equilibrium elastic strain in finite epitaxial islands, *Surf. Sci.*, **31**, 229, 1972.
- JOHNSON, P. et R. CHRISTY, Optical Constants of the Noble Metals, *Phys. Rev. B*, **6**, 4370, 1972.
- JOHNSON, P. et R. CHRISTY, Optical Constants of the Noble Metals, *Phys. Rev. B*, **9**, 5056, 1974.
- JOMNI, S., N. MLIKI, R. BELHI, K. ABDELMOULA, M. AYADI et G. NIHOUL, Face centred cubic cobalt ultrathin-layers in Au/Co(111) multilayers : a study by electron diffraction and by HREM, *Thin Sol. Films*, **370**, 186, 2000.
- KAWAKAMI, R., M. BOWEN, H. J. CHOI, E. J. ESCORCIA-APARICIO et Z. Q. QIU, Effect of atomic steps on the magnetic anisotropy in vicinal Co/Cu(001), *Phys. Rev. B*, **58**, R5924, 1998.
- KAWAKAMI, R., E. ESCORCIA-APARICIO et Z. QIU, Symmetry-induced magnetic anisotropy in Fe films grown on a stepped Ag(100), *Phys. Rev. Lett.*, **77**, 2570, 1996.
- KERN, K., H. NIEHUS, A. SCHATZ, P. ZEPPENFELD, J. GOERGE et G. COMSA, Long-range spatial self-organization in the adsorbate-induced restructuring of surfaces : Cu{110}-(2 x 1)O, *Phys. Rev. Lett.*, **67**, 855, 1991.
- KITTEL, C., Physical Theory of Ferromagnetic Domains, *Rev. Mod. Phys.*, **21**, 541, 1949.
- KOIDE, T., H. MIYAUCHI, J. OKAMOTO, T. SHIDARA, A. FUJIMORI, H. FUKUTANI, K. AMEMIYA, H. TAKESHITA, S. YUASA, T. KATAYAMA et Y. SUZUKI, Direct Determination of Interfacial Magnetic Moments with a Magnetic Phase Transition in Co Nanoclusters on Au(111), *Phys. Rev. Lett.*, **87**, 257201, 2001.
- KONDORSKY, E., *J. Phys. (Moscow)*, **2**, 161, 1940.
- KUBO, R., M. TODA et N. HASHITSUME, *Statistical physics 2 : non equilibrium statistical mechanics*, Springer-Verlag, Berlin, 1991.
- LANDAU, L. et E. LIFSCHITZ, *Electrodynamics of Continuous Media*, Pergamon, New-York, 1960.
- LANDAU, L. et E. LIFSCHITZ, *Electrodynamics of Continuous Media*, Mir, ed. librairie du globe, 1969.
- LANDAU, L. et E. LIFSCHITZ, On the theory of the dispersion of magnetic permeability in ferromagnetic bodies, *Phys. Z. Sowjetunion*, **8**, 153, 1935.
- LANGER, J., J. HUNTER-DUNN, A. HAHLIN, O. KARIS, R. SELLMANN, D. ARVANITIS et H. MALETTA, Cap layer influence on the spin reorientation transition in Au/Co/Au, *Phys. Rev. B*, **66**, 172401, 2002.

- LANGER, J., R. SELLMANN, J. HUNTER-DUNN, A. HAHLIN, O. KARIS, D. ARVANITIS et H. MALETTA, A circularly polarized X-ray study of the temperature-dependent spin-reorientation transition of thin Co films, *J. Magn. Magn. Mater.*, **226-230**, 1675, 2001.
- LAUHON, L. et W. HO, Control and Characterization of a Multistep Unimolecular Reaction, *Phys Rev. Lett.*, **84**, 1527, 200.
- LEE, H. et W. HO, Single-Bond Formation and Characterization with a Scanning Tunneling Microscope, *Science*, **286**, 1719, 1999.
- LIU, Y., D. SUN et X. GONG, Local strain induced anisotropic diffusion on  $(22 \times \sqrt{3})$ -Au(111) surface, *Surf. Sci.*, **498**, 337, 2003.
- LU, B., T. KLEMMER, K. WIERMAN, G. JU, D. WELLER, A. ROY, D. LAUGHLIN, C. CHANG et R. RANJAN, Study of stacking faults in Co-alloy perpendicular media, *J. Appl. Phys.*, **91**, 8025, 2002.
- LYNCH, D. et W. HUNTER, *Handbook of Optical Constants of Solids II*, E.D. Palik, San-Diego, 1991.
- MARCHENKO, V., Theory of the equilibrium shape of crystals, *Sov. Phys. JETP*, **54**, 605, 1981.
- MARCHENKO, V., Domain structure in oxygen on a Cu(110) surface, *JETP Lett.*, **55**, 73, 1992.
- MARSOT, N., *Croissance et structure des couches minces magnétiques Co/Au*, Thèse de doctorat, Université de Paris-Sud (Paris 11), 1999.
- MARSOT, N., R. BELKHOUE, H. MAGNAN, P. L. FÈVRE, C. GUILLOT et D. CHANDESIS, Structure and local order in Co magnetic thin films on Au(111) : A surface EXAFS study, *Phys. Rev. B*, **59**, 3135, 1999.
- MAXWELL, J., *A treatise on Electricity and Magnetism, Vol. II, Chap. XXI*, Clarendon Press, Oxford, 1873.
- MAZINE, V. et Y. BORENSZTEIN, Monitoring the Transitions of the Charge-Induced Reconstruction of Au(110) by Reflectance Anisotropy Spectroscopy, *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 147403, 2002.
- MCGEE, N., M. JOHNSON, J. DE VRIES et J. AAN DE STEGGE, Localized Kerr study of the magnetic properties of an ultrathin epitaxial Co wedge grown on Pt(111), *J. Appl. Phys.*, **73**, 3418, 1993.
- MERIKOSKI, J., J. TIMONEN, M. MANNINEN et P. JENA, Ferromagnetism in small clusters, *Phys. Rev. Lett.*, **66**, 938, 1991.
- MERMIN, N. et H. WAGNER, Absence of Ferromagnetism or Antiferromagnetism in One- or Two-Dimensional Isotropic Heisenberg Models, *Phys. Rev. Lett.*, **17**, 1133, 1966.

- MEYER, J., I. BAIKIE, E. KOPATZKI et R. BEHM, Preferential island nucleation at the elbows of the Au(111) herringbone reconstruction through place exchange, *Surf. Sci.*, **365**, L647, 1996.
- MOOG, E. et S. BADER, *Superlattices Microstruct.*, **1**, 543, 1985.
- NARASIMHAN, S. et D. VANDERBILT, Elastic Stress Domains and the Herringbone Reconstruction on Au(111), *Phys. Rev. Lett.*, **69**, 1564, 1992.
- NEEDS, R. et M. MANSFIELD, Calculations of the surface stress tensor and surface energy of the (111) surfaces of iridium, platinum and gold, *J. Phys. : Condens. Matter*, **1**, 7555, 1989.
- NEEL, L., Quelques propriétés des parois de domaines élémentaires ferromagnétiques, *Cah. Phys.*, **25**, 1, 1944.
- NEEL, L., L'anisotropie superficielle des substances ferromagnétiques, *C.R. Acad. Sci. (Paris)*, **237**, 1468, 1953.
- NEEL, L., L'approche à la saturation de la magnétostriction, *J. Phys. Rad.*, **15**, 376, 1954.
- NEEL, L., Sur un nouveau mode de couplage entre les aimantations de deux couches minces ferromagnétiques, *C.R. Acad. Sci. (Paris)*, **255**, 1676, 1962.
- O'BRIEN, W. et B. TONNER, Transition to the perpendicular easy axis of magnetization in Ni ultrathin films found by x-ray magnetic circular dichroism, *Phys. Rev. B*, **49**, 15370, 1994.
- OHRESSER, P., N. BROOKES, S. PADOVANI, F. SCHEURER et H. BULOUE, Magnetism of small Fe clusters on Au(111) studied by x-ray magnetic circular dichroism, *Phys. Rev. B*, **64**, 104429, 2001.
- OLIVIER, S., A. SAÚL et G. TRÉGLIA, Relation between surface stress and (1×2) reconstruction for (110) fcc transition metal surfaces, *Appl. Surf. Sci.*, **212**, 866, 2003.
- OULD-MAHFOUD, S., R. MÉGY, N. BARDOU, B. BARTENLIAN, P. BEAUVILLAIN, C. CHAPPERT, J. CORNO, B. LECUYER, G. SCZIGEL, P. VEILLET et D. WELER, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, **313**, 251, 1993.
- PADOVANI, S., I. CHADO, F. SCHEURER et J. BUCHER, Transition from zero-dimensional superparamagnetism to two-dimensional ferromagnetism of Co clusters on Au(111), *Phys. Rev. B*, **59**, 11887, 1999a.
- PADOVANI, S., F. SCHEURER et J. BUCHER, Burrowing self-organized cobalt clusters into a gold substrate, *Europhys. Lett.*, **45**, 327, 1999b.
- PAPPAS, D., K. KÄMPER et H. HOPSTER, Reversible transition between perpendicular and in-plane magnetization in ultrathin films, *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 3179, 1990.
- PATERSON, M., X-Ray Diffraction by Face-Centered Cubic Crystals with Deformation Faults, *J. Appl. Phys.*, **23**, 805, 1952.

- PETIT, C., A. TALEB et M. PILENI, Cobalt Nanosized Particles Organized in a 2D Superlattice : Synthesis, Characterization, and Magnetic Properties, *J. Phys. Chem. B*, **103**, 1805, 1999.
- PETUKHOV, A., A. KIRILYUK et T. RASING, Surface-induced tranverse magneto-optical Kerr effect, *Phys. Rev. B*, **59**, 4211, 1999.
- PIERCE, D., R. CELOTTA, J. UNGURIS et H. SIEGMANN, Spin-dependent elastic scattering of electrons from a ferromagnetic glass,  $\text{Ni}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ , *J. Appl. Phys.*, **23**, 805, 1952.
- PIETZSCH, O., A. KUBETZKA, M. BODE et R. WIESENDANGER, Real-Space Observation of Dipolar Antiferromagnetism in Magnetic Nanowires by Spin-Polarized Scanning Tunneling Spectroscopy, *Phys. Rev. Lett.*, **84**, 5212, 2000.
- PIZZINI, S., F. BAUDELET, A. FONTAINE, M. GALTIER, D. RENARD et C. MARLIÈRE, Structure of Co/Cu multilayers studied by x-ray diffraction and x-ray absorption spectroscopy, *Phys. Rev. B*, **47**, 8754, 1993.
- PLUMER, M. L., J. VAN EK et D. WELLER, *The Physics of Ultra-High-Density Magnetic Recording*, tome 41 de *Springer Series in Surface Sciences*, Springer, Berlin, 2001.
- POMMIER, J., P. MEYER, G. PENISSARD, J. FERRÉ, P. BRUNO et D. RENARD, Magnetization reversal in ultrathin ferromagnetic films with perpendicular anisotropy : domain observations, *Phys. Rev. Lett.*, **65**, 2054, 1990.
- POULOPOULOS, P., J. LINDNER, M. FARLE et K. BABERSCHKE, Changes of magnetic anisotropy due to roughness : a quantitative scanning tunneling microscopy study on Ni/Cu(001), *Surf. Sci.*, **437**, 277, 1999.
- PRATZER, M., H. ELMERS, M. BODE, O. PIETZSCH, A. KUBETZKA et R. WIESENDANGER, Atomic-Scale Magnetic Domain Walls in Quasi-One-Dimensional Fe nanostripes, *Phys. Rev. Lett.*, **87**, 127201, 2001.
- PRÉVOT, G., P. STEADMAN et S. FERRER, Determination of the elastic dipole at the atomic steps of Pt(977) from surface x-ray diffraction, *Phys. Rev. B*, **67**, 245409, 2003.
- PURCELL, S., M. JOHNSON, N. MCGEE, J. DE VRIES, W. ZEPER et W. HOVING, Local structural and polar Kerr effect measurements on an ultrathin epitaxial Co wedge grown on Pd(111), *J. Appl. Phys.*, **73**, 1360, 1993.
- PURCELL, S., M. JOHNSON, N. MCGEE, W. ZEPER et W. HOVING, Spatially resolved magneto-optical investigation of the perpendicular anisotropy in a wedge-shaped ultrathin epitaxial Co layer on Pd(111), *J. Mag. Mag. Mat.*, **113**, 257, 1992.
- PÜTTER, S., H. D. ANDY.T. MILLEV, H. OEPEN et J. KIRSCHNER, Magnetic susceptibility : An easy approach to the spin-reorientation transition, *Phys. Rev. B*, **64**, 092409, 2001.

- QIU, Z. et S. BADER, Symmetry breaking at magnetic surfaces and interfaces, *Surf. Sci.*, **438**, 319, 1999.
- QIU, Z. et S. BADER, Surface magneto-optic Kerr effect, *Rev. Sci. Instr.*, **71**, 1243, 2000.
- QIU, Z., J. PEARSON et S. BADER, Asymmetry of the spin reorientation transition in ultrathin Fe films and wedges grown on Ag(100), *Phys. Rev. Lett.*, **70**, 1006, 1993.
- RATH, C., J. PRIETO, S. MÜLLER, R. MIRANDA et K. HEINZ, hcp-to-fcc stacking switch in thin cobalt films induced by Cu capping, *Phys. Rev. B*, **55**, 10791, 1997.
- RAVELO, R. et M. EL-BATANOUNY, Molecular-dynamics study of the reconstructed Au(111) surface : Low temperature, *Phys. Rev. B*, **40**, 9574, 1989.
- REPAIN, V., *Auto-organisation sur les surfaces cristallines et applications à la croissance de nanostructures*, Thèse de doctorat, Université Denis Diderot - Paris 7, 2001.
- REPAIN, V., G. BAUDOT, H. ELLMER et S. ROUSSET, Two-dimensional long-range order growth of uniform cobalt nanostructures on a Au(111) vicinal template, *Europhys. Lett.*, **58**, 730, 2002.
- REPAIN, V., J. BERROIR, B. CROSET, S. ROUSSET, Y. GARREAU, V. ETGENS et J. LECOEUR, Interplay between Atomic and Mesoscopic Order on Gold Vicinal Surfaces, *Phys. Rev. Lett.*, **84**, 5367, 2000a.
- REPAIN, V., J. BERROIR, S. ROUSSET et J. LECOEUR, Interaction between steps and reconstruction on Au(111), *Europhys. Lett.*, **47**, 435, 1999.
- REPAIN, V., J. BERROIR, S. ROUSSET et J. LECOEUR, Reconstruction, step edges and self-organization on the Au(111) surface, *Appl. Surf. Sci.*, **162-163**, 30, 2000b.
- RICKART, M., S. DEMOKRITOV et B. HILLEBRANDS, Non-monotonic step-induced magnetic anisotropy of Fe films prepared on vicinal Au(001) surfaces with different step orientations, *J. Phys. : Condens. Matter.*, **14**, 8947, 2002.
- ROBINSON, I. et D. TWEET, Surface X-ray Diffraction, *Rep. Prog. Phys.*, **55**, 599, 1992.
- ROUSSET, S., F. POURMIR, J. BERROIR, J. KLEIN, J. LECOEUR, P. HECQUET et B. SALANON, Self-organization on Au(111) vicinal surfaces and the role of surface stress, *Surf. Sci.*, **422**, 33, 1999.
- ROUSSET, S., V. REPAIN, G. BAUDOT, H. ELLMER, Y. GARREAU, V. ETGENS, J. BERROIR, B. CROSET, M. SOTTO, P. ZEPPENFELD, J. FERRÉ, J. JAMET, C. CHAPPERT et J. LECOEUR, Self-ordering on crystal surfaces : fundamentals and applications, *Mater. Sci. Eng. B*, **96**, 169, 2002.

- RUSPONI, S., T. CREN, N. WEISS, M. EPPLE, P. BULUSCHEK, L. CLAUDE et H. BRUNE, The remarkable difference between surface and step atoms in the magnetic anisotropy of two-dimensional nanostructures, *Nature Mat.*, **2**, 546, 2003.
- SABIRYANOV, R., K. CHO, M. LARSSON, W. NIX et B. CLEMENS, Growth and properties of small Co islands on a strained Pt surface, *J. Magn. Magn. Mater.*, **258-259**, 365, 2003.
- SANDER, D., The correlation between mechanical stress and magnetic anisotropy in ultrathin films, *Rep. Prog. Phys.*, **62**, 809, 1999.
- SANDY, A., S. MOCHRIE, D. ZEHNER, K. HUANG et D. GIBBS, Structure and phases of the Au(111) surface : X-ray-scattering measurements, *Phys. Rev. B*, **43**, 4667, 1991.
- SATO, K., *Jap. J. Appl. Phys.*, **20**, 2403, 1981.
- SCHULZ, B. et K. BABERSCHKE, Crossover from in-plane to perpendicular magnetization in ultrathin Ni/Cu(001) films, *Phys. Rev. B*, **50**, 13467, 1994.
- SELLMAN, R., H. FRITZSCHE, H. MALETTA, V. LEINER et R. SIEBRECHT, Spin-reorientation transition and magnetic phase diagrams of thin epitaxial Au(111)/Co films with W and Au overlayers, *Phys. Rev. B*, **64**, 054418, 2001.
- SHCHUKIN, V. et D. BIMBERG, Spontaneous ordering of nanostructures on crystal surfaces, *Rev. Mod. Phys.*, **71**, 1125, 1999.
- SHEN, J. et J. KIRSCHNER, Tailoring magnetism in artificially structured materials : the new frontier, *Surf. Sci.*, **500**, 300, 2002.
- SHEN, J., R. SKOMSKI, M. KLAUA, H. JENNICHES, S. S. MANOHARAN et J. KIRSCHNER, Magnetism in one dimension : Fe on Cu(11), *Phys. Rev. B*, **56**, 2340, 1997.
- SHICK, A., Y. GORNOSTYREV et A. FREEMAN, Magnetoelastic mechanism of spin reorientation transition at step edges, *Phys. Rev. B*, **60**, 3029, 1999.
- SPECKMANN, M., H. P. OEPEN et H. IBACH, Magnetic Domain Structures in Ultrathin Co/Au(111) : On the Influence of Film Morphology, *Phys. Rev. Lett.*, **75**, 2035, 1995.
- STAHRENBURG, K., T. HERRMANN, N. ESSER, W. RICHTER, S. V. HOFFMANN et P. HOFMANN, Optical properties of the Au(110) surface, *Phys. Rev. B*, **65**, 035407, 2001.
- STEPHENSON, A., C. BADDELEY, M. TIKHOV et R. LAMBERT, Nucleation and growth of catalytically active Pd islands on Au(111)- $22\times\sqrt{3}$  studied by scanning tunnelling microscopy, *Surf. Sci.*, **398**, 172, 1998.
- STIPE, B., M. REZAEI et W. HO, Coupling of Vibrational Excitation to the Rotational Motion of a Single Adsorbed Molecule, *Phys. Rev. Lett.*, **81**, 1263, 1998a.

- STIPE, B., M. REZAEI et W. HO, Single-Molecule Vibrational Spectroscopy and Microscopy, *Science*, **280**, 1732, 1998b.
- STIPE, B., M. REZAEI et W. HO, A Variable-Temperature Scanning Tunneling Microscope Capable of Single-Molecule Vibrational Spectroscopy, *Rev. Sci. Instrum.*, **70**, 137, 1999.
- STÖHR, J., Exploring the microscopic origin of magnetic anisotropies with X-ray magnetic circular dichroism (XMCD) spectroscopy, *J. Mag. Mag. Mat.*, **200**, 470, 1999.
- SUN, S., C. MURRAY, D. WELLER, L. FOLKS et A. MOSER, Monodisperse FePt Nanoparticles and Ferromagnetic FePt Nanocrystal Superlattices, *Science*, **287**, 1989, 2000.
- SURNEV, S., B. VOIGTLÄNDER, H. BONZEL et W. MULLINS, Anisotropic profile decay on perturbed Au(111) vicinal surfaces, *Surf. Sci.*, **360**, 242, 1996.
- TAKAHASHI, Y., K. TANAHASHI et Y. HOSOE, Stacking faults in Co-Cr-Pt perpendicular magnetic recording media, *J. Appl. Phys.*, **91**, 8022, 2002.
- TAKEUCHI, N., C. CHAN et K. HO, Au(111) : A theoretical study of the surface reconstruction and the surface electronic structure, *Phys. Rev. B*, **43**, 13899, 1991.
- TERSOFF, J., Surface-Confined Alloy Formation in Immiscible Systems, *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 434, 1995.
- TERSOFF, J. et D. HAMANN, Theory of the scanning tunneling microscope, *Phys. Rev. B*, **31**, 805, 1985.
- TOLKES, C., P. ZEPPENFELD, M. KRZYZOWSKI, R. DAVID et G. COMSA, Growth and stability of cobalt nanostructures on gold (111), *Surf. Sci.*, **394**, 170, 1997.
- TONNER, B., Z. HAN et J. ZHANG, Structure of Co films grown on Cu(111) studied by photoelectron diffraction, *Phys. Rev. B*, **47**, 9723, 1993.
- VANDERBILT, D., Phase segregation and work-function variations on metal surfaces : spontaneous formation of periodic domain structures, *Surf. Sci.*, **268**, L300, 1992.
- VANVLECK, J., On the Anisotropy of Cubic Ferromagnetic Crystals, *Phys. Rev.*, **52**, 1178, 1937.
- VENABLES, J., Rate equation approaches to thin film nucleation kinetics, *Phil. Mag.*, **17**, 697, 1973.
- VENABLES, J., Nucleation calculations in a pair-binding model, *Phys. Rev. B*, **36**, 4153, 1987.
- VITOS, L., A. RUBAN, H. SKRIVER et J. KOLLÀR, The surface energy of metals, *Surf. Sci.*, **411**, 186, 1998.
- VIŠŇOVSKÝ, S., *Czech. J. Phys.*, **B36**, 625, 1986.

- VIŠŇOVSKÝ, S., M. NÝVLT, V. PROSSER, R. LOPUŠNIK, R. URBAN, J. FERRÉ, G. PÉNISSARD, J. RENARD et R. KRISHNAN, Polar magneto-optics in simple ultrathin-magnetic-film structures, *Phys. Rev. B*, **52**, 1090, 1995.
- VOIGT, W., *Magneto-und Elektrooptic*, B.G. Teubner, Leipzig, 1908.
- VOIGTLÄNDER, B., G. MEYER et N. AMER, Epitaxial growth of Fe on Au(111) : a scanning tunneling microscopy investigation, *Surf. Sci.*, **255**, L529, 1991a.
- VOIGTLÄNDER, B., G. MEYER et N. AMER, Epitaxial growth of thin magnetic cobalt films on Au(111) studied by scanning tunneling microscopy, *Phys. Rev. B*, **44**, 10354, 1991b.
- WANG, Z. et P. WYNBLATT, The equilibrium form of pure gold crystals, *Surf. Sci.*, **398**, 259, 1998.
- WATSONA, G. M., D. GIBBS, S. SONG, A. SANDY, S. MOCHRIE et D. M. ZEHNER, Faceting and reconstruction of stepped Au(111), *Phys. Rev. B*, **52**, 12329, 1995.
- WEBER, W., C. BACH, A. BISHOF, D. PESCIA et R. ALLENSPACH, Magnetic switching in cobalt films by adsorption of copper, *Nature*, **374**, 788, 1995.
- WERNSDORFER, W., Classical and quantum magnetization reversal studied in nanometer-sized particles and clusters, *Adv. Chem. Phys.*, **118**, 99–190, 2001.
- WERNSDORFER, W., E. B. OROZCO, K. HASSELBACH, A. BENOIT, B. BARBARA, N. DEMONCY, A. LOISEAU, H. PASCARD et D. MAILLY, Experimental Evidence of the Néel-Brown Model of Magnetization Reversal, *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 1791, 1997.
- WIESENDANGER, R., H. GÜNTHERODT, G. GÜNTHERODT, R. GAMBINO et R. RUF, Observation of vacuum tunneling of spin-polarized electrons with the scanning tunneling microscope, *Phys. Rev. Lett.*, **65**, 247, 1990.
- WILLIAMS, E., Surface steps and surface morphology : understanding macroscopic phenomena from atomic observations, *Surf. Sci.*, **299/300**, 502, 1994.
- WILSON, A., Imperfections in the structure of cobalt, *Proc. Roy. Soc. A*, **180**, 277, 1942.
- WOODS, S., J. KIRTLEY, S. SUN et R. KOCH, Direct Investigation of Superparamagnetism in Co Nanoparticle Films, *Phys. Rev. Lett.*, **87**, 137205–1, 2001.
- WULFHEKEL, W., S. KNAPPMANN et H. OEPEN, Magnetic anisotropy of Co on Cu(1 1 17), *J. Cryst. Growth*, **201/202**, 723, 1997.
- XIAO, G. et C. CHIEN, Temperature dependence of spontaneous magnetization of ultrafine Fe particles in Fe-SiO<sub>2</sub> granular solids, *J. Appl. Phys.*, **8**, 3308, 1987.
- YAFET, Y., E. GYORGY et L. WALKER, Directional dependence of the demagnetizing energy in imperfect thin magnetic films, *J. Appl. Phys.*, **60**, 4236, 1986.
- YAMAGUCHI, T., S. YOSHIDA et A. KINBARA, Optical effect of the substrate on the anomalous absorption of aggregated silver films, *Thin Solid Films*, **21**, 173, 1974.

- YOSIDA, K., *Theory of magnetism*, Springer, 1996.
- ZAK, J., E. MOOG, C. LIU et S. BADER, *J. Magn. Magn. Mater.*, **89**, 107, 1990.
- ZAK, J., E. MOOG, C. LIU et S. BADER, *Phys. Rev. B*, **43**, 6423, 1991.
- ZANGWILL, A., *Physics at surfaces*, Cambridge University Press, 1988.
- ZEPPENFELD, P., M. KRZYZOWSKI, C. ROMAINCZYK, G. COMSA et M. LAGALLY, Size Relation for Surface Systems with Long-Range Interactions, *Phys. Rev. Lett.*, **72**, 2737, 1994.
- ZEPPENFELD, P., M. KRZYZOWSKI, C. ROMAINCZYK, R. DAVID, G. COMSA, H. RÖDER, K. BROMANN, H. BRUNE et K. KERN, Stability of disk and stripe patterns of nanostructures at surfaces, *Surf. Sci.*, **342**, L1131, 1995.
- ZHANG, D., K. K. ABD C.M. SORENSEN et G. HADJIPANAYIS, Magnetization temperature dependence in iron nanoparticles, *Phys. Rev. B*, **58**, 14167, 1998.
- ZHENG, M., J. SHEN, C. MOHAN, P. OHRESSER, J. BARTHEL et J. KIRSCHNER, Suppression of the face-centered-cubic-hexagonal-close packed stacking fault in Co/Cu(111) ultrathin films by pulsed laser deposition, *Appl. Phys. Lett.*, **74**, 425, 1999.