



HAL
open science

CONTRIBUTIONS A L'ETUDE DE COUCHES METALLIQUES ULTRA-MINCES : PROPRIETES STRUCTURALES, ELECTRIQUES, MAGNETIQUES

Christian Marliere

► **To cite this version:**

Christian Marliere. CONTRIBUTIONS A L'ETUDE DE COUCHES METALLIQUES ULTRA-MINCES : PROPRIETES STRUCTURALES, ELECTRIQUES, MAGNETIQUES. Matière Condensée [cond-mat]. Université Paris Sud - Paris XI, 1994. tel-00007871

HAL Id: tel-00007871

<https://theses.hal.science/tel-00007871>

Submitted on 30 Dec 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.

HABILITATION A DIRIGER DES RECHERCHES
EN PHYSIQUE

présentée

à l'Université PARIS XI - Orsay

par **M. Christian MARLIÈRE**

SUJET

CONTRIBUTIONS A L'ETUDE DE COUCHES METALLIQUES ULTRA-MINCES :
PROPRIETES STRUCTURALES, ELECTRIQUES, MAGNETIQUES.

Soutenue le 4 mars 1994 à Orsay devant la commission composée de :

M. J.P. CHAUVINEAU
M. L. COT
M. C. FALCO
M. M. PIECUCH
M. J.-P. RENARD
M. B. RODMACQ

| RAPPORTEURS

**MEMOIRE PRESENTE POUR L'OBTENTION D'UNE
HABILITATION A DIRIGER DES RECHERCHES.**

C. Marlière

Institut d'Optique Théorique et Appliquée
Centre Universitaire d'Orsay - Bât. 503
B.P. 147
91403 Orsay Cedex

Orsay, le 4 mars 1994

MARLIERE

Christian, Albert, Emile

né le 14 août 1958 à Cambrai (59)

Nationalité Française

Situation de famille : 3 enfants nés en 1983, 86 ,89.

Adresse personnelle :

Profession :

Chargé de Recherches au C.N.R.S.

Adresse professionnelle :

Institut d'Optique

Orsay, France

Tél :

Fax :

E-mail :

Cursus universitaire :

1975 : Baccalauréat, série C, académie de Lille, mention très bien

1975-1978 : Classes Préparatoires, Lycée Faidherbe, Lille

1978 : Admission à l'Ecole Normale Supérieure de Saint-Cloud

1978-1982 : Scolarité à l'Ecole Normale Supérieure :

1979 : Licence de Physique et un certificat de maîtrise (Astrophysique), Université Paris XI

1980 : Maîtrise de Physique et un certificat supplémentaire (Champs et Fluides), Université Paris XI

1982 : Agrégation de Sciences Physiques, option Physique

1983 : DEA de Physique du Solide, Université Paris XI

1985 : Thèse de troisième cycle effectuée à l'Institut d'Optique à Orsay sous la direction de Dr. J.P. Chauvineau. Soutenue le 5 mars 1985 devant la commission présidée par Pr. J. Friedel : *Structure, propriétés électriques et travail de sortie de couches doubles indium/or.*

Cursus professionnel :

1985 : Boursier de l'Académie des Sciences (société de secours des amis des sciences)

1986 : Reçu premier au concours d'entrée du C.N.R.S. section physique du solide - cristallographie - . Détachement comme chargé de recherches au C.N.R.S ; Affectation à Institut d' Optique à Orsay.

1987 : Démission du corps des agrégés et titularisation dans le corps des chargés de recherches du C.N.R.S.

1990 : Promotion au grade de chargé de recherches de 1^{ère} classe.

PRESENTATION DETAILLEE DES TRAVAUX ET RESULTATS.

Présentation générale des travaux.....	6
Première Partie : Etude des propriétés structurales et des effets de taille quantiques du système or-indium.	10
Principe des mesures de résistivité électrique.....	11
Le système or/indium :	15
Résultats.	16
Homoépitaxie de l'indium.	16
Croissance de l'indium sur l'or	20
Les mesures de travail de sortie.	32
Principe des mesures.....	32
Résultats.....	35
Absorption d'électrons lents.....	37
Oscillations RHEED quantiques.....	42
Conclusion de la première partie.	45
Deuxième partie : Etude des systèmes de matériaux magnétiques en couches minces.	47
Introduction.....	48
Présentation des méthodes de caractérisation structurale des échantillons.	49
Réflectométrie de rayons X mous.....	51
Diffraction d'électrons rapides rasants (RHEED).....	56
Diffraction de rayons X à petits angles (DRXPA).	57
Les propriétés magnétiques des films en couches minces.....	57
Anisotropie de surface :	60
Couplage d'échange :	62
Magnétorésistance.....	63
Les résultats sur les systèmes étudiés.	64
Le système Au/Fe.	66
Le système Co/Au.....	68
Ses propriétés structurales.	68
Ses propriétés magnétiques.	78
Anisotropie perpendiculaire.	78
Champ coercitif.	79
Rotation Faraday.	79
Magnétorésistance.	82
Le système Cu/Co.	86
Conclusion de la deuxième partie.	91

Troisième partie : les recherches en cours.....	93
Etude du dichroïsme circulaire magnétique dans les multicouches magnétiques par spectroscopie d'émission X.....	94
Transmission d'électrons de faible énergie résolue en spin à travers des films minces magnétiques.....	97
Réalisation des échantillons.....	98
Le dispositif de transmission d'électrons.....	101
Conclusion générale.	107
Bibliographie.....	111

Présentation générale des travaux.

Les travaux présentés dans ce mémoire ont été réalisés à l'Institut d'Optique Théorique et Appliquée d'Orsay dans le groupe "couches minces" dirigé par J.P. Chauvineau dont le thème fédérateur des activités est la réalisation et la caractérisation de couches ultra minces de quelques fractions à quelques nanomètres d'épaisseur. Ce domaine de la physique est en essor constant depuis plusieurs années car les empilements de couches, dont les épaisseurs sont de l'ordre de quelques distances inter-atomiques, présentent souvent des propriétés différentes de celles des matériaux massifs : celles-ci s'expliquent par des effets dimensionnels et/ou d'effets de structure cristalline qui modifient la structure électronique, les propriétés optiques, électriques, magnétiques... Il est ainsi possible d'étudier des problèmes de physique fondamentale originaux et captivants qui peuvent déboucher à court terme sur des réalisations technologiques nouvelles que ce soit dans le domaine des couches minces magnétiques (celui dans lequel j'ai été essentiellement actif) ou dans celui des réflectomètres et/ou monochromateurs X-UV, autre branche d'activité très importante du groupe "couches minces" sur laquelle je ne m'étendrai pas car y ayant peu travaillé. Il est essentiel de noter que ces propriétés nouvelles ne peuvent s'interpréter correctement que par une connaissance fine des mécanismes de croissance ainsi que des structures cristallographiques et géométriques des échantillons réalisés. C'est ce but que nous avons constamment poursuivi en multipliant les méthodes d'analyse qu'elles soient in-situ et fonctionnant pendant les dépôts ou bien encore ex-situ après la réalisation des échantillons.

Mon travail a d'abord consisté à étudier le système de bicouches or et indium par des mesures fines, non destructives et fonctionnant pendant les dépôts de ces matériaux, telles que la mesure de la résistance électrique, du

travail de sortie puis par diffraction d'électrons rapides rasants et finalement en utilisant des expériences d'absorption d'électrons de faible énergie. Les expériences de mesure de la résistance électrique nous ont permis de mettre en évidence, suivant les épaisseurs d'indium et les températures de dépôts, des modifications irréversibles que nous avons pu localiser à l'interface or/indium. Il a été possible également d'étudier leur rôle sur les effets de taille quantiques (ETQ) qui avaient été mis en évidence, pour la première fois, sur le même système par des mesures de résistance électrique par C. Pariset et J.P. Chauvineau[1, 2]. Ce phénomène d'ETQ a été ensuite décelé, d'une part par des mesures de travail de sortie en utilisant deux méthodes, celle dite de Kelvin, utilisant un pendule vibrant, et celle de la diode, et d'autre part par la diffraction d'électrons rapides rasants (RHEED). Pour pouvoir interpréter la valeur anormalement élevée de la période de ces oscillations d'ETQ détectées par les méthodes précédentes nous avons monté une expérience d'absorption d'électrons de faible énergie au travers de ces bicouches or/indium qui ont confirmé nos premières hypothèses. Le développement de ces différents résultats constituera la première partie de mon exposé.

Puis, dans une deuxième partie, j'exposerai les expériences de caractérisation fine des interfaces de système constitués par la superposition de couches nanométriques de métaux nobles et de métaux de transition magnétiques. Je détaillerai les résultats obtenus par RHEED, réflectométrie de rayons X mous, par diffraction de rayons X et des mesures d'EXAFS ainsi que les propriétés magnétiques nouvelles découvertes sur ces échantillons par les équipes avec qui nous avons mené, et menons encore, des collaborations étroites.

Pour finir je présenterai la nouvelle expérience que nous mettons en ce moment au point en collaboration avec l'équipe dirigée par G. Lampel du Laboratoire de la Physique de la Matière Condensée de l'Ecole Polytechnique à Palaiseau ainsi que les premiers résultats obtenus. Il s'agit d'étudier l'interaction d'électrons de faible énergie et polarisés en spin avec des couches minces magnétiques pour pouvoir comprendre plus finement l'origine des phénomènes de magnéto-résistance géante découverts sur les échantillons évoqués dans la deuxième partie et de mesurer de manière directe les libres parcours moyens des électrons quand ceci ont des énergies faibles (quelques eV tout au plus).

Première Partie : Etude des
propriétés structurales et des effets
de taille quantiques du système or-
indium.

Principe des mesures de résistivité électrique.

Dans le métal massif la résistivité (ρ_V) trouve son origine dans l'interaction des électrons de conduction (EC) avec les oscillations du réseau (phonons), les imperfections (lacunes, dislocations) et les impuretés éventuellement présentes. La limitation du libre parcours moyen (lpm) des EC qui en découle entraîne une diminution du temps de relaxation. Dans certains cas, en particulier celui des métaux non magnétiques purs tels que ceux étudiés dans cette première partie du mémoire, il est possible d'écrire que la résistivité électrique (RE) mesurée est la somme des résistivités dues à chaque type de processus de diffusion des EC. On dit alors que la règle de Matthiessen[3] est vérifiée. En particulier il est possible d'écrire que :

$$\rho_V(T) = \rho_D + \rho_{Ph}(T) \quad (1)$$

où ρ_D est la résistivité résiduelle vers laquelle tend la résistivité à très basse température, $\rho_{Ph}(T)$ est la résistivité du métal pur à la température T.

Quand l'une des dimensions de l'échantillon devient du même ordre de grandeur ou inférieure au lpm, comme dans le cas des couches minces, l'interaction électrons surface va jouer un rôle considérable dans la valeur de la conductivité de l'échantillon.

Des modèles simples[4] utilisant une approche semi-classique permettent d'expliquer et d'interpréter de manière très satisfaisante l'ensemble des résultats expérimentaux que nous avons obtenus sur les couches d'or et d'indium. La résistivité électrique y est déterminée par la résolution de l'équation de transport de Boltzmann dans laquelle les effets de surface

sont incorporés par l'intermédiaire des conditions aux limites sur la fonction de distribution perturbée. La théorie la plus ancienne et la plus simple et qui fournit cependant d'excellents résultats dans un grand nombre de cas est celle de Fuchs-Sondheimer (FS). Elle[5, 6] est basée sur les hypothèses simplificatrices suivantes :

- i) les films sont continus avec des surfaces lisses et parallèles
- ii) lors des collisions avec les surfaces libres, les électrons ont une probabilité p d'être réfléchis spéculairement (i.e. la composante de la vitesse d'un EC perpendiculaire à la surface change de signe après la réflexion tandis que les deux autres composantes sont inchangées) et une probabilité $(1-p)$ d'être diffusés de manière isotrope dans tout le demi-espace.

Le calcul conduit à l'expression suivante :

$$\frac{\rho_V}{\rho_F} = 1 - \frac{3}{2k} \int_0^1 f(p, k, u) \, du \quad (2)$$

avec

$$f(p, k, u) = (u - u^3) \frac{(1-p)(1 - e^{-k/u})}{1 - p e^{-k/u}}$$

où ρ_F est la résistivité du film mince, ρ_V sa valeur pour le matériau massif, $k = \frac{e_F}{\lambda}$, e_F étant l'épaisseur du film et λ le lpm pour le métal massif (quelques 10 nm à 80 Kelvin).

La fonction est intégrable numériquement mais les formules asymptotiques suivantes sont les plus couramment utilisées:

$k \gg 1$ (couches épaisses) :

$$\frac{\rho_V}{\rho_F} \cong 1 + \frac{3}{8k} (1-p) ; \quad (3)$$

$k \ll 1$ (couches ultra minces) :

$$\frac{\rho_V}{\rho_F} \cong 1 + \frac{4}{3k} (1-p) \frac{1}{\text{Ln}(1-k) + 0,423} \quad (4)$$

Il faut cependant noter que les simulations numériques montrent que, dans le cas où les surfaces sont suffisamment réfléchissantes pour les EC ($0,5 < p < 1$), et ceci même dans le cas où $k < 1$, alors la forme asymptotique (3) déduite de la formule générale convient assez bien compte tenu des incertitudes expérimentales.

Des modèles semi-classiques plus perfectionnés ont été développés à partir de celui de Fuchs-Sondheimer en y apportant divers raffinements. Nous citerons pour mémoire (pour de plus amples détails voir[4]) :

a) celui de Lucas[7] où les coefficients de réflexion spéculaire (p) sont différents sur chacune des deux surfaces du film mince ;

b) celui de Cottey[4] où le film mince est identifié à un matériau massif contenant un réseau de plans parallèles distants de l'épaisseur du film ;

c) celui de Mayadas et Shatzkes[8] où intervient, en plus des mécanismes déjà évoqués, la diffusion des EC par les joints de grain présents dans les films polycristallins tels que ceux que nous avons étudiés.

Un certain nombre d'auteurs se sont penchés sur le calcul de la conductivité électrique en utilisant un traitement purement quantique. Il est alors possible[9] d'exprimer la résistivité en fonction de la rugosité de surface

sans avoir recours à l'introduction purement phénoménologique du coefficient de specularité (p) comme dans le cas des théories semi-classiques. Pour que ces théories quantiques permettent de fournir un apport réellement nouveau par rapport à leurs analogues semi-classiques, il serait nécessaire de connaître les structures cristallographiques et géométriques des interfaces avec une grande précision pour pouvoir obtenir une caractérisation quantitative de leur rugosité. Ce problème est difficile et est encore suffisamment mal éclairci pour que les théories quantiques n'apportent pas d'avancées assez fortes par rapport à leurs analogues semi-classiques.

Parmi ces dernières, les théories dérivées de la théorie de FS et qui font intervenir les joints de grains, la rugosité et la non-sphéricité des surfaces de Fermi, sont formellement séduisantes. Cependant les résultats qu'elles prédisent ne diffèrent notablement du modèle de base proposé par FS que pour les très faibles épaisseurs. De plus elles mettent en jeu un grand nombre de paramètres qu'il est difficile d'évaluer individuellement et qui ne sont pas toujours indépendants : en particulier il est connu que la densité de joints de grains varie avec l'épaisseur de la couche mince.

Aussi nous nous sommes limités aux expressions de FS qui représentent très bien, comme nos travaux l'ont montré, les résultats expérimentaux obtenus avec l'or et l'indium sur des couches de faible rugosité ($< 0,5\text{nm}$) et constituée de cristallites de dimension latérales moyennes supérieures aux épaisseurs de films. Le rôle des défauts de structure du volume, tels que les lacunes, interstitiels et surtout les joints de grain, sont introduits en modifiant de manière ad-hoc la valeur de ρ_D dans l'expression (1).

Les résultats que nous avons obtenus [4, 10, 11] sur les bicouches or/indium par mesure de la résistance électrique ont été interprétés dans le

cadre du modèle (semi-classique) de Dimmich-Warkusz[12] (DW) lui-même directement dérivé de celui de Lucas. Les hypothèses principales sont les suivantes :

- i) les surfaces du film mince sont planes et parallèles, celles de Fermi sont sphériques;
- ii) les EC dans les deux couches ont une énergie de Fermi égale afin qu'il n'y ait pas de différence de potentiel de contact à l'interface;
- iii) des coefficients de réflexion spéculaire des EC, p_1 et p_2 , caractérisent les deux surfaces limitantes de la bicouche; les électrons ont des probabilités R d'être réfléchis spéculairement, T de traverser l'interface sans subir de diffusion (voir [Fig.1](#)). La quantité $1 - R - T$ représente alors la proportion d'EC ayant subi une diffusion à l'interface. La méthode consiste alors à résoudre l'équation de Boltzmann dans les deux milieux.

Il faut noter que les EC sont sensibles à des défauts de volume ou d'interface dont les dimensions caractéristiques sont de l'ordre de la longueur d'onde de Fermi, c'est à dire, pour les métaux étudiés, voisines de quelques Angströms. Il s'agit donc d'une sonde sensible à des modifications des potentiels de surface très localisées.

Le système or/indium :

Sur des lames de "float-glass" une couche d'or (d'épaisseur moyenne 25 nm) est déposée à température ambiante puis recuite à 150°C pendant 30 minutes dans une enceinte ultravide où règne un vide très poussé (la pression est inférieure, pendant les dépôts, à 10^{-10} Torr). Le recuit du film

d'or s'accompagne d'un changement radical de structure ainsi que nous avons pu le montrer par des mesures de réflectométrie de rayons X mous et de RHEED (sur lesquelles nous reviendrons dans la deuxième partie). D'une structure polycristalline totalement désorientée avec une surface libre rugueuse le film d'or passe à un état texturé à interfaces lisses où chaque cristallite, de dimensions latérales de l'ordre de quelques 100 nm, a son axe [111] du système c.f.c de l'or massif, perpendiculaire au substrat (les deux autres axes cristallographiques perpendiculaires étant aléatoirement orientés d'un cristallite à un autre). Des études par microscopie électronique[13], par diffraction de rayons X[14], ainsi que par les oscillations de rugosité détectées par des mesures de RE[4] ont montré qu' il n'y avait pas de formation d'alliage Au-In jusqu'à des températures de 250K et que l'indium croissait couche atomique par couche atomique pour des températures comprises entre 20K et ≈ 220 K. De plus cette épitaxie se fait avec les plans (111) du réseau quadratique de l'indium massif parallèles au substrat. Nous avons pu vérifier ce mode de croissance de l'indium sur l'or en suivant la variation de l'intensité des raies Auger caractéristiques de l'or et de l'indium.

Résultats.

Homoépitaxie de l'indium.

Avant d'étudier les modifications à l'interface des bicouches Au/In par des mesures de RE nous avons déterminé les coefficients de spécularité p_1 (resp. p_2) pour des couches minces composées uniquement d'or (resp. d'indium). Le métal était déposé à la température notée T_d sur le "float-glass" afin d'obtenir une couche d'épaisseur d'environ 20 nm, puis recuit à T_r afin de minimiser les défauts de volume et de surface. Puis, à la

température T_d' , la variation de la RE est étudiée en fonction de l'inverse de l'épaisseur totale de la couche. Du comportement linéaire obtenu on a pu déduire les valeurs de p_1 et p_2 et nous avons pu vérifier qu'elles étaient

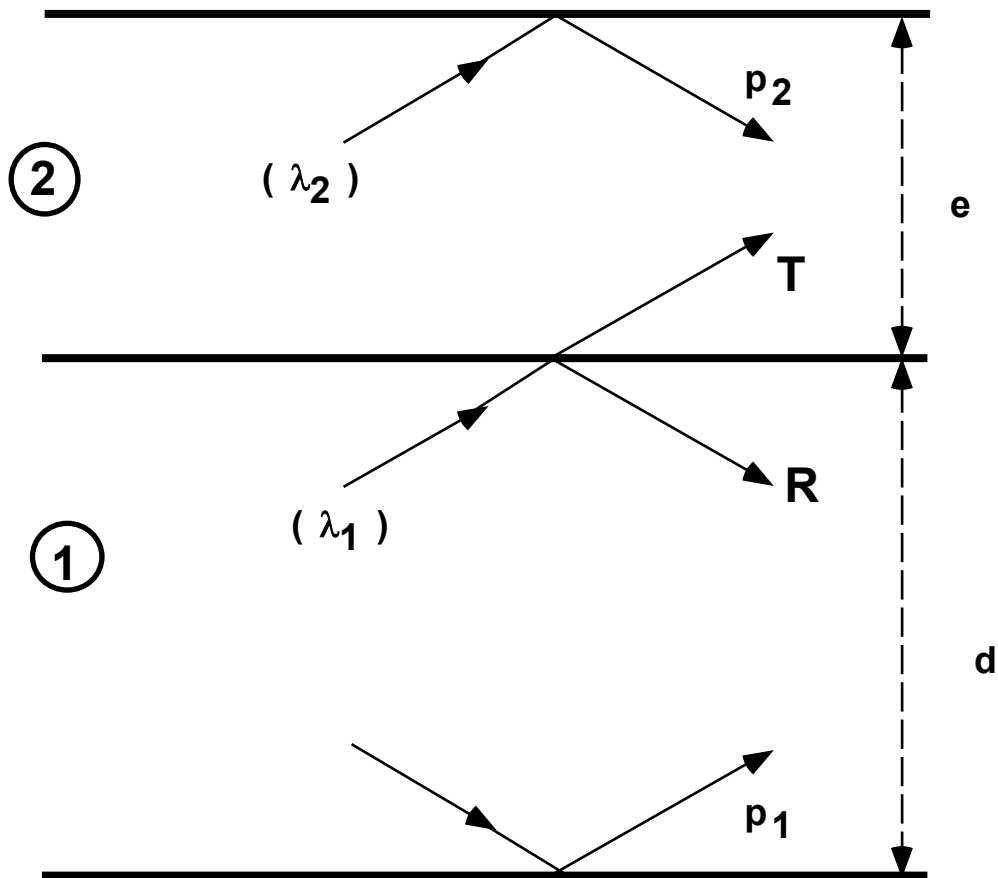


Figure 1 : Définition des paramètres utilisés dans le modèle de Dimmich-Warkusz de résistivité électrique pour une double couche .

indépendantes de T_d' . Les valeurs des différentes températures sont répertoriées dans le tableau suivant :

	T_d	T_r
Or	300 K	450 K
Indium	77 K	200K

Un phénomène remarquable a été obtenu (analogue à celui observé sur le bismuth [2]) quand le deuxième dépôt d'indium, sur une couche de base d'indium recuit à 200K, a lieu à $T_d' = 20$ K ([Fig.2](#)). Des oscillations de période égale (aux incertitude expérimentales près) à la distance entre plans (111) de l'indium - $d_{(111)}^{\text{In}}$ - ont été observées. Nous avons pu les interpréter par l'autoépitaxie de l'indium suivant un mécanisme de Frank-van der Merwe (FDM) : Le dépôt, sur une surface libre (celle de l'indium recuit) initialement lisse à quelques marches atomiques près, d'atomes en nombre moindre que celui nécessaire à la constitution d'un plan monoatomique crée de nombreux centres diffuseurs (lorsque la mobilité superficielle des adatoms est insuffisante pour permettre un réarrangement le long des marches) responsables de l'augmentation de résistance observée. On a pu ainsi chiffrer la variation du coefficient de réflexion spéculaire de la surface libre d'indium pendant le dépôt d'une demi-monocouche d'indium :

$$\delta p_2 = -0,26 \pm 0,02.$$

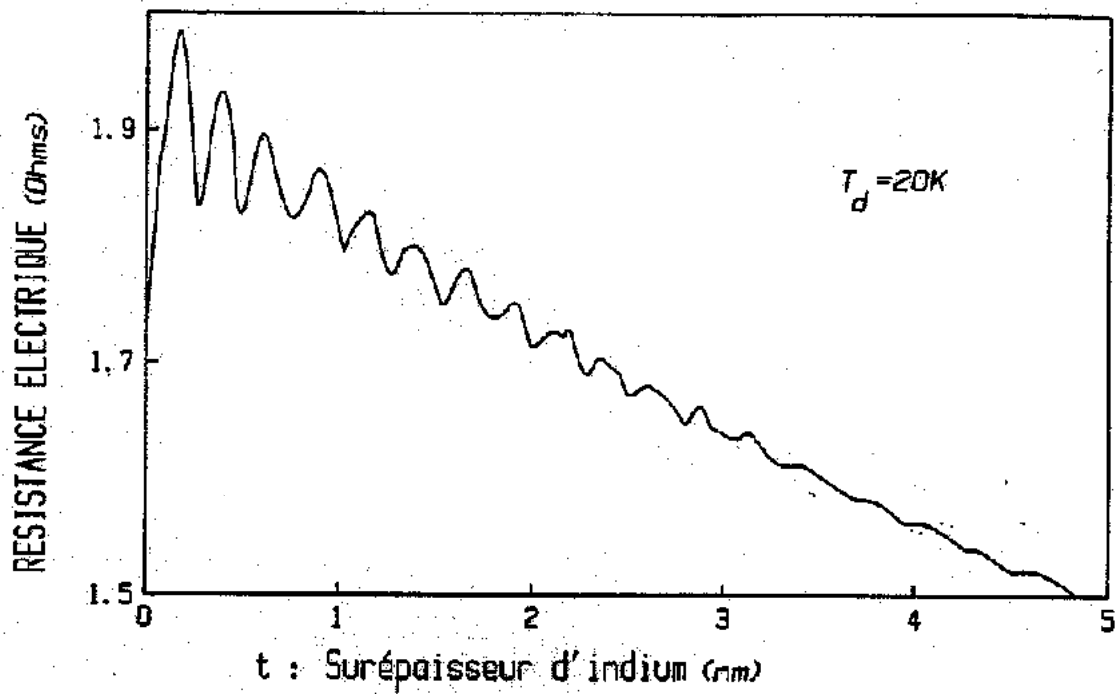


Figure 2 : Variation de la résistance électrique pendant l'homoépitaxie d'indium.

Les différents minima de la RE sont dus à la constitution approximative d'une couche bidimensionnelle supplémentaire rendant la surface libre moins rugueuse à l'échelle atomique.

Croissance de l'indium sur l'or

Nous avons ensuite poursuivi les expériences, initiées par C. Pariset et J.P. Chauvineau[1], d'étude de la variation de la résistance électrique pendant le dépôt d'une couche d'indium sur le substrat d'or recuit. Nous nous sommes d'abord intéressé à un domaine de températures comprises entre 20K et 100K. Dans ces conditions, la forme générale de ces courbes est conservée quelle que soit la température de dépôt : la RE croît fortement pendant la condensation des trois premières couches atomiques d'indium, atteint ensuite un pallier puis décroît lentement conformément à ce que l'on peut attendre d'un film métallique dont l'épaisseur augmente. A basse température - $T_d = 20K$ - apparaissent deux systèmes d'oscillations (Fig.3) : l'un, de courte période (voisine de $d_{(111)}^{In}$), s'interprète, d'une manière équivalente à ce qui a été vu précédemment, par l'hétéroépitaxie de l'indium sur l'or. Les minima de résistance électrique se produisent pour des valeurs d'épaisseur pour lesquelles ont lieu les ruptures de pente de l'intensité des raies Auger (Fig.4), caractéristiques de l'or et de l'indium, confirmant ainsi la croissance de type Frank-van der Merwe de l'indium sur l'or (111)[4]. Il est à noter que la grande précision de ces mesures et la calibration très fine des épaisseurs a permis de montrer (Fig.5) que la première couche atomique d'indium adoptait, sous la contrainte du substrat d'or, une structure plane plus compacte que dans le cas du métal massif (pseudomorphisme). Ce premier système d'oscillations disparaît quand la

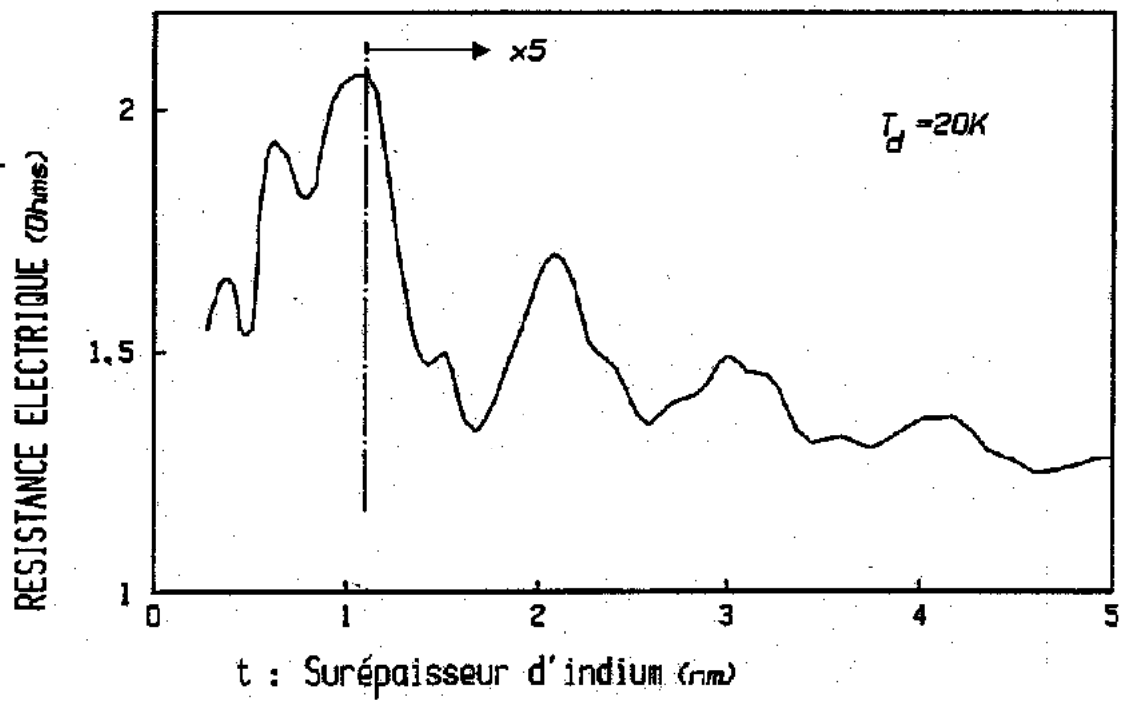


Figure 3 : Variation de la résistance électrique pendant le dépôt d'indium à une température de 20 Kelvin.

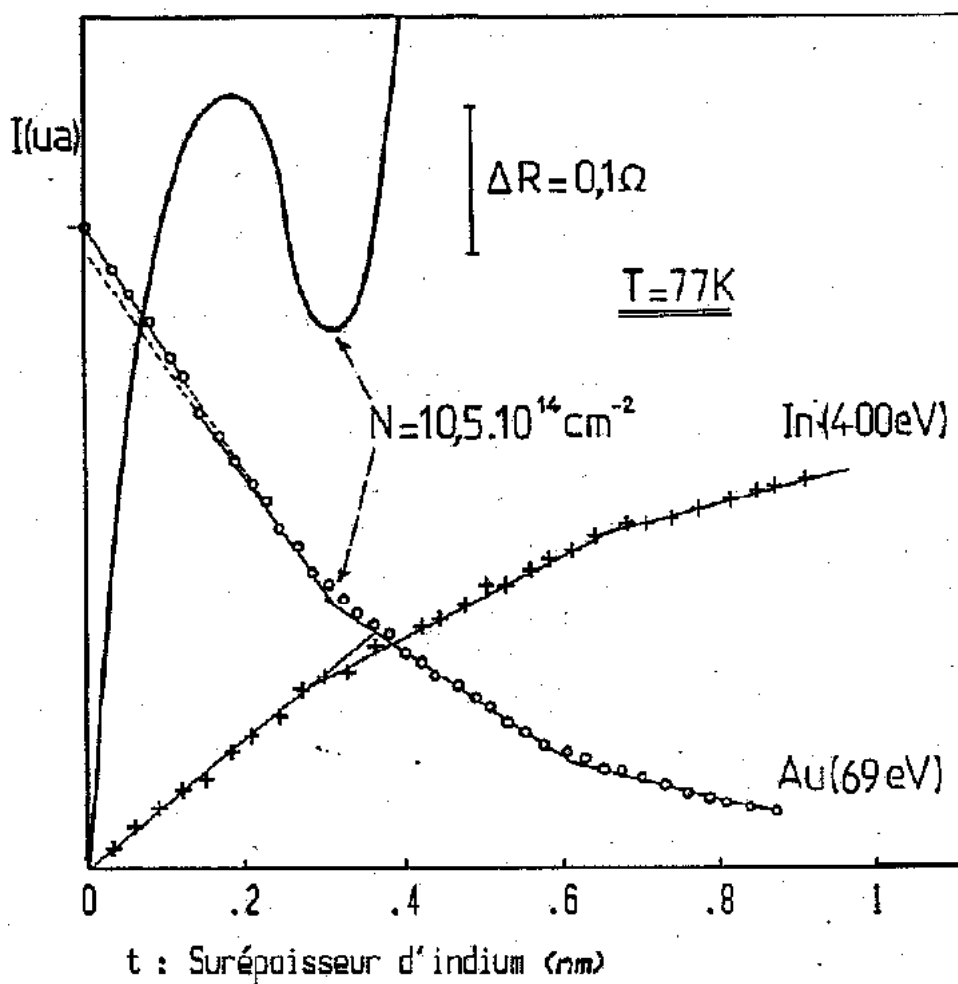


Figure 4 : Comparaison des résultats de mesures de spectroscopie Auger (o et +) et de résistance électrique (traits pleins).

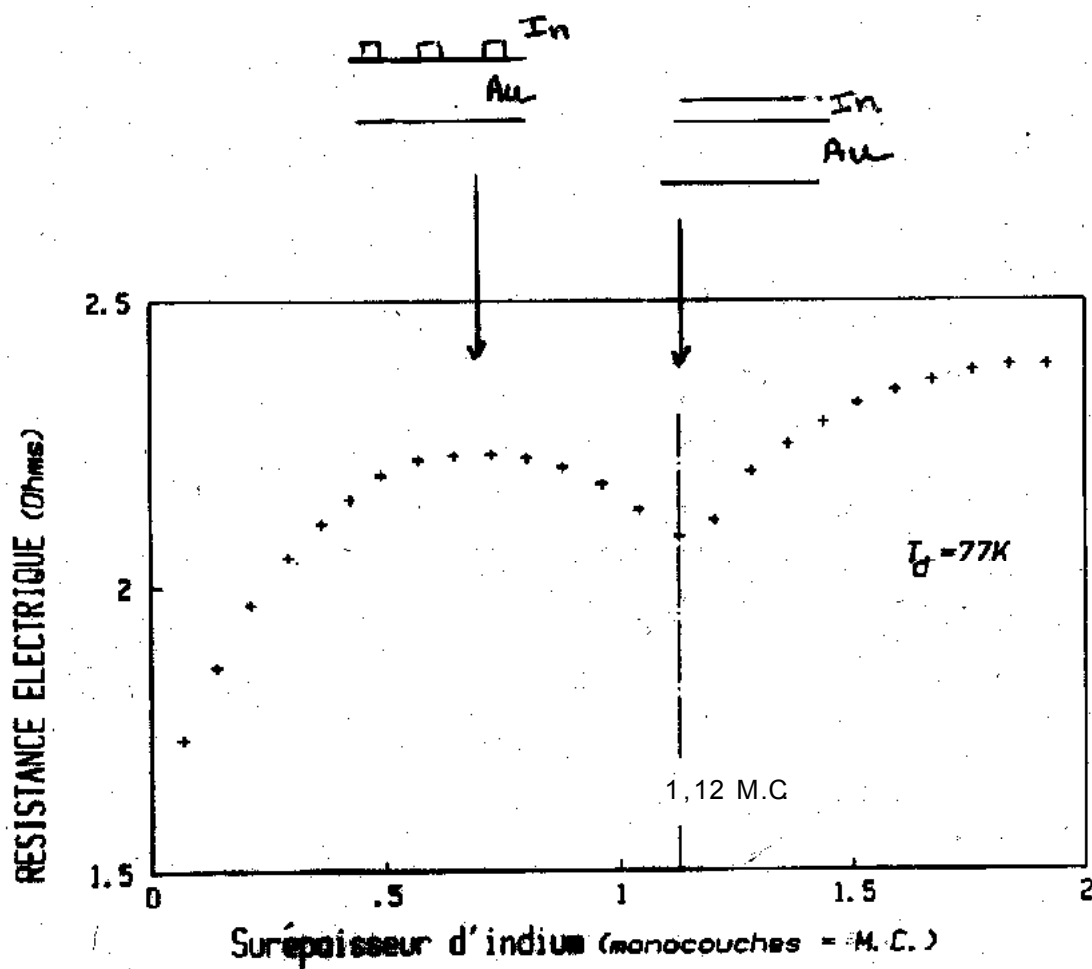


Figure 5 : Mise en évidence du pseudomorphisme de l'indium déposé sur l'or.

température dépasse 50K en raison d'une grande mobilité des adatoms vers les marches atomiques présentes sur la surface libre.

Le deuxième système d'oscillations a été décelé jusqu'à 100K ([Fig.6](#)). Il a été interprété comme résultant d'un effet de taille quantique (ETQ) : la couche d'indium constitue, pour les EC, une boîte de potentiel sur les murs de laquelle les fonctions d'onde, qui leur sont associées, se raccordent ou ne se raccordent pas suivant la largeur de la boîte. Il y a alors alternativement apparition d'un maximum ou d'un minimum de RE. Dans le but de mieux caractériser cet ETQ nous avons été amenés à découvrir et à étudier en détail des modifications irréversibles localisées à l'interface Au/In ainsi que leur influence sur l'ETQ.

Pour caractériser ladite interface nous nous sommes inspirés de la théorie de DW que nous avons adaptée[10] au cas où l'épaisseur de la couche n°2 (celle d'indium) est très faible devant le lpm des électrons de conduction. Nous avons pu ainsi montrer que la double couche était équivalente à une couche simple dont chacune des deux interfaces a des coefficients de spécularité différents (cf. théorie de Lucas) p_1 et Q avec

$$Q = R + \frac{p_2 \cdot T^2}{1 - p_2 \cdot R}$$

Il est à noter que cette valeur de Q peut être simplement retrouvée en effectuant une somme des contributions de toutes les réflexions multiples spéculaires ([Fig.7](#)). Pour déterminer R et T et pour se dispenser de la mauvaise détermination de $\rho_V(T = 20K)$ nous avons procédé en trois étapes :

a) la résistance R_1 de la seule couche d'or, préalablement recuite, est mesurée à 20 Kelvin. Le substrat est porté à 77 Kelvin, puis nous déposons six couches atomiques d'indium de manière à obtenir une interface stable ;

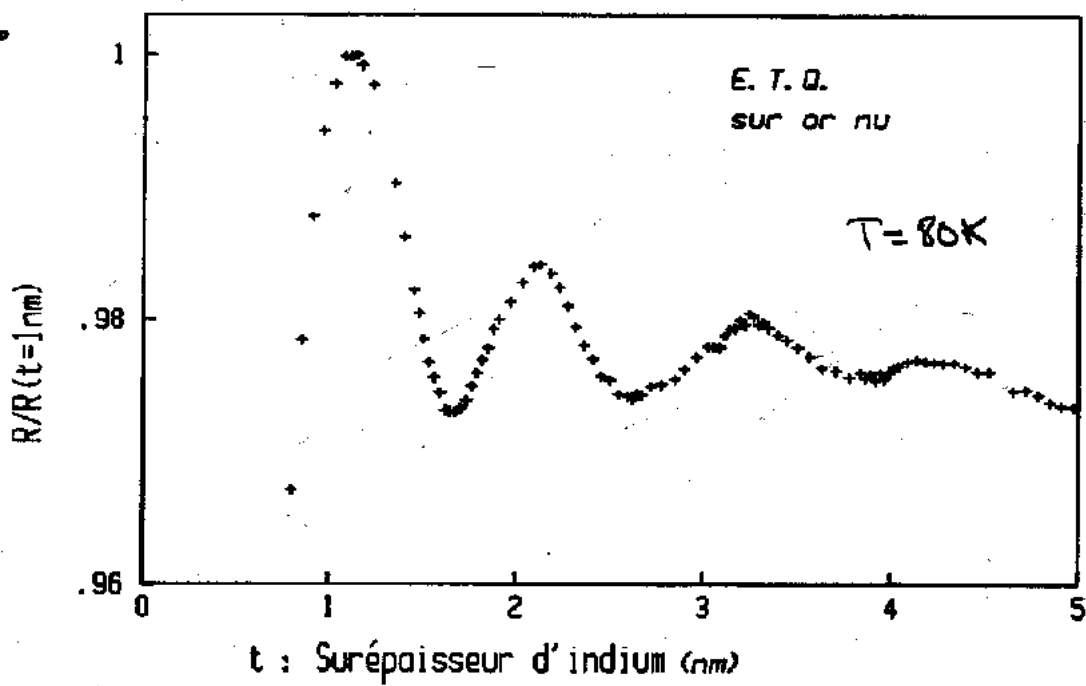
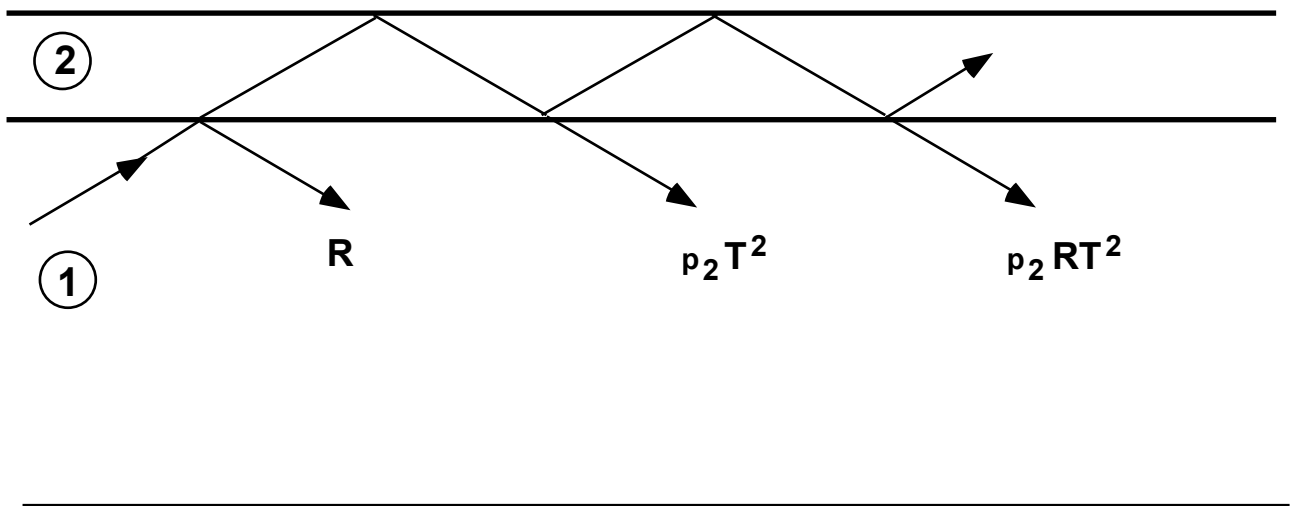


Figure 6 : Croissance de l'indium sur de l'or (à 80Kelvin) suivie par des mesures de résistance électrique.

**Figure 7**

b) l'ensemble est alors porté à la température de recuit, T_r , permettant d'éliminer les éventuels défauts occasionnés par la croissance de l'indium ; la valeur de p_2 est alors prise égale à celle mesurée sur une couche d'indium qui a crû sur une lame de "float-glass" ; puis à $T = 20$ K on mesure la résistance R_2 .

c) à 20 Kelvin on augmente la rugosité de la surface libre de l'indium en y déposant un demi plan atomique du même métal ; on mesure alors la RE , $R_{3.}$, associée à la nouvelle valeur du coefficient de spécularité $p'_2 = p_2 - \delta p_2$;

En résolvant un système de trois équations à trois inconnues nous en avons déduit les valeurs de R , T et $\rho_V(T = 20$ K) pour différentes températures de recuit. Nous avons pu ainsi montrer que le recuit des bicouches Au/In entraînait une augmentation irréversible de la diffusion - caractérisée par le paramètre $[1 - (R + T)]$ - des EC à l'interface Au/In.

Cette première détermination des coefficients R et T a été ensuite confirmée par une deuxième méthode ([Fig.8](#)). Il s'agissait de simuler directement les courbes de variation de RE pendant le dépôt, à différentes températures, d'une couche épaisse d'indium sur de l'or recuit en utilisant la forme non simplifiée des calculs de DW . Un très bon accord entre les deux méthodes a été obtenu.

Cette augmentation irréversible de la diffusion des EC au voisinage de l'interface a été ensuite caractérisée très finement et son effet sur les oscillations d'ETQ a été systématiquement étudié. Il faut insister sur le fait que cette méthode simple de mesure de la résistance électrique a permis d'obtenir de nombreux renseignements sur l'interface Au-In particulièrement difficile à étudier par d'autres moyens car il fallait

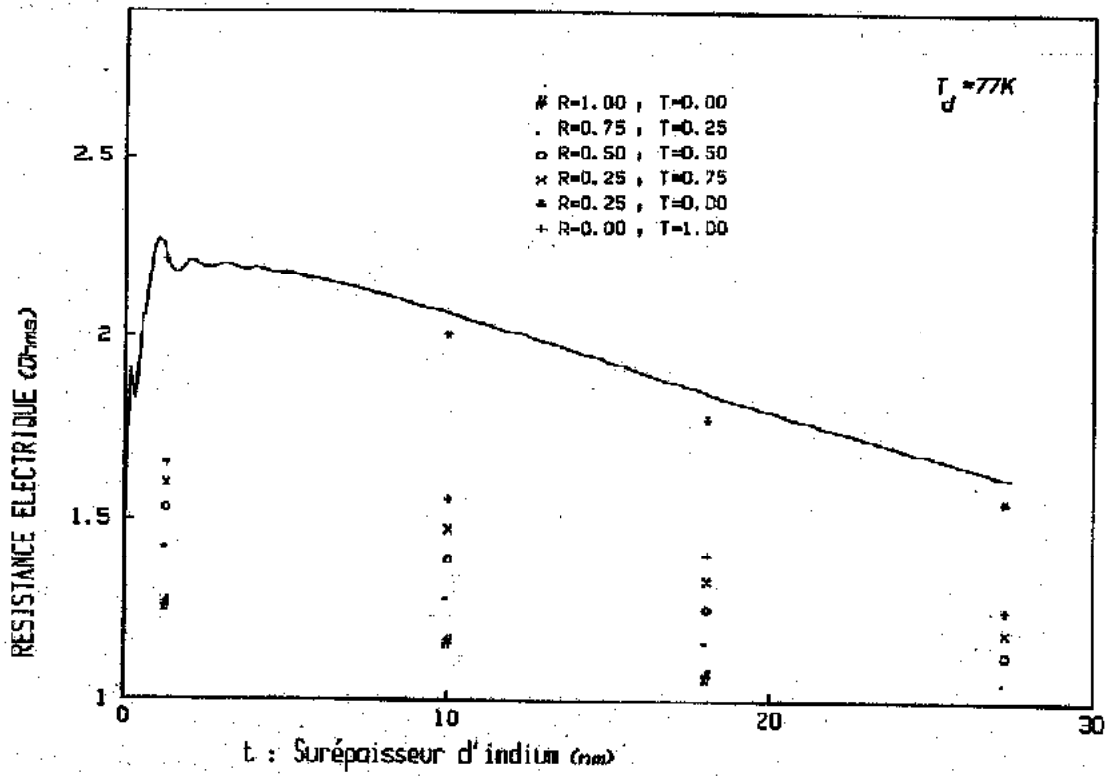


Figure 8 : Simulation des courbes expérimentales par la théorie de Dimmich-Warkusz.

travailler tout à la fois dans des conditions de température basse - afin d'éviter la formation d'alliage Au-In au-delà de 220K - et d'ultravide très poussé pour préserver l'indium de toute dégradation chimique.

En jouant sur les épaisseurs et les températures de recuits de deux dépôts successifs d'indium (réalisés à 77 K) nous avons pu montrer que ([Fig.9](#) et [Fig.10](#)) :

a) pour des valeurs de la première surépaisseur d'indium (e_{In}) - directement évaporées sur l'or - inférieures à 1,2 MC (monocouches en équivalent métal massif) aucune évolution de l'interface n'était détectable pendant des recuits jusqu'à 200K. De plus, lors du deuxième dépôt d'indium sur la bicouche or/indium préalablement recuite, les oscillations d'ETQ étaient toujours présentes ;

b) quand e_{In} est comprise entre 1,25MC et 3MC il se produit un processus irréversible (que nous appellerons étape 1) qui a été localisé à l'interface et qui survient à une température variable suivant la valeur de e_{In} . Après l'apparition de cette étape 1, les oscillations d'ETQ lors du deuxième dépôt d'indium à 77K sont très fortement atténuées ;

c) quand $e_{In} > 3MC$ nous avons détecté, en plus de la précédente, une deuxième évolution irréversible (étape 2) localisée elle aussi à l'interface, qui survenait à une température de 180K et qui signe la disparition de l'ETQ lors du deuxième dépôt d'indium.

Nous avons alors pu proposer les mécanismes microscopiques suivants pour interpréter l'ensemble de ces résultats :

L'étape 1 résulte de la rupture du pseudomorphisme de la première couche atomique d'indium. Cet état métastable relaxe vers un état plus stable

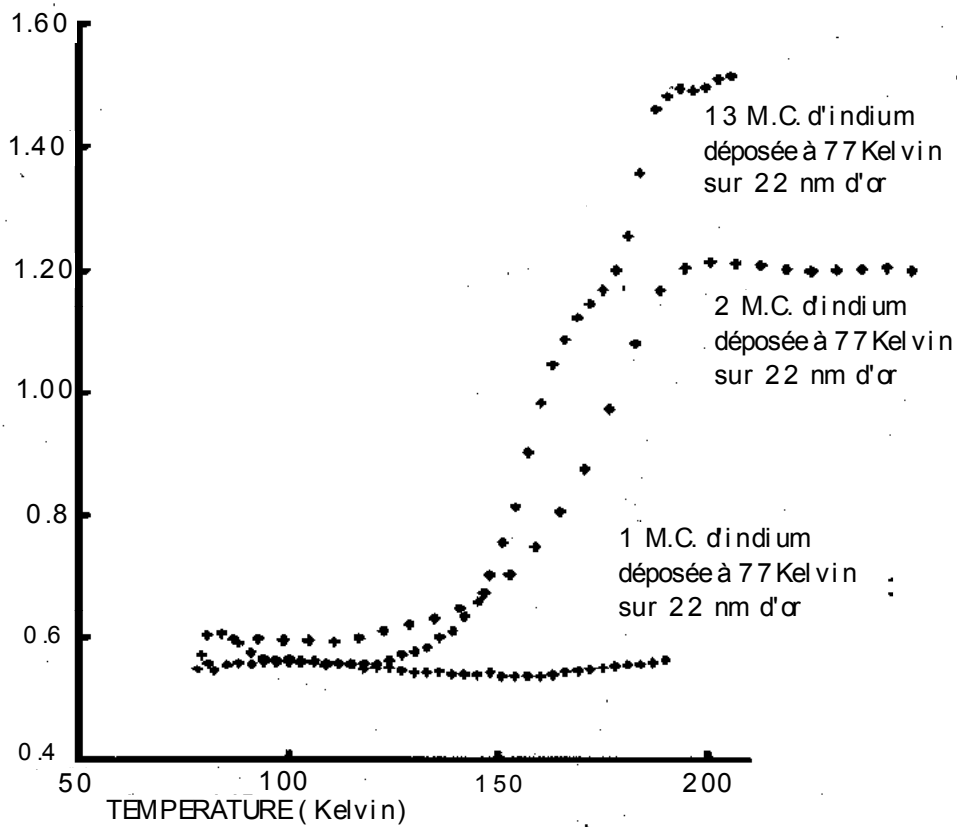


Figure 9 : Différence de comportement de la bicouche d'indium et d'or suivant l'épaisseur de la couche d'indium.

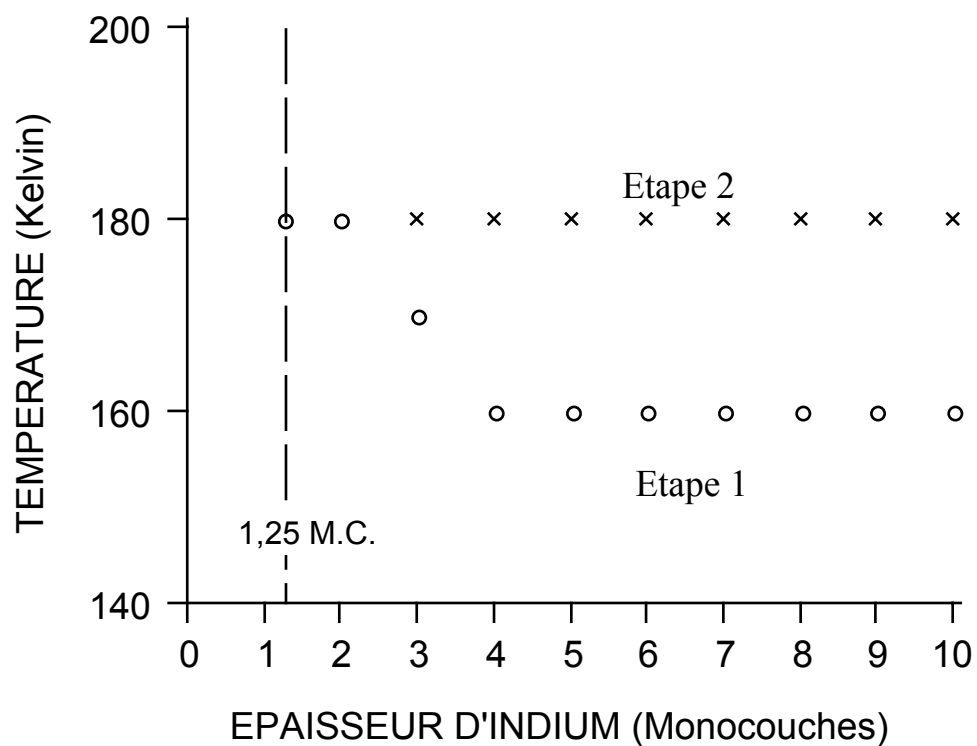


Figure 10 : Variation de la température à laquelle surviennent les deux processus irréversibles, localisés à l'interface, en fonction de l'épaisseur de la couche d'indium.

quand la température croît et dépasse une température de transition qui dépend de la proportion relative d'or et d'indium : cette transformation se fait d'autant plus facilement que la couche d'indium est plus épaisse.

L'étape 2 a été interprétée comme un réarrangement localisé au voisinage immédiat de l'interface avec apparition probable de dislocations sur des épaisseurs d'indium de quelques couches atomiques.

Le fait que les oscillations de grande période détectées lors du dépôt de l'indium sur l'or disparaissent dès que l'interface devient diffusante pour les EC confortait l'hypothèse de départ qui attribuait ce phénomène à un ETQ, effet particulièrement sensible à des modifications des potentiels de surface et d'interface.

Les mesures de travail de sortie.

Principe des mesures.

Nous avons voulu ensuite savoir si un tel phénomène d'ETQ ne pouvait pas aussi être mis en évidence par d'autres méthodes non destructives et sensibles aux potentiels de surface pour des énergies voisines de celle du niveau de Fermi. Des mesures de travail de sortie (TS) se sont alors imposées à nous. Nous avons ainsi cherché à mesurer, suivant la définition de Bardeen et Wigner[15], l'énergie qu'il faut fournir pour extraire un électron du matériau supposé initialement neutre pour l'amener à distance grande devant la distance inter-atomique moyenne mais petites par rapport aux dimensions de l'échantillon étudié. Cette démarche était d'autant plus justifiée que des calculs antérieurs de Schulte[10, 16, 17] prédisaient une variation périodique du TS en fonction de l'épaisseur du film mince. Ces calculs étaient basés sur l'hypothèse d'un film mince d'épaisseur D isolé

dans l'espace avec des surfaces planes et parallèles, en utilisant la théorie de la "fonctionnelle de densité" de Hohenberg et Kohn[18, 19] associée à l'hypothèse du fond uniforme dans laquelle la densité de charges pouvait s'écrire :

$$\begin{aligned} n_+(x) &= n_0 \quad \text{si } |x| < D/2 \\ n_+(x) &= 0 \quad \text{ailleurs.} \end{aligned}$$

Cette méthode autocohérente montrait que le travail de sortie ([Fig.11](#)) était modulé par des oscillations de période voisine de $\lambda_F/2$ où λ_F est la longueur d'onde de Fermi des électrons dans le matériau massif. Plus récemment en utilisant des calculs ab initio, Batra et Cirraci[20] ont pu calculé les propriétés électroniques (en particulier le travail de sortie) pour des films minces d'aluminium de quelques plans atomiques d'épaisseur ($< 7MC$). Les résultats sont très voisins de ceux obtenus par Schulte. Il faut aussi noter que la résolution non auto-cohérente de l'équation de Schrödinger à une particule dans un puits de potentiel unidimensionnel de largeur D donne des résultats - ainsi que l'a montré Schulte[17] - très voisin de ceux des théories résumées ci-dessus, à condition d'utiliser les conditions de continuité de Dirichlet (les fonctions d'onde s'annulent aux

surfaces) et de prendre :

$$D = D \pm \frac{3\pi}{4(3\pi^2 n_0)^{1/3}}$$

Nous avons pu montrer que ces théories permettaient d'expliquer qualitativement les résultats obtenus par nos mesures de travail de sortie sur le film d'indium même si celui-ci, contrairement aux hypothèses des calculs exposés préalablement, avait des surfaces dissymétriques. La méthode expérimentale choisie a été celle dite de Kelvin[21, 22] : Deux métaux en regard l'un de l'autre sont reliés par un fil conducteur. Il y a alors

égalisation des niveaux de Fermi et, par conséquent, apparition d'une différence de potentiel de contact U_{dpc} égale à la différence des deux

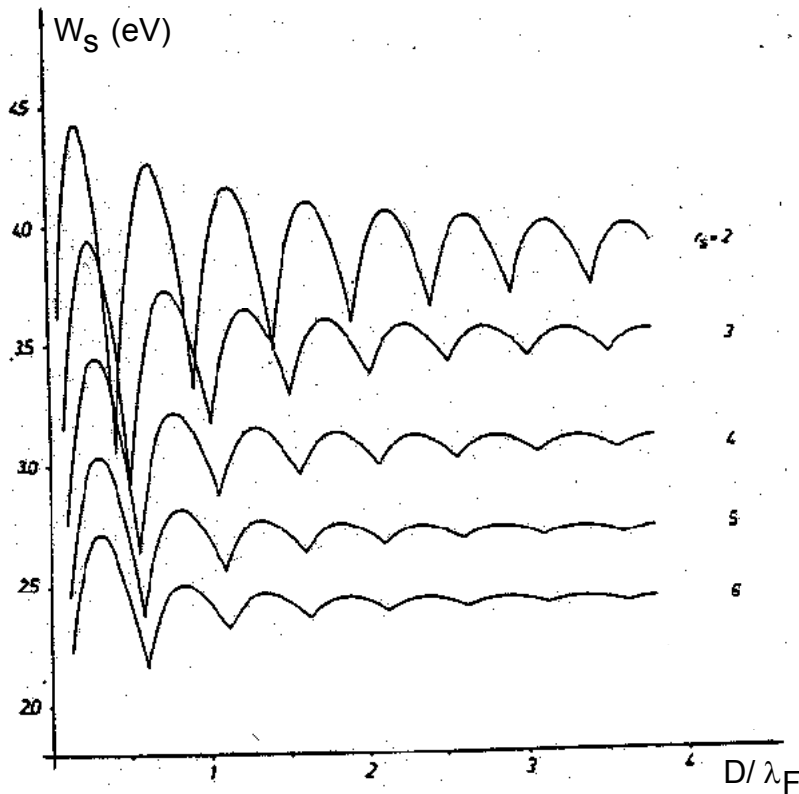


Figure 11 : Variation du travail de sortie d'une couche isolée d'épaisseur D en fonction de D/λ_F prédite par le modèle de Schulte [16].

travaux de sortie. Ce système constitue donc un condensateur de capacité C de charge q et il est possible d'écrire $q = C \cdot U_{\text{dpc}}$. La capacité est alors soumise à une variation périodique dans le temps et il apparaît ainsi un courant électrique $i = U_{\text{dpc}} \cdot \frac{dC}{dt}$ qu'il est possible d'annuler, afin d'accroître la précision de la mesure, en appliquant une différence de potentiel extérieure U telle $U = -U_{\text{dpc}}$. Dans la méthode de Kelvin modifiée[21], que nous avons utilisée, la variation de capacité était obtenue par le déplacement périodique de l'une des plaques (celle ne recevant pas les dépôts) dans un plan parallèle à celui qui contenait l'autre plaque sur laquelle l'or puis l'indium était évaporés pendant la mesure. Le montage utilisé a été le résultat d'une collaboration entre l'Institut d'Optique et l'équipe du Professeur Hölzl de l'université de Kassel (Allemagne). Nous avons pu ainsi étudier le dépôt d'indium sur le même substrat d'or que celui utilisé pour les expériences de RE, pour des températures comprises entre 77K et 200K.

Résultats.

Les résultats les plus remarquables ont été obtenus à basse température[4, 23] : Le TS décroît très rapidement pendant le dépôt des trois premières couches atomiques d'indium pour atteindre la valeur de l'indium massif. Puis des oscillations de grande période apparaissent : elles ont la même période que celles de RE et sont en opposition de phase entre-elles ([Fig.12](#)). Il s'agissait donc d'une confirmation supplémentaire de la validité de notre explication par un effet quantique de la présence d'oscillations de grande période sur les mesures de RE et de la première mise en évidence expérimentale directe d'un effet de ce type sur le travail de sortie.

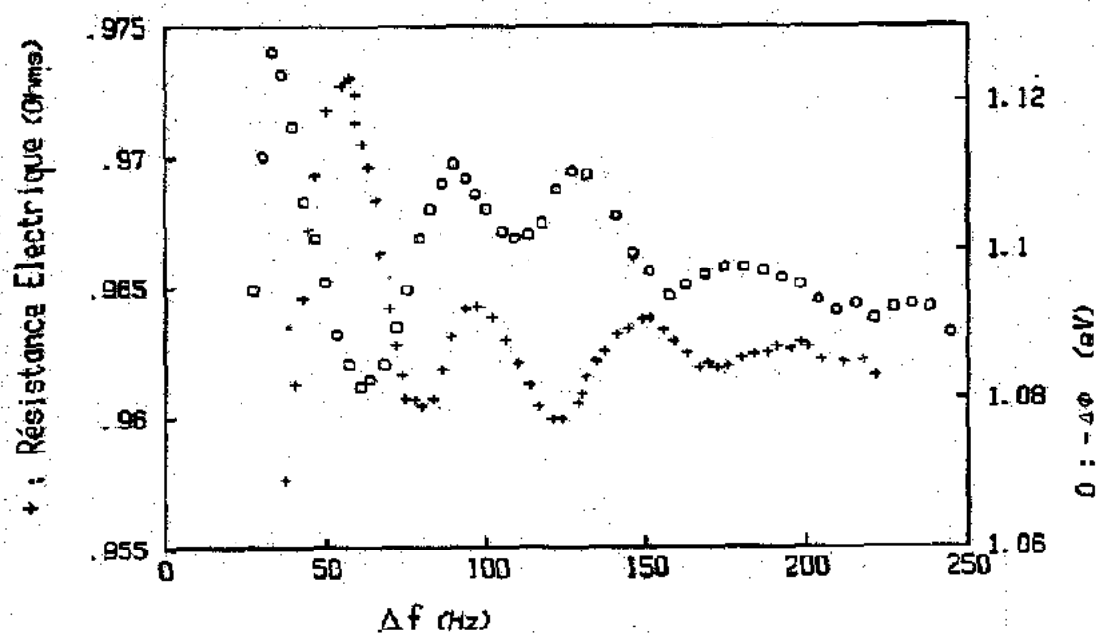


Figure 12 : Variation du travail de sortie (o) et de la résistance électrique (+) pendant le dépôt d'indium sur de l'or.

Cependant il restait à résoudre un problème important : la période, prédite par les modèles mentionnés plus haut dans ce texte, pour ces oscillations d'ETQ était voisine de $\lambda_F/2$, ce qui donnait, dans le cadre du modèle d'électrons libres raisonnablement applicable au cas de l'indium, une valeur voisine de 0,21 nm notablement différente de la période expérimentale égale à 1,05 nm. Pour expliquer ce désaccord nous avons émis l'idée suivante : dans les théories exposées précédemment, sauf dans celle de Batra et Ciraci[20] mais où les calculs n'ont pas été poursuivis pour des épaisseurs suffisantes, l'épaisseur de la couche mince varie de manière continue alors que la croissance plan atomique par plan atomique de l'indium sur l'or impose une variation locale de l'épaisseur par valeurs discrètes et égales à un multiple de la distance $d_{(111)}^{\text{In}}$. Il en résulte donc un effet de vernier - ou de stroboscopie - entre deux phénomènes périodiques de période voisine pouvant donner naissance à une période apparente plus grande. C'est ce que nous avons voulu vérifier en montant une expérience d'absorption d'électrons lents.

Absorption d'électrons lents.

Pour pouvoir vérifier l'hypothèse précédente, l'idée que nous avons eue était de modifier la période de l'un des deux phénomènes périodiques afin de pouvoir détecter une éventuelle modification de la période résultante. Aussi avons nous monté une expérience dans laquelle les électrons sonde de la bicouche In/Au étaient envoyés de l'extérieur avec une énergie variable mais faible pour ne pas trop s'écarter du niveau de Fermi de l'empilement afin de rester dans des conditions proches de celles des EC.

Nous avons utilisé une source standard d'électrons utilisant l'effet thermoélectrique. Les électrons étaient accélérés dans le canon par une tension de 400 V, se propageaient dans une région à champ nul de quelques centimètres de longueur pour être ensuite retardés par un potentiel variable imposé à l'échantillon ([Fig.13](#)). Le faisceau d'électrons arrivait normalement à la surface du substrat. Afin d'accroître la sensibilité de la mesure une modulation de tension était imposée à la cathode afin d'obtenir les dérivées première et seconde du courant absorbé i_{abs} par l'échantillon ([Fig.14](#)). Le système que nous avons réalisé était tel que la mesure de i_{abs} se faisait pendant les dépôts pour différentes énergies d'injection.

Ce système permettait de plus de disposer d'une deuxième méthode de mesure du TS celle dite d'Anderson[24] ou encore appelée méthode de la diode : il s'agissait de détecter la variation de la position du pied (le courant y est pratiquement nul) des caractéristiques $i_{abs} = f(V_{acc})$ où V_{acc} est la tension d'accélération des électrons. Afin de minimiser l'influence éventuelle de changements des coefficients de réflexion sur la surface de l'échantillon nous avons travaillé à une tension d'accélération V_{acc} constante donnant un courant absorbé faible ($\approx 1/20^{\text{ème}}$ du courant de saturation). Comme nous avons pu vérifier qu'au voisinage de ce point de fonctionnement les caractéristiques $i_{abs} = f(V_{acc})$ étaient parallèles les unes aux autres, les variations du courant absorbé étaient alors directement proportionnelles à celles du travail de sortie. Dans ces conditions nous avons retrouvé ([Fig.15](#)) les variations périodiques du TS révélées par la méthode de Kelvin[23]. Nous avons pu montrer que ces deux systèmes d'oscillation avaient bien la même période et étaient en phase et que la différence des pentes moyennes obtenues par ces deux méthodes s'expliquait simplement

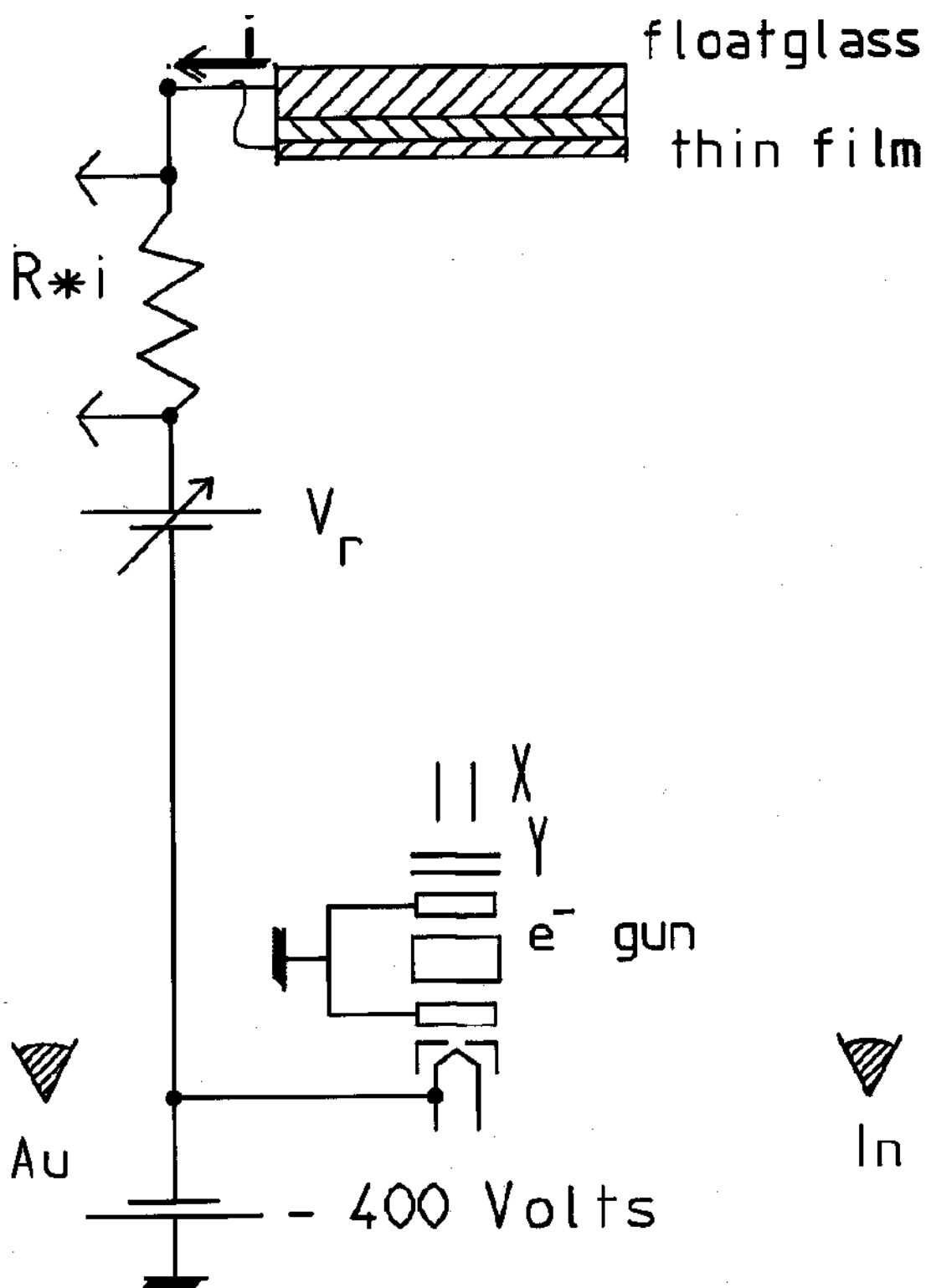


Figure 13: Schéma de l'expérience d'absorption d'électrons lents.

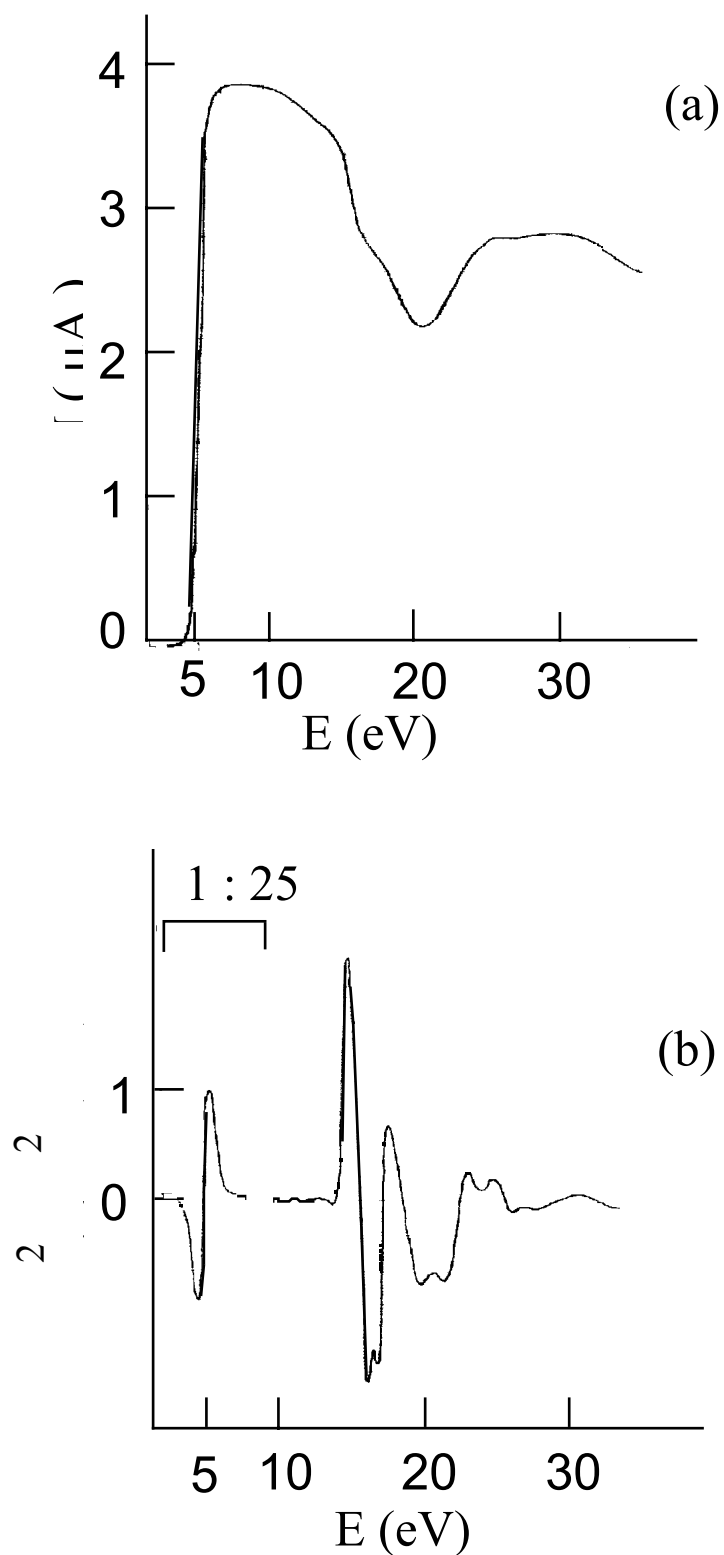


Figure 14 : Spectres en énergie sur le courant absorbé (a) et sur sa dérivée seconde (b) pour de l'or (111) à 80 Kelvin.

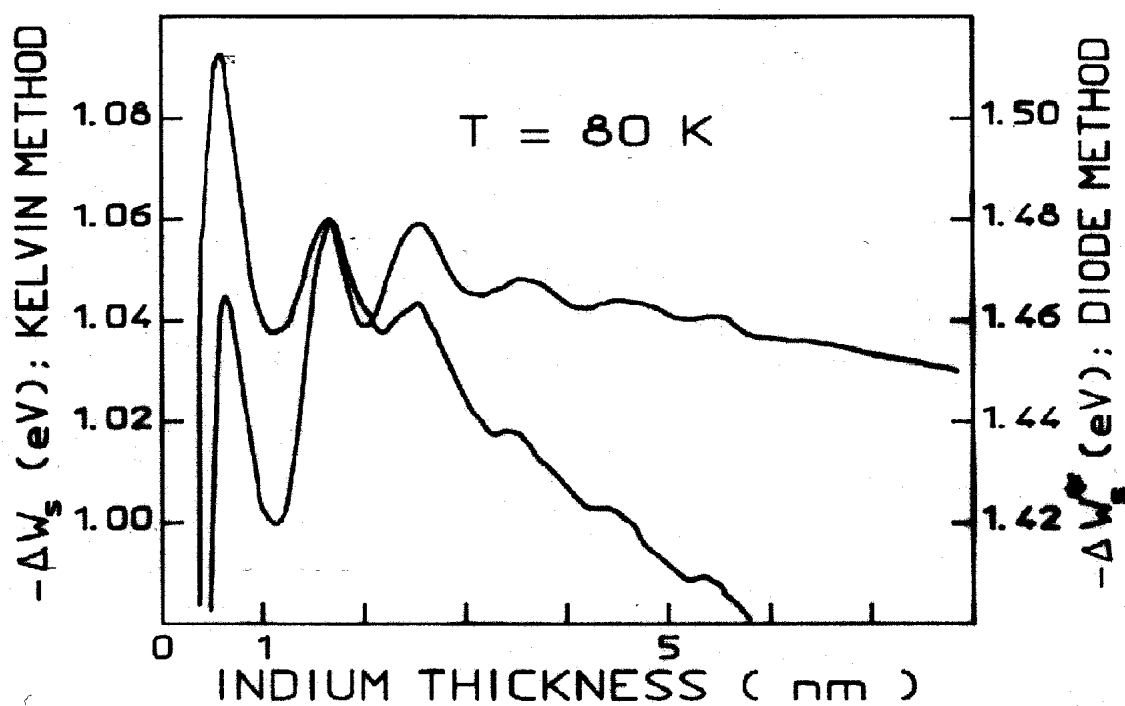


Figure 15 : Comparaison des résultats des deux méthodes de mesure du travail de sortie : celle de Kelvin et celle dite "de la diode".

En travaillant avec des énergies d'injection plus élevées nous avons mis en évidence la variation périodique ([Fig.16](#)) du courant absorbé avec l'épaisseur d'indium, déposée à 77K, pour des énergies incidentes, référencées par rapport au niveau de Fermi de la cible, comprises entre 4,4 et 10 eV. Cette expérience[25] a montré que la période de ces oscillations variait effectivement avec l'énergie d'injection des électrons ([Fig.17](#)); de plus cette variation s'est révélée être en bon accord avec celle déduite du calcul basé sur nos hypothèses de départ. Nous avons donc obtenu la confirmation que notre explication de la valeur "anormalement" élevée de la période des oscillations par l'effet de vernier était correcte et par la même l'origine quantique de ces variations de RE, de TS ou de courant absorbé se trouvait définitivement confirmée.

Oscillations RHEED quantiques.

Quand la croissance d'un matériau sur un substrat cristallisé se fait suivant le mode de Frank - van der Merwe l'intensité dans la tache spéculaire du diagramme RHEED présente, pendant le dépôt, des oscillations (appelées usuellement "oscillations RHEED") dont la période est égale à la distance entre plans atomiques de la surépaisseur orientés parallèlement au substrat. Ce phénomène a d'abord été observé sur le GaAs monocristallin par autoépitaxie par jets moléculaires[26] et est maintenant utilisé couramment pour calibrer les épaisseurs de semi-conducteurs déposés en couches minces. Ces oscillations ont été obtenues plus récemment lors de la croissance de métaux sur substrats monocristallins[27, 28]. Leur origine est liée, comme dans le cas des oscillations à courte période observées par des mesures de RE, à des variations périodiques de la densité de marches

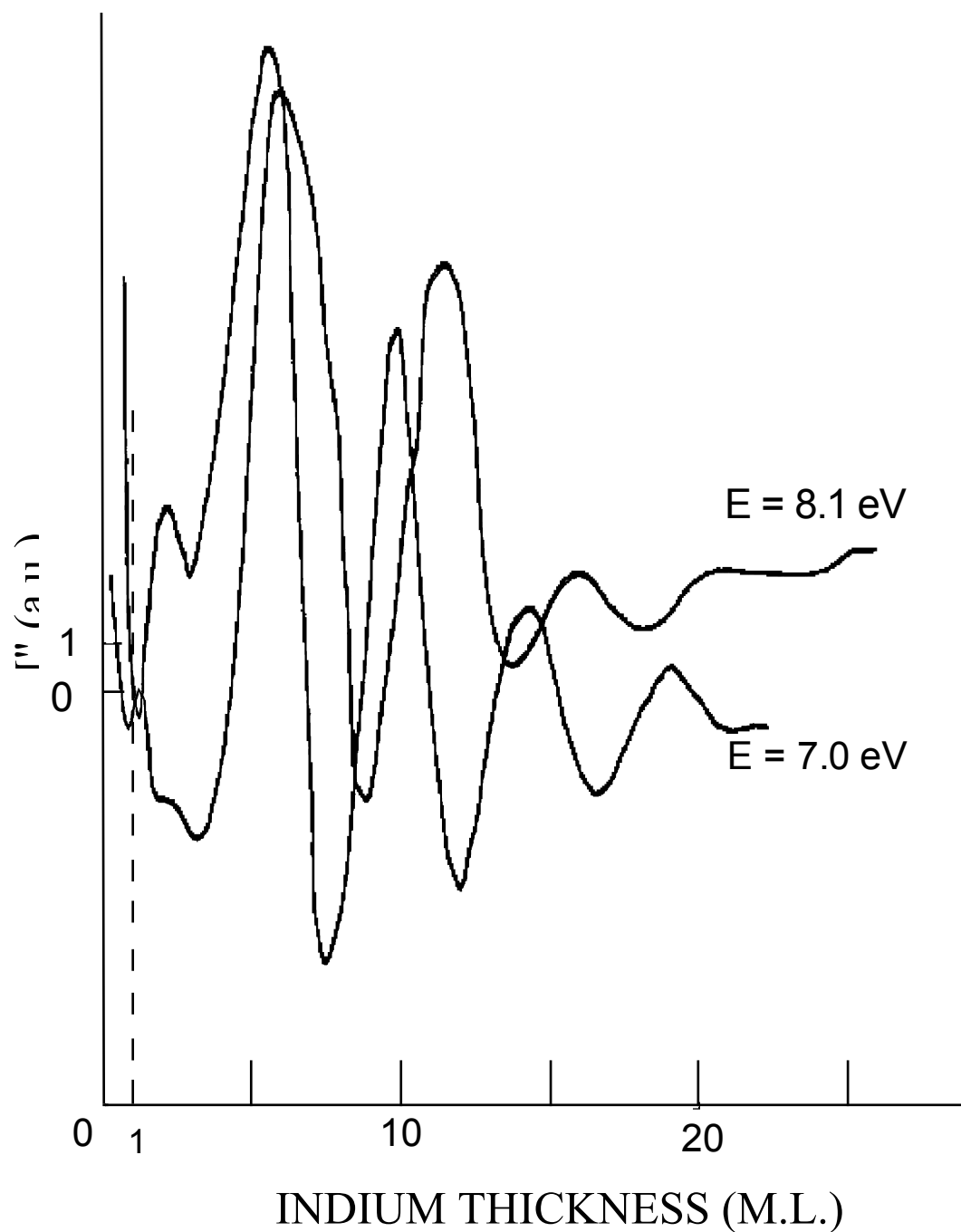


Figure 16 : Variation de la dérivée seconde du courant absorbé pendant le dépôt d'indium, pour différentes énergies des électrons incidents, référencées par rapport au niveau de Fermi de la double couche.

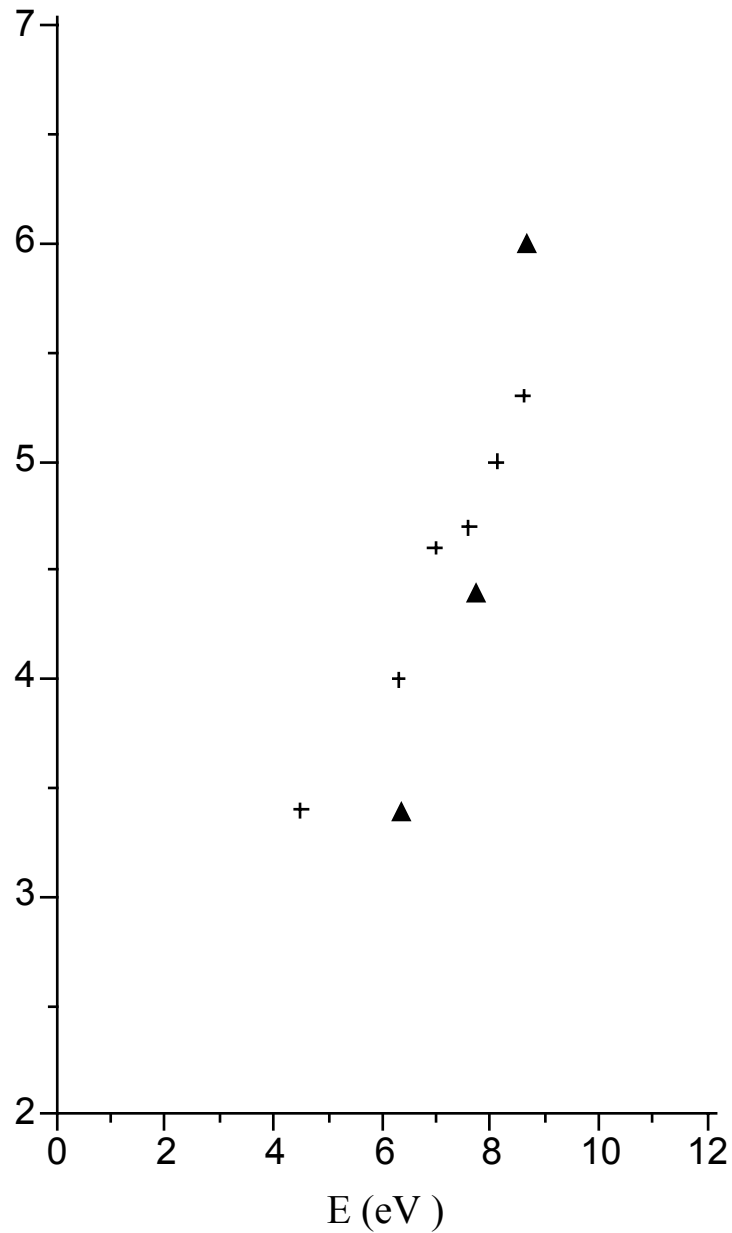


Figure 17 : Variation de la période des oscillations de taille quantique en fonction de l'énergie incidente des électrons référencée par rapport au niveau de Fermi (les croix représentent les valeurs expérimentales et les triangles le résultat de notre modèle).

atomiques. En particulier M. Jakochovski et E. Bauer[29, 30] avaient montré que sur du silicium monocristallin orienté (111) les oscillations de RE et de RHEED pouvaient apparaître simultanément et de manière synchrone. Par contre, en dépit de plusieurs essais, aucune variation d'origine quantique de l'intensité RHEED n'avait pu être détectée. Comme la composante normale à la surface du vecteur d'onde d'un faisceau d'électrons RHEED d'énergie typique de 30 keV est très voisine de celle des électrons utilisés dans l'expérience précédente d'absorption d'électrons lents il était envisageable de pouvoir détecter des oscillations RHEED quantiques sur le système Au/In. Effectivement nous avons pu mettre en évidence[25] sur nos échantillons polycristallins, étudiés à 100K, une variation périodique de l'intensité spéculaire RHEED ([Fig.18](#)) en fonction de l'épaisseur d'indium. La période obtenue était en bon accord avec celle déduite des mesures faites en absorption d'électrons de faible énergie et à incidence normale. Il s'est donc agi de la première mise en évidence d'un effet quantique sur les expériences de RHEED.

Conclusion de la première partie.

Le système Au/In a été étudié soigneusement par des mesures de travail de sortie, de résistance électrique, d'absorption d'électrons de faible énergie, de diffraction d'électrons rapides rasants ; nous avons pu détecter des modifications localisées à l'interface lors de recuits des bicouches, mettre en évidence, souvent pour la première fois, des effets de taille quantiques et de comprendre l'origine de la valeur expérimentale de leur période. Nous avons ainsi établi que le caractère polycristallin de nos couches minces ne

constituait pas toujours un handicap insurmontable à la réalisation d'échantillons de grande qualité (i.e. faible rugosité des interfaces, bonne cristallinité) contrairement à une idée encore trop répandue.

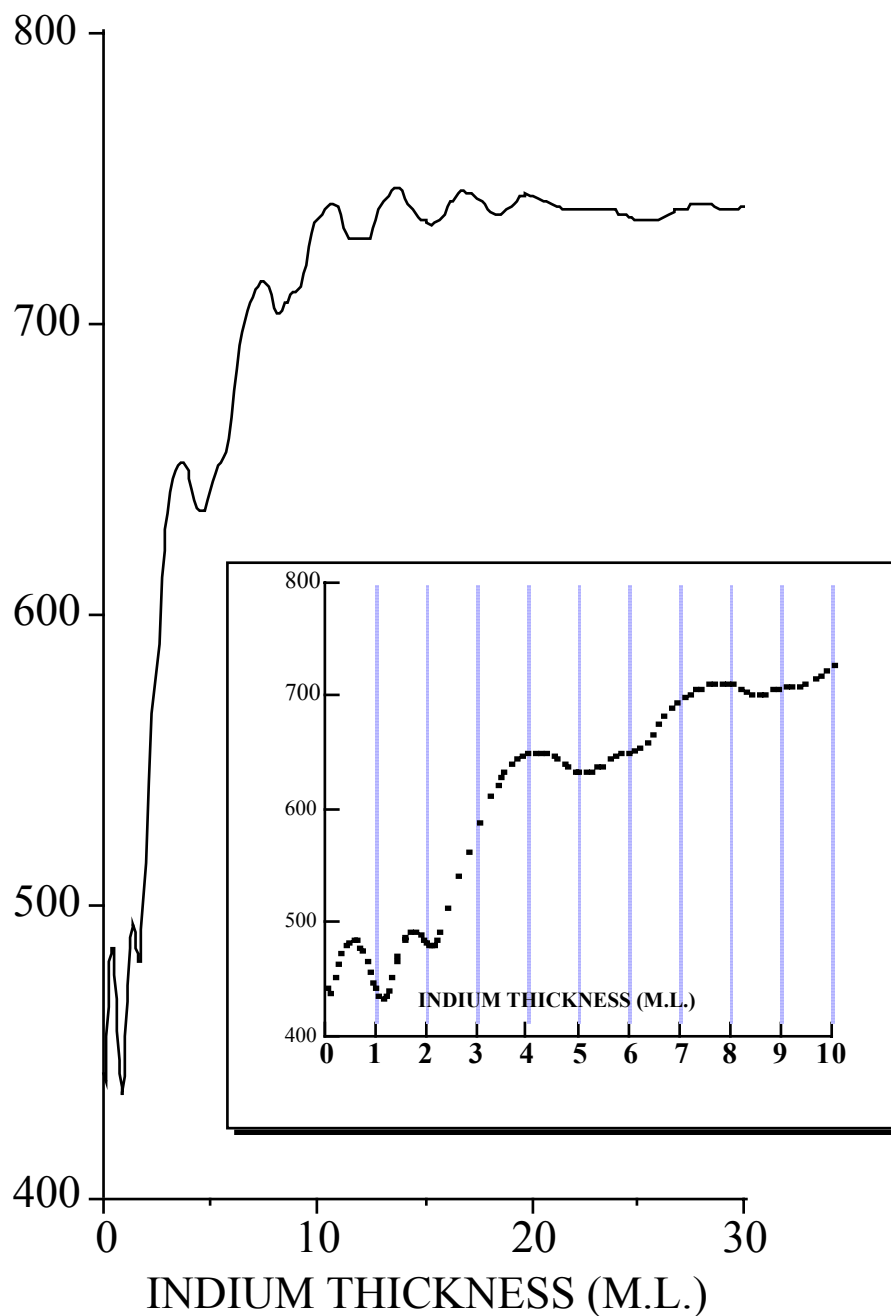


Figure 18 : Variation de l'intensité spéculaire RHEED pendant le dépôt d'indium sur de l'or à 80 Kelvin.

Deuxième partie : Etude des
 systèmes de matériaux magnétiques
 en couches minces.

Introduction

Depuis quelques années l'étude des structures en couches minces à base de matériaux magnétiques suscitent un intérêt considérable en raison, tout à la fois des questions de physique fondamentale qu'elles permettent d'étudier et également des applications qui peuvent en résulter dans le domaine de l'enregistrement magnétique. La réduction de la dimensionnalité des échantillons étudiés (systèmes quasi bi-dimensionnels), les effets de surface et d'interface qui en résultent ainsi que les propriétés liées à la super périodicité des empilements sont à l'origine de propriétés nouvelles comme les variations de la température de Curie avec l'épaisseur des empilements, l'anisotropie magnétique perpendiculaire, les oscillations de couplage entre couches magnétiques séparées par des métaux non magnétiques ou encore la magnétorésistance géante. Cependant il est vite apparu que ces propriétés magnétiques dépendaient fortement de la phase, de la qualité et de l'orientation cristalline des couches réalisées. C'est pourquoi une étude très soignée de ces différents paramètres associés à la croissance des films minces était nécessaire pour pouvoir tenter une explication convaincante des propriétés magnétiques. D'un autre côté la grande sensibilité des effets magnétiques à de très faibles variations des propriétés structurales des échantillons est un atout très précieux pour mieux comprendre les processus de croissance des matériaux en couches minces. Aussi avons nous équipé la cloche ultravide de préparation et de caractérisation avec des méthodes permettant un contrôle, pendant les dépôts, des structures géométriques (réflectométrie de rayons X mous ou RXM) et cristallographiques (diffraction d'électrons rapides rasants ou

RHEED). Il a été souvent nécessaire de poursuivre l'étude par des mesures ex-situ utilisant par exemple la diffraction de rayons X à petits (DRXPA) et grands angles (DRXGA), la microscopie électronique à transmission (en collaboration avec l'équipe de G. Nihoul de l'Université de Toulon) pour les méthodes disponibles à l'IOTA, ou encore des expériences d'EXAFS en utilisant le rayonnement synchrotron de LURE à Orsay (en collaboration avec les équipes de A. Fontaine et D. Chandesris) ou bien encore des mesures de Résonance Magnétique nucléaire - RMN - effectuées par P. Veillet et K. Le Dang à l'Institut d'Electronique Fondamentale d'Orsay. Les mesures magnétiques ont été faites par nos collègues de l'équipe de J.P. Renard de l'Institut d'Electronique Fondamentale (magnétorésistance, anisotropie de surface...) et ceux de l'équipe de J. Ferré du Laboratoire de Physique des Solides à Orsay.

Présentation des méthodes de caractérisation structurale des échantillons.

Nous allons donc présenter successivement les méthodes que nous avons mises en oeuvre pour la détermination des structures des films puis un rappel rapide et général sur les propriétés magnétiques des films minces et enfin nos résultats sur les différents couples de matériaux étudiés.

Au début du travail décrit dans cette partie du mémoire nous avons installé dans la chambre ultravide :

i) un système de réflectométrie de rayons X mous ([Fig.19](#)) travaillant à un angle $\theta = 30^\circ$ inspiré de celui utilisé au laboratoire par J.P. Chauvineau et al.[31] mais dans lequel le détecteur du type compteur proportionnel a été

remplacé par un multiplicateur tubulaire d'électrons ("chaneltron") afin d'obtenir, dans l'enceinte, des pressions dans la gamme des 10^{-11} à 10^{-10}

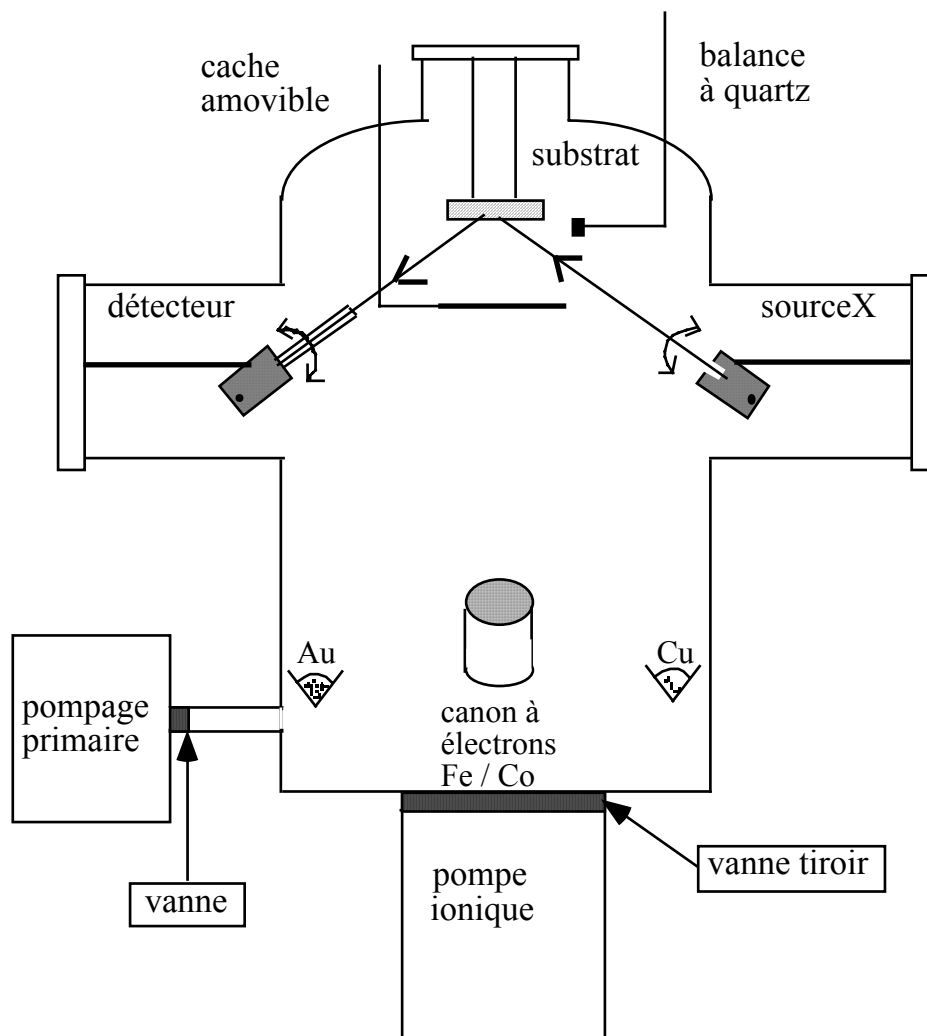


Figure 19 : Schéma de la cloche de préparation des échantillons "magnétiques" avec le système de réflectométrie de rayons X mous.

Torr. La source de rayonnement est un petit canon à électrons à anode de carbone émettant la raie $K\alpha$ à une longueur d'onde $\lambda = 4,47$ nm ;

ii) dans la direction perpendiculaire le système de RHEED.

Les matériaux à évaporer sont placés dans des creusets de métaux réfractaires et chauffés par effet Joule dans le cas de l'or, du cuivre, du fer et du chlorure de sodium ou bombardés par un faisceau d'électrons dans le cas du cobalt. Une balance à quartz soigneusement étalonnée par les oscillations de RXM ainsi que par la diffraction de rayons X à petits angles permettait de connaître l'épaisseur des matériaux déposés avec une grande précision.

Les méthodes de caractérisation développées au laboratoire vont maintenant être exposées avec quelques détails ; pour les autres le lecteur voudra bien se reporter aux différentes références rapportées au fil du texte.

Reflectométrie de rayons X mous.

Le principe de fonctionnement de la réflectométrie de rayons X mous (RXM) est le suivant : La théorie classique des propriétés optiques des films minces peut être utilisée pour le calcul de la réflectivité en amplitude, r_0 , d'une couche mince déposée sur un substrat et donne dans le cas d'interfaces parfaitement lisses (cas de la "couche idéale") la relation ([Fig.20A](#)) :

$$r_0(s, p) = \frac{r_2(s, p) + r_1(s, p) \exp(-2i\varphi)}{1 + r_2(s, p)r_1(s, p) \exp(-2i\varphi)} \quad (5)$$

où s et p représentent les polarisations respectivement perpendiculaire et parallèle au plan d'incidence, r_1 étant le coefficient de réflexion à

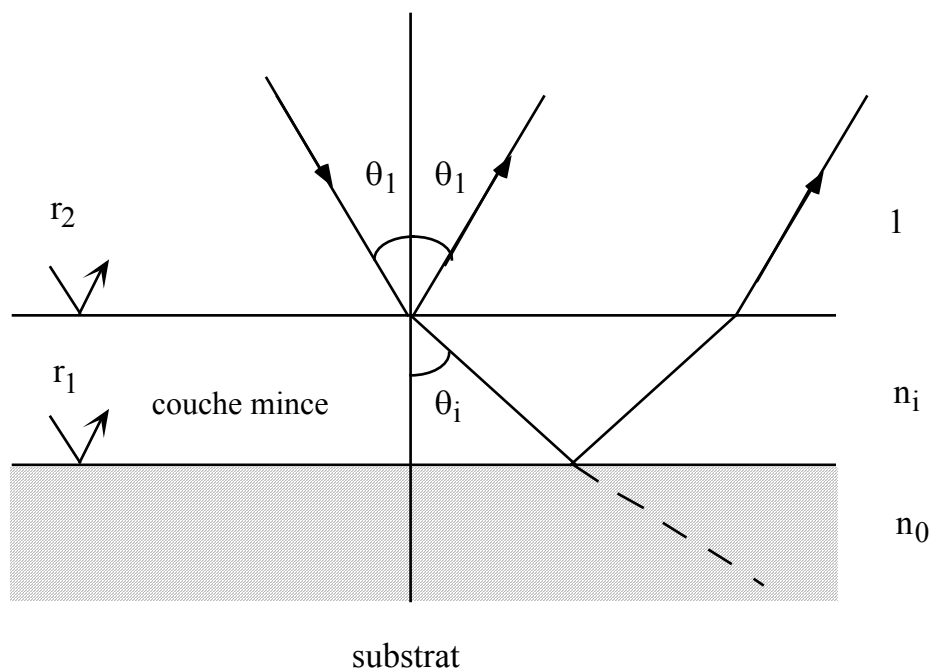


Figure 20A : Schéma de définition des angles de l'expérience de RXM.

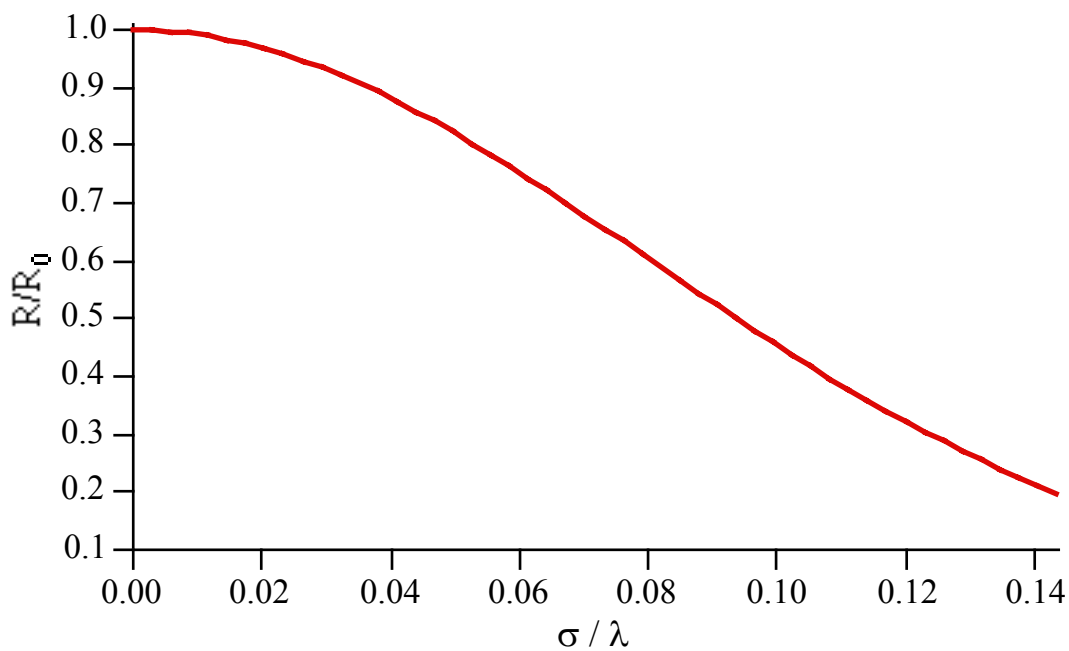


Figure 20B : Influence de la rugosité σ sur la réflectivité d'un dioptre simple.

l'interface air-couche et r_2 le coefficient de réflexion à l'interface couche-substrat, et φ représentant le déphasage dû à la traversée de la couche. Les coefficients de réflexion s'écrivent :

$$r_1 = \frac{1 - N_i}{1 + N_i} \quad \text{et} \quad r_0 = \frac{N_i - n_0}{N_i + n_0}$$

et le déphasage φ vaut : $\varphi = \frac{2\pi n_i e \cos(\theta_i)}{\lambda}$ avec la relation angulaire $n_i \cdot \cos(\theta_i) = \cos(\theta_1)$. L'interaction des rayons X avec la matière étant faible, l'indice complexe, n , des matériaux a un module proche de 1, et il s'exprime sous la forme : $n = 1 - \delta - i\beta$; δ est appelé le décrément et β représente l'absorption.

L'expression de N_i dépend de la polarisation de la lumière ;

en polarisation "s" : $N_i = n_i \cos(\theta_i)$ et en polarisation "p" : $N_i = \frac{n_i}{\cos(\theta_i)}$.

Pour un rayonnement non polarisé, comme celui utilisé dans nos expériences, le pouvoir réflecteur en intensité, $R_0 = r \times r^*$, de la couche idéale s'écrit :

$R_0 = \frac{1}{2} \left(|r_s|^2 + |r_p|^2 \right)$. Il est alors possible de vérifier que la

courbe donnant la variation de R_0 en fonction de l'épaisseur de la couche mince est constituée d'oscillations amorties ; la période de ces oscillations est égale à $\Delta e = \frac{\lambda}{2(1 - \delta)}$ et l'amortissement est d'autant plus grand que l'absorption est forte.

L'influence de la rugosité sur la réflectivité des rayons X a été étudié en détail par P. Croce et al[32, 33]. Il a été ainsi montré, qu'en négligeant les réflexions multiples sur une interface rugueuse, il ne suffit que de connaître la loi statistique de distribution $P(z)$ de la hauteur z en tout point (x,y) de la

surface, soit $z(x,y)$, mesurée dans la direction perpendiculaire à la surface moyenne définie par $\langle z \rangle = 0$. Dans le cas de films réalisés par évaporation $P(z)$ peut être représentée correctement par une loi gaussienne $P(z) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} \exp\left(-\frac{z^2}{2\sigma^2}\right)$, où σ^2 est la variance de la distribution $\sigma^2 = \langle (z - \langle z \rangle)^2 \rangle$. Moyennant plusieurs hypothèses valables pour notre expérience il est possible de montrer que la réflectivité en amplitude, r_i^* , pour une interface rugueuse est égale au produit de celle, r_i , du cas idéal par un facteur appelé coefficient de Debye-Waller, noté A_i

$$r_i^*(s,p) = r_i(s,p) \cdot A_i \quad \text{avec} \quad A_i = \exp\left(-\frac{8\pi^2\sigma_i^2 \sin^2 \theta_i}{\lambda^2}\right),$$

où σ_i est la rugosité de l'interface étudiée qui est éclairée sous l'incidence θ_i . La [figure 20B](#) montre dans un cas particulier que la réflectivité chute très vite pour de faibles augmentations de la rugosité.

Dans le cas de la couche simple sur un substrat il est nécessaire de faire intervenir le coefficient de Debye Waller de chacune des deux interfaces.

Les courbes expérimentales ont été analysées, afin d'en extraire la loi de variation de la rugosité de la surface libre, en utilisant le programme réalisé par J.P. Chauvineau[31]. Nous avons supposé l'interface couche-substrat invariante pendant le dépôt et utilisé les valeurs expérimentales de la longueur d'onde, des indices et de l'angle d'incidence. Le programme utilisait la méthode des moindres carrés pour adapter la loi de variation de la rugosité en fonction de l'épaisseur de la couche afin d'obtenir le meilleur accord entre les intensités calculées et mesurées. Nous avons pu ainsi déterminer la loi de variation de la rugosité pendant le dépôt des surépaisseurs. En général la détermination absolue de la rugosité était faite

à partir de la valeur de la rugosité de la surface libre de l'échantillon déduite des expériences de DRXPA.

Diffraction d'électrons rapides rasants (RHEED).

Les électrons émis à une énergie de 30 keV, par un canon du commerce amélioré par nos soins, étaient diffractés par nos échantillons sur un écran phosphorescent situé à l'opposé de la source. L'image obtenue était ensuite recueillie par un système informatique. Les mesures très précises de l'intensité RHEED, comme dans le cas du système In/Au, étaient effectuées au moyen d'une cage de Faraday située en amont du phosphore. Le faisceau électronique attaque l'échantillon avec un angle de rasance inférieure au degré si bien que seules les premières couches atomiques sont testées. A partir de l'analyse des profils des diagrammes, il est possible d'obtenir des renseignements sur la géométrie de la surface libre. Une surface parfaitement lisse d'un substrat monocristallin donnera, compte tenu des imperfections expérimentales telles que la non-monochromaticité du faisceau d'électrons, la taille finie des terrasses..., un diagramme constitué de segments de droite dans la direction desquels l'intensité lumineuse est faiblement variable. Par contre une surface légèrement rugueuse se traduira par une modulation de l'intensité le long des segments de droite. Si la surface a un relief très prononcé le diagramme se rapprochera de celui d'un composé tridimensionnel et sera donc constitué de points. Comme nos échantillons étaient polycristallins et, sachant que la taille des cristallites étaient très largement inférieures à celle de la surface couverte par le faisceau d'électrons, aucun réglage de la position azimutale de l'échantillon n'était nécessaire : le diagramme est donc la superposition de ceux correspondants aux différents azimuts pour la surface étudiée.

Diffraction de rayons X à petits angles (DRXPA).

Nous avons utilisé deux appareils. Le premier est un diffractomètre du commerce de marque Philips du type Bragg-Brentano sur lequel ont été aussi enregistrés les diagrammes de diffraction à grands angles (DRXGA). Cet appareil a été modifié par nos soins pour pouvoir être utilisé dans la gamme des faibles angles d'incidence. Un monochromateur de graphite ainsi que des fentes fines placées après la source et devant le détecteur ont permis d'obtenir une résolution correcte et un flux intense. Le deuxième a été conçu au laboratoire[34] pour pouvoir travailler à très faibles angles. Il permet ainsi une étude précise de la réflexion totale mais a l'inconvénient d'avoir une brillance plus faible que celle de l'autre appareil ([Fig.21](#)). Les courbes obtenues ont été ensuite analysés en utilisant des modèles, développés au laboratoire[35], analogues à ceux décrits à propos de la RXM. qui permettent de déterminer les épaisseurs, les rugosités et les indices des différentes couches ([Fig.22](#)).

Les propriétés magnétiques des films en couches minces.

L'apport des structures en couches minces sur les études de magnétisme a été considérable grâce aux propriétés originales et diversifiées obtenues en raison notamment :

i) des très faibles épaisseurs utilisées (de l'ordre de quelques plans atomiques) du rôle accru des interfaces qui en découle (diminution de l'intégrale d'échange, variation de la température de Curie et du champ coercitif avec l'épaisseur, apparition d'une anisotropie magnétique de surface etc...);

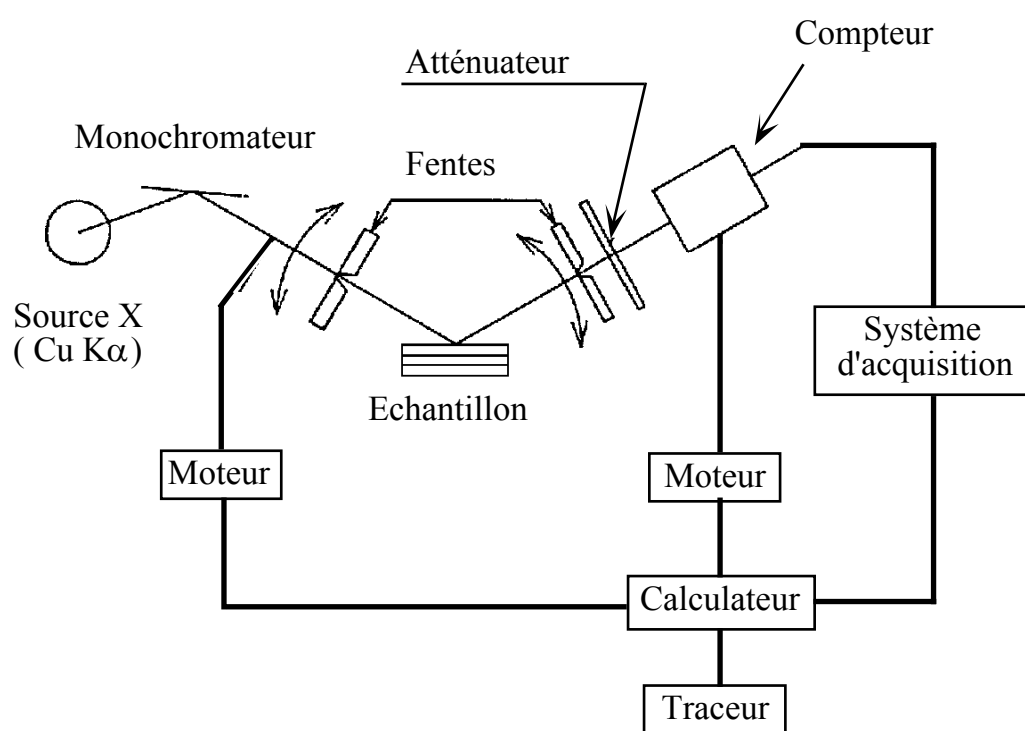


Figure 21 : Schéma de l'expérience de DRXPA.

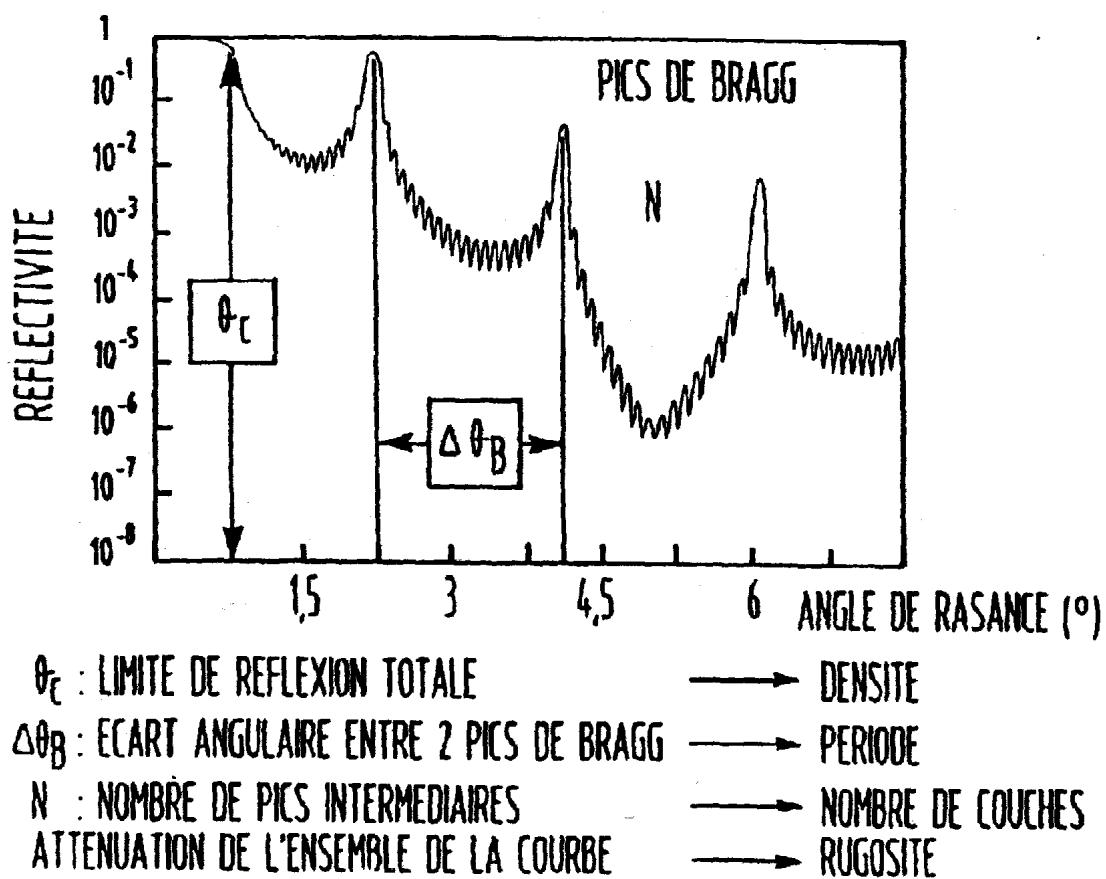


Figure 22 : Courbe typique de réflectivité d'une expérience de DRXPA (d'après [82]).

- ii) des conditions de raccord des réseaux cristallins des matériaux métalliques avec ou sans apparition de défauts de structure localisées à l'interface et aux joints de grain;
- iii) de l'interaction électronique entre les matériaux magnétiques et non-magnétiques (apparition d'un moment magnétique dans ces couches, hybridation des orbitales entre les métaux à l'interface).

Nous allons passer en revue quelques-unes de ces propriétés magnétiques nouvelles afin de mieux comprendre l'intérêt des mesures fines de caractérisation de la croissance des films pour le magnétisme.

Anisotropie de surface :

Dans le métal massif il est connu depuis longtemps qu'il est plus facile d'aimanter un échantillon monocristallin suivant certaines de ces directions cristallographiques que dans d'autres. Ce phénomène dit d'anisotropie magnétocristalline (de volume) traduit l'existence d'un terme d'énergie libre dépendant de l'orientation de l'aimantation par rapport aux axes cristallins[36]. L'énergie d'anisotropie, E_a , peut alors être développée en puissances paires des cosinus directeurs de l'aimantation par rapport au réseau cristallin. Pour les cristaux hexagonaux, par exemple, on peut écrire $E_a \cong K_v \sin^2 \theta$ où θ est l'angle de l'aimantation par rapport à l'axe \bar{c} . L'origine physique de cette anisotropie est attribuée au couplage spin-orbite. Pour les films minces il est possible de définir une énergie d'anisotropie perpendiculaire égale à la différence des énergies nécessaires pour saturer l'échantillon en champ perpendiculaire et en champ parallèle au plan du film. Son expression est équivalente à celle obtenue pour le métal massif mais dans laquelle on remplace K_v par une constante effective K_{eff} d'anisotropie qui est la somme de trois termes :

$$K^{\text{eff}} = K_1^{\text{eff}} + K_2^{\text{eff}} + K_3^{\text{eff}} = K_v - 2\pi M_s^2 + \frac{(K_{s1} + K_{s2})}{e};$$

θ est ici l'angle de l'aimantation par rapport à la normale à la couche qui est confondue, dans le cas de nos films minces de cobalt h.c. avec l'axe \vec{c} .

- Le premier terme K_1^{eff} est celui d'anisotropie magnétocristalline de volume;
- Le deuxième terme K_2^{eff} , appelé anisotropie dipolaire ou de forme, est lié à l'interaction dipolaire entre moments magnétiques. Il est possible d'étudier cette anisotropie dipolaire dans le cadre du modèle continu en supposant une aimantation continue dans la couche et de définir alors une énergie dipolaire associée à l'interaction entre l'aimantation et le champ démagnétisant créé par les charges fictives réparties sur la surface du film et qui tend à coucher l'aimantation dans le plan du film.

$$K_2^{\text{eff}} = -2\pi M_s^2, \text{ Ms étant l'aimantation à saturation ;}$$

- le dernier terme est d'origine surfacique : il fait intervenir d'une part une anisotropie *magnétocristalline* liée à la rupture de symétrie occasionné par la présence de la surface et localisée au voisinage de celles-ci et, d'autre part, un terme d'anisotropie *magnétoélastique*[37, 38] qui trouve son origine dans les déformations interfaciales susceptibles d'intervenir lors de la croissance des films minces. Cette anisotropie magnétoélastique est répartie uniformément dans l'épaisseur du film mais a une variation inversement proportionnelle à l'épaisseur du film (e), lui conférant ainsi son caractère de surface. K_{s1} et K_{s2} sont les densités surfaciques d'énergie d'anisotropie totale (élastique et cristalline) pour chacune des deux interfaces du film mince.

Il faut noter que l'effet de champ démagnétisant est très important puisque pour le cobalt, par exemple, il vaut environ 17kOe. Malgré tout, pour des épaisseurs très faibles de matériaux magnétiques, il est possible que le terme d'anisotropie d'interface l'emporte sur celui de champ démagnétisant ce qui donne lieu alors à une aimantation facile dans la direction perpendiculaire aux couches. C'est ce qui a été observé sur nos échantillons Au/Co avec une épaisseur de transition, e^* , entre le régime à aimantation facile perpendiculaire et celui à aimantation facile parallèle, très grande (environ 1,2 nm).

Ce phénomène d'anisotropie perpendiculaire est très sensible à la rugosité des surfaces et diminue notablement dès que celle-ci augmente conformément aux observations expérimentales et aux prédictions théoriques[36].

Couplage d'échange :

Deux couches minces magnétiques peuvent s'aimanter mutuellement, au travers d'une couche métallique non magnétique (NM) par l'intermédiaire des électrons de conduction donnant lieu à un couplage d'échange dit indirect. Ce couplage, ainsi qu'il a été montré expérimentalement sur des multicouches de terre rare ou de métaux de transition, peut passer alternativement et périodiquement, quand l'épaisseur de la couche NM augmente, d'un état ferro- à un état antiferro-magnétique[39-41]. Ces résultats ont été interprétés par un modèle du type RKKY développé par Yafet[42] mais le désaccord entre les périodes calculées et mesurées (bien trop grandes par rapport à celles déduites du modèle) a été expliqué comme le résultat d'un effet de vernier entre le paramètre de maille du métal NM et la période des oscillations de couplage de type RKKY[43-45]. Plus

précisément P. Bruno et C. Chappert[46] ont montré que les périodes d'oscillation possibles correspondaient à des vecteurs d'onde reliant, dans la direction du réseau réciproque associée à la direction de croissance du film, des points de la surface de Fermi à vitesse de Fermi antiparallèles. Il est aussi prédit que des interfaces peu rugueuses et des films présentant une faible densité de dislocations sont des conditions nécessaires pour l'observation de tels phénomènes.

Ces couplages peuvent être mis en évidence par des mesures d'aimantation ou de magnéto-résistance.

Magnéto-résistance

La résistance électrique de certains empilements alternés de couches minces de métaux magnétiques et non-magnétiques varie de manière importante lors de l'application d'un champ magnétique : cet effet est appelé "effet de magnéto-résistance". Il a été montré que la RE est maximale quand les aimantations des différentes couches magnétiques sont antiparallèles entre elles (soit à cause d'un couplage d'échange soit par l'utilisation de couches ferromagnétiques à champs coercitifs différents)[47-49]. Ces résultats ont été expliqués par un mécanisme de diffusion des électrons de conduction au niveau des couches minces magnétiques et de leurs interfaces dépendant de l'orientation relative du spin des électrons avec l'aimantation. Les résultats expérimentaux, en particulier ceux sur les empilements Au/Co réalisés par nos soins, ont pu être interprétés de manière satisfaisante par un modèle[50] de conduction électrique semi-classique voisin de celui de Camley et Barnas [51] lui même dérivé de ceux présentés dans la première partie de ce mémoire. Le modèle fait appel aux hypothèses supplémentaires suivantes :

- i) les épaisseurs des couches sont inférieures au l.p.m. des électrons de conduction dans ces milieux et à la longueur caractéristique associée au processus de renversement de spin;
- ii) les couches de matériaux magnétiques (Co par exemple) sont considérées comme de simples interfaces des couches NM (Au);
- iii) les coefficients de transmission des EC aux interfaces dépendent de la direction relative de leur spin et de l'aimantation.

Cependant cette théorie ne permet pas d'expliquer entièrement les résultats obtenus sur les superréseaux Fe/Cr pour lesquels une approche quantique se justifie alors pleinement. Ce traitement quantique a été effectué par Levy et col.[52] à partir du modèle de Tesanovic et col.[9] en considérant un réseau de plans diffuseurs (représentant les interfaces Fe/Cr) et en introduisant une diffusion dépendant du spin tant au niveau des interfaces que dans le volume du métal ferromagnétique. Ce modèle a l'avantage de relier la résistivité à l'épaisseur des couches et à leurs rugosités sans introduire de paramètres phénoménologiques comme les coefficients de transmission des théories semi-classiques. Il faut noter que tous ces modèles ne tiennent pas compte de l'influence des propriétés structurales des couches sur le comportement magnétique de l'échantillon et ne permettent pas de donner une interprétation à l'échelle atomique de l'origine de l'asymétrie de diffusion de spins.

Les résultats sur les systèmes étudiés.

Différents systèmes ont été étudiés. Tous ont été élaborés à partir d'un substrat constitué de 25 nm d'or déposé à température ambiante sur du "float-glass" puis recuit à 150°C. Le diagramme RHEED ([Fig.23](#)) obtenu (bâtons fins et très allongés) a confirmé l'orientation (111) de la surface et

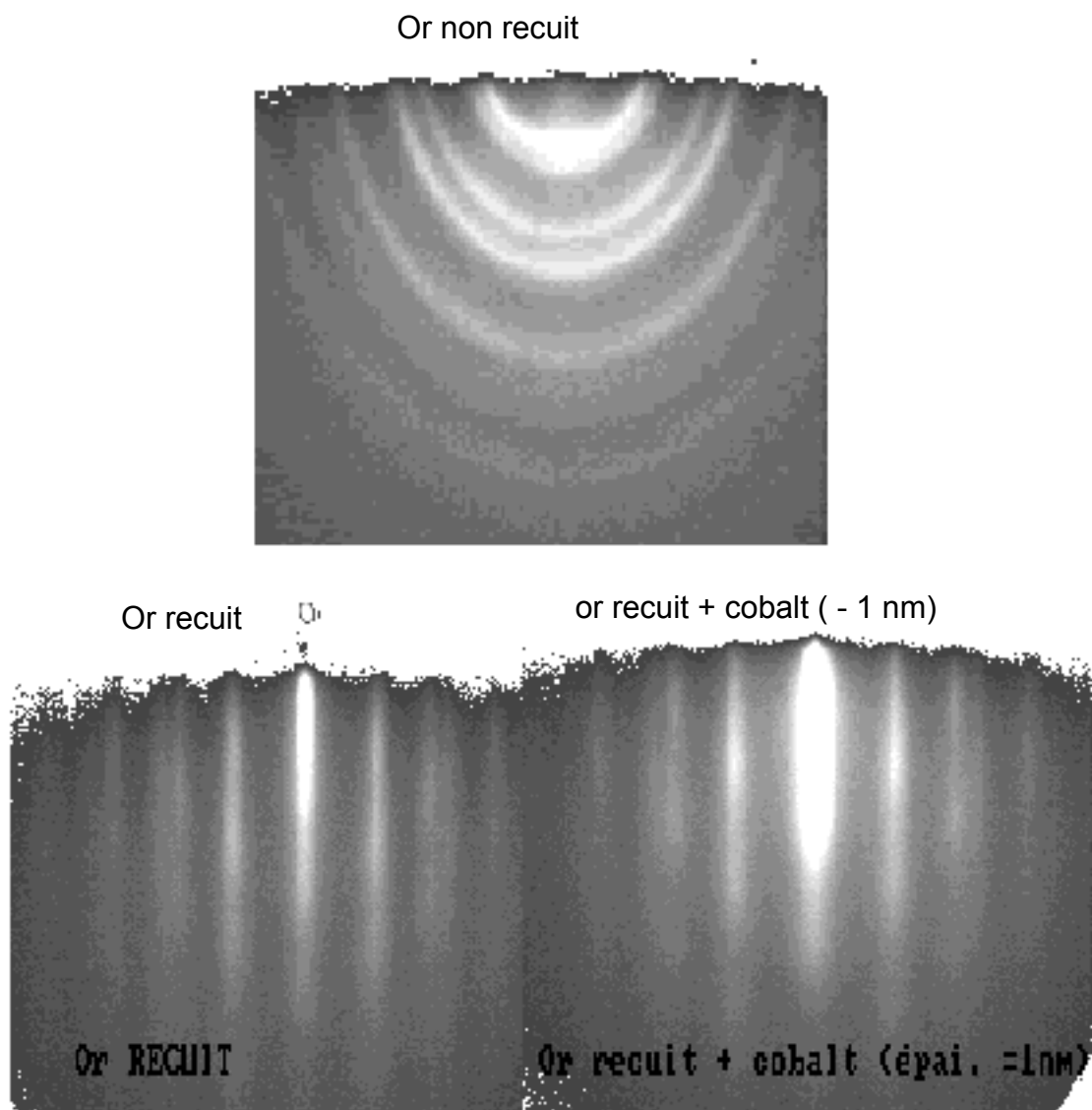


Figure 23 : Clichés RHEED.

le caractère lisse de celle-ci[53]. Des études de DRXPA ont permis de chiffrer la rugosité de la surface libre de l'or recuit à environ 0,5 nm r.m.s.. Nous avons pu confirmer cette valeur par des études de microscopie à effet tunnel (STM)[54].

Nous avons successivement considéré les systèmes Au/Fe, Au/Co, et Cu/Co dont nous allons présenter les principaux résultats ci-après.

Le système Au/Fe.

La RXM a permis d'étudier les dépôts à température ambiante d'une première couche de fer et d'une deuxième couche d'or sur notre substrat classique d'or. Nous avons pu montrer[53] que la rugosité de la surface libre, pendant le dépôt de fer, était égale à celle du substrat d'or tant que l'épaisseur de fer, e_{Fe} , était inférieure à 1,5 nm puis croissait régulièrement au delà ([Fig.24](#)). Ces conclusions ont été confirmées par RHEED. Le diagramme, en forme de bâtons faiblement ponctués quand $e_{Fe} < 1,1$ nm, se transforme, quand l'épaisseur du métal magnétique devient supérieure à 1,5 nm, en un diagramme de volume consécutif à la structure plus rugueuse de la surface libre de fer. Ces diagrammes correspondent à une structure polycristalline fortement texturée (110) du réseau cubique centré du fer massif. A la précision des mesures (2 %) il n'a été trouvé aucune variation des paramètres de réseaux du film mince par rapport à ceux du métal massif (contrairement au cas du cobalt). La microscopie électronique à transmission (MET) a confirmé les résultats du RHEED et a permis, de plus, de montrer que, pour des épaisseurs de fer supérieures à 1 nm, chaque cristallite d'or était recouvert de petits, et par conséquent

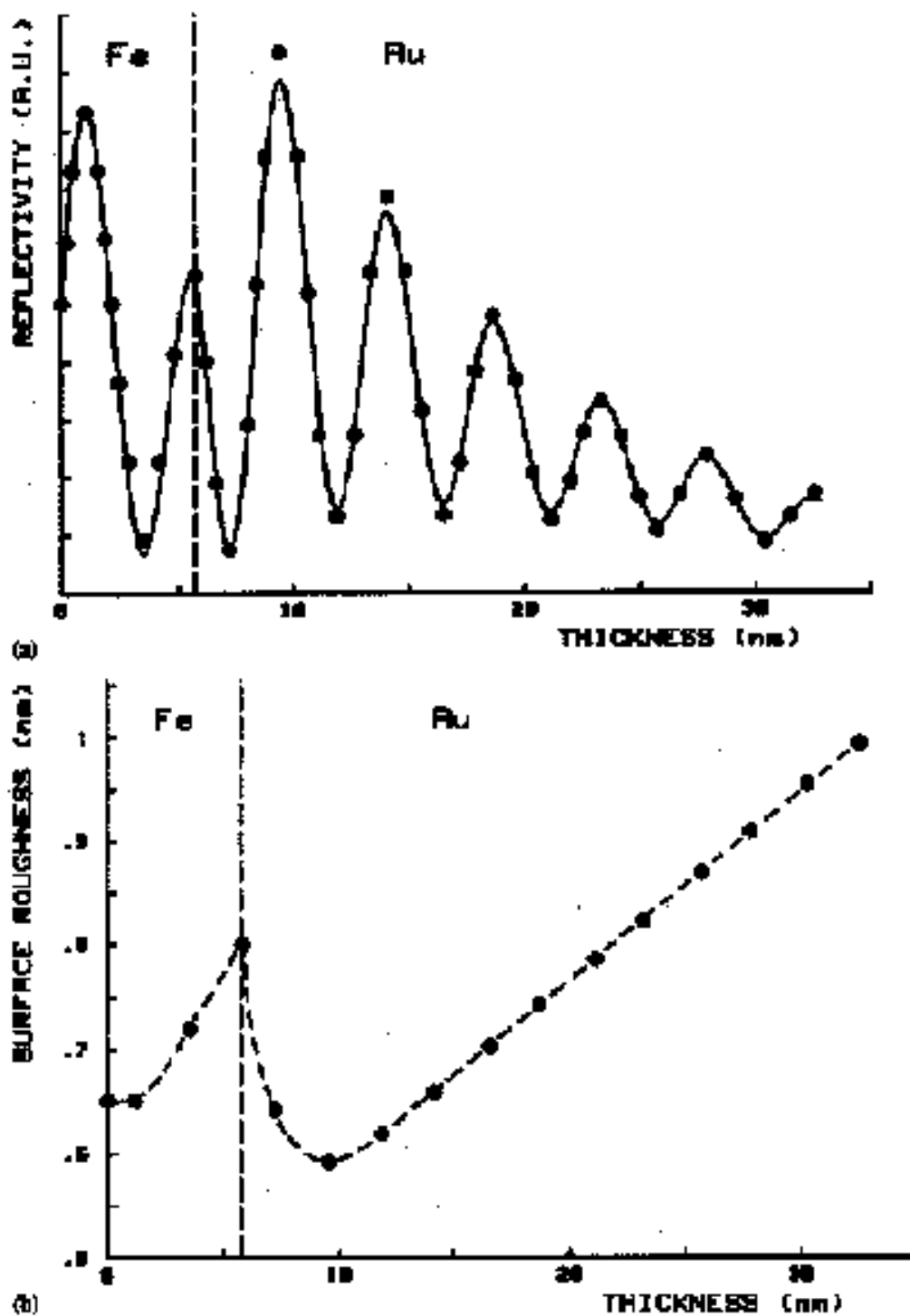


Figure 24 : Etude par RXM du système Au/Fe : en haut la courbe de réflectivité; en bas celle de la variation de la rugosité de la surface libre pendant les dépôts.

nombreux, cristallites de fer. Ceux-ci étaient orientés dans trois directions [110], à 120° l'une de l'autre autour de l'axe commun [110] perpendiculaire au plan de la couche, et à 30° des rangées [110] des plans d'or (111).

Quand une deuxième couche d'or est redéposée sur une couche de fer de quelques nanomètres d'épaisseur nous avons constaté que la rugosité de la surface libre décroissait fortement en raison vraisemblablement d'une nucléation d'atomes d'or dans les creux de la surface (rugueuse) de fer.

La dégradation rapide des interfaces Au/Fe pour des épaisseurs de fer assez faibles explique pourquoi les propriétés magnétiques d'échantillons du même type sont assez pauvres ; en particulier Shintaku[55] a pu montrer récemment que, sur des multicouches Fe/Au(111) déposées sur du floatglass, les oscillations de MR et de couplage d'échange au travers du métal noble étaient très dégradées par rapport à celles observées sur des multicouches Fe/Au(100) déposées sur des monocristaux d'AsGa(100). Ceci a été attribué essentiellement (mais l'autre facteur à ne pas négliger est la différence d'orientation cristallographique) à des interfaces plus rugueuses dans le premier cas que dans le second. Cependant cet article semble montrer que les films d'or déposés sur le floatglass présentent aussi l'orientation (100) totalement absente de nos échantillons. Des expériences effectuées sur des échantillons du type de ceux de l'IOTA - monocristallins dans la direction de croissance - permettrait de lever cette ambiguïté sur les propriétés magnétiques.

Le système Co/Au

Ses propriétés structurales.

Des études faites au laboratoire par microscopie électronique par transmission[13, 56] avaient permis d'obtenir quelques renseignements sur la structure cristallographique de sandwichs simples d'or (111) et de cobalt du type $\text{Au}(25 \text{ nm})/\text{Co}(e_{\text{Co}})/\text{Au}(5 \text{ nm})$ quand l'épaisseur de la couche de cobalt, e_{Co} , était supérieure ou égale à 3,1 nm. A partir de l'étude de diagrammes de diffraction obtenus sur un unique monocristal d'or sélectionné à l'aide d'un diaphragme convenablement choisi et éclairé par le faisceau d'électrons parallèle à l'axe (111) de l'or, il avait été possible de montrer que :

- i) le cobalt présentait la structure hexagonale compacte avec l'axe \bar{c} parallèle à l'axe [111] du cristal d'or substrat;
- ii) le cristal d'or était recouvert de petits cristallites de cobalt d'extension latérale voisine de 5 à 10 nm et bien ordonnés;
- iii) en sélectionnant une partie ad hoc du diagramme de diffraction précédent il était possible de montrer à partir de franges dites de moiré que les réseaux planaires de cobalt et d'or pouvaient être désorientés l'un par rapport à l'autre d'un maximum de 3° .

Il s'agissait alors d'étudier de manière plus approfondie la structure des films très minces de cobalt ($e_{\text{Co}} < 1 \text{ nm}$) et de savoir en particulier comment le désaccord de maille très grand entre l'or et le cobalt (14%) influait sur la croissance des épaisseurs très faibles de ce matériau magnétique.

Des mesures de RHEED[54] ont montré que, pour des épaisseurs de cobalt inférieures à 15 plans monoatomiques -soit 3 nm- le diagramme était très voisin de celui de l'or recuit à l'exception d'un déplacement latéral et d'un élargissement des bâtons observés sur l'écran phosphorescent. Nous avons

pu en conclure que la surface libre de cobalt avait le même type de réseau hexagonal que la surface (111) de l'or. L'élargissement des bâtons a été relié à une taille des cristallites plus faibles que celles obtenues avec l'or. La position des bâtons sur la figure de diffraction du film de cobalt a permis la mesure de sa maille cristalline de surface ([Fig.25](#)) : nous avons pu montrer que la distance entre rangées d'atomes des plans compacts (000.1) de cobalt était plus grande que celle associée au cobalt massif pour lequel les paramètres cristallographiques sont plus petits de près de 14% par rapport à ceux de l'or massif. Cette dilatation planaire du cobalt diminue quand l'épaisseur de cobalt augmente pour retrouver sa valeur du métal massif pour une épaisseur moyenne de cobalt supérieure à 3 nm. La courbe donnant la variation du paramètre de maille du cobalt en couche mince en fonction de son épaisseur peut s'interpréter facilement[36, 37]. Le désaccord de maille peut être accommodé de deux manières différentes : il peut s'agir, d'une part, d'une déformation homogène planaire du film de manière à adopter le pas du réseau de l'or -on dit qu'il y a pseudomorphisme- ou, d'autre part, par l'introduction de dislocations d'interface. La configuration adoptée par le système résulte de la compétition énergétique entre ces deux mécanismes. Or l'énergie élastique est proportionnelle au volume du film et dépend de manière quadratique de la déformation tandis que l'énergie associée aux dislocations - moyennant certaines hypothèses raisonnables - est proportionnelle à l'aire du film et dépend linéairement de la déformation. Il en résulte que le pseudomorphisme est favorisé aux basses épaisseurs tandis que la densité de dislocations augmente au delà d'une épaisseur critique estimée à 0,3 nm. L'accord entre ce modèle simple et nos observations expérimentales est correct.

Pour $e_{\text{Co}} > 3$ nm les bâtons RHEED se ponctuent légèrement en raison de la rugosité croissante de la surface libre de cobalt.

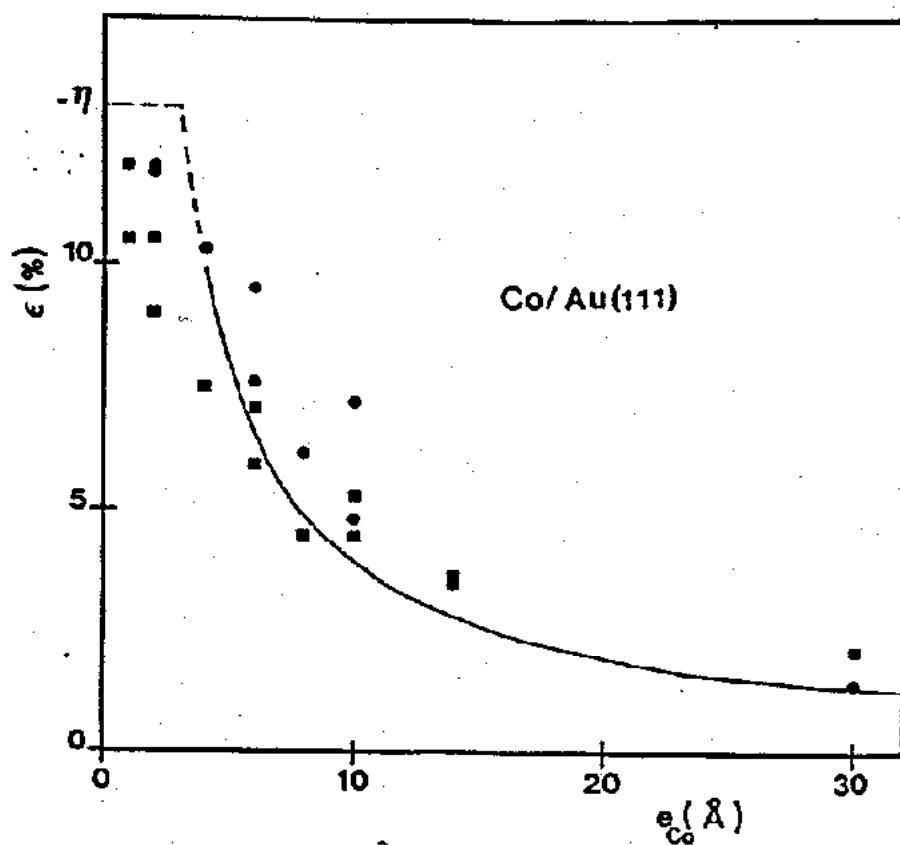


Figure 25 : Variation des paramètres de maille surfacique du cobalt déposé sur de l'or (111) mesurée par RHEED.

La RXM a permis de conclure que la rugosité des dépôts de cobalt ou de la deuxième couche d'or sur la surface de cobalt était pratiquement constante tant que les épaisseurs respectives des couches étaient inférieures à 3 nm puis croissaient régulièrement au-delà ([Fig.26](#)).

Il était important, pour l'interprétation correcte des propriétés magnétiques des échantillons de type bicouches ou multicouches Au/Co avec une couverture finale d'or, de savoir si les propriétés remarquables d'adaptation du pas de réseau du cobalt, observée sur une surface libre de cobalt, était conservée malgré la présence d'une deuxième interface Au/Co. D'autre part il était intéressant d'essayer de savoir ce qui pouvait advenir aux paramètres cristallins dans la direction perpendiculaire (celle de la croissance). C'est pourquoi nous avons entrepris une étude[57] basée sur la diffraction de rayons X et de microscopie électronique à transmission sur des échantillons Au/Co avec des faibles épaisseurs de cobalt. Comme la rugosité des couches d'or ou de cobalt étaient constantes quand l'épaisseur des couches étaient inférieures à 3 nm, on pouvait s'attendre à obtenir des structures multicouches de haute qualité même pour un grand nombre de périodes. C'est effectivement ce qui a pu être mis en évidence par la DRXGA et la DRXPA où de nombreux pics de superstructure ont été observés traduisant ainsi la présence d'interfaces presque parfaites (i.e. lisses) ([Fig.27](#)).

Nous avons pu montrer par ces deux méthodes, l'une travaillant sur des bicouches (MET) et l'autre sur des multicouches (diffraction de rayons X) que le réseau du cobalt était dilaté pour des faibles valeurs de e_{Co} .

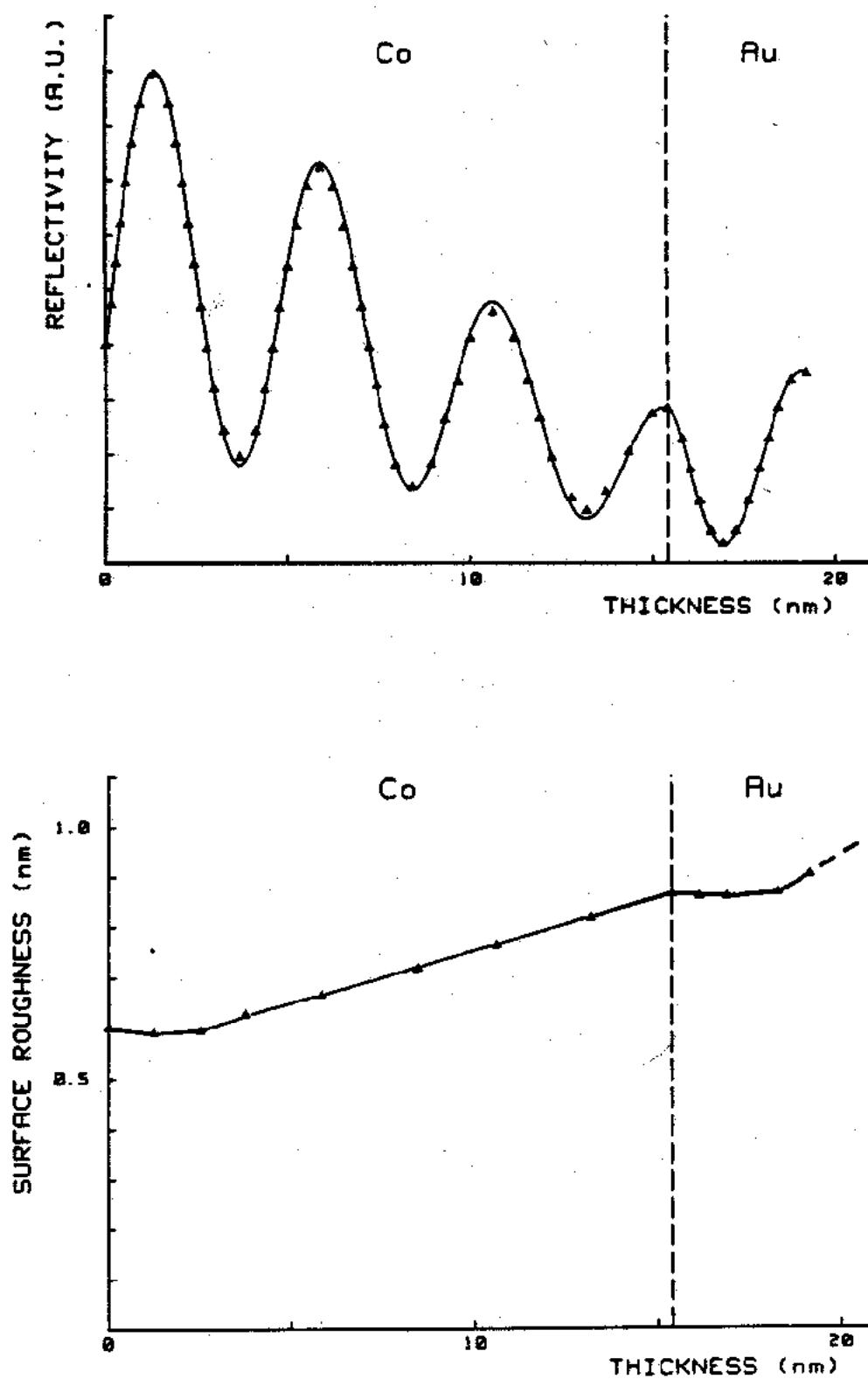


Figure 26 : Etude par RXM du système Au/Co.

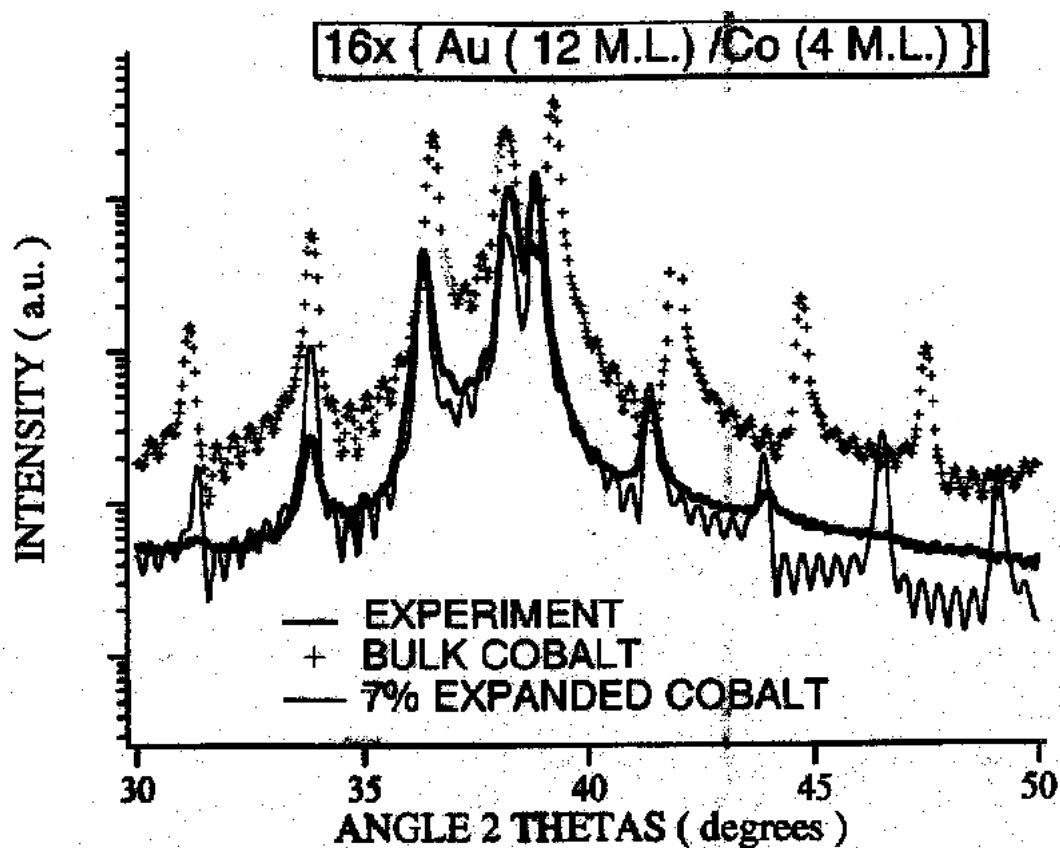


Figure 27A : Etude par DRXGA de multicouches Au/Co.

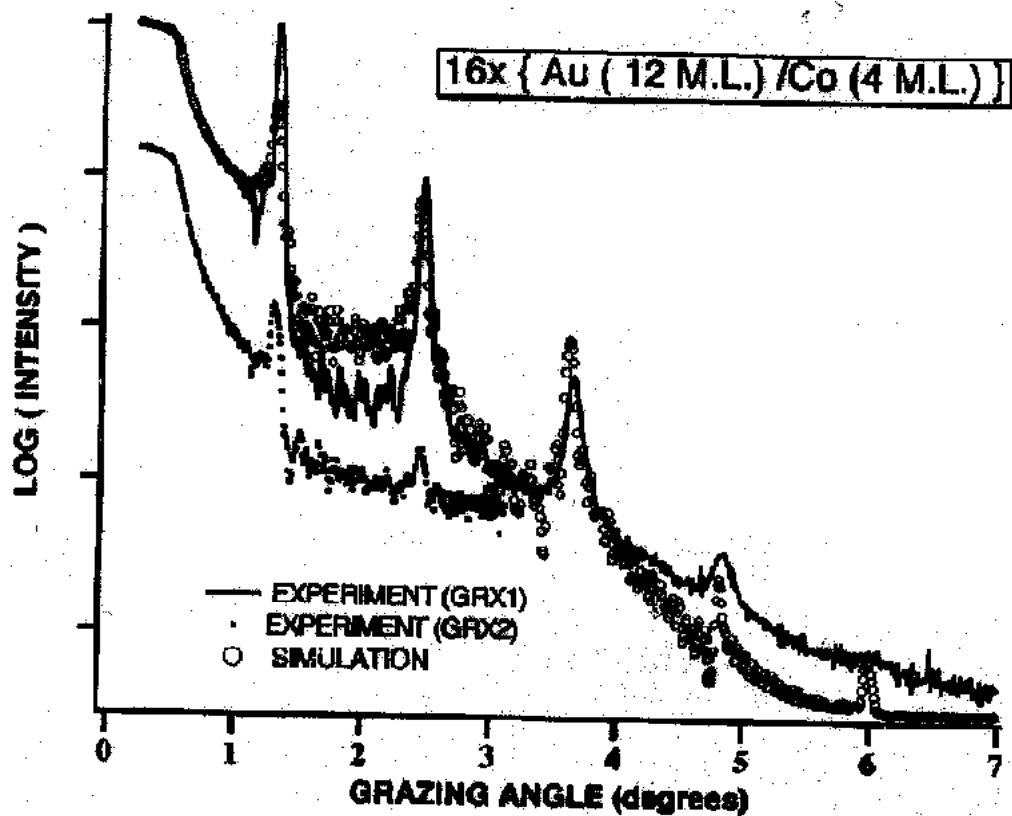


Figure 27B : Etude par DRXPA de multicouches Au/Co.

La MET a permis de retrouver la dilatation planaire du cobalt puis de montrer qu'elle était petite (environ 4% sur le paramètre de maille en surface pour $e_{Co} = 0,8$ nm) et isotrope. Ces deux méthodes ont établi que dans la direction de croissance le réseau était aussi dilaté (7% pour $e_{Co} = 0,8$ nm) conduisant ainsi, pour l'épaisseur de cobalt évoquée dans cet exemple, à une expansion en volume de 15%. La valeur de cette expansion perpendiculaire décroît quand l'épaisseur de cobalt augmente mais nos mesures tendent à montrer qu'elle est indépendante de l'épaisseur d'or intercalaire et qu'elle ne dépend pas de la position du plan atomique de cobalt à l'intérieur de la couche.

L'ensemble de ces résultats sur la dilatation perpendiculaire a été obtenu par deux méthodes indépendantes : L'une (MET) permet d'avoir accès directement aux valeurs des paramètres de maille sans l'utilisation de modèle mais le pointé des distances est moins précis. Les courbes de diffraction de rayons X à grands angles ont pu être interprétées par l'utilisation d'un modèle très simple : les interfaces Au/Co étaient supposées parfaitement lisses, les facteurs de diffusion atomiques étaient déduits de ceux des métaux massifs corrigés d'un facteur représentant la densité atomique dans le plan de l'échantillon ; les épaisseurs des matériaux ayant été choisies de telle sorte qu'elles correspondent à un nombre entier de plans atomiques. Les intensités calculées étaient corrigées de l'absorption, de la polarisation, de l'amortissement thermique et de la variation angulaire des facteurs de diffusion. Nous avons pu ainsi montrer qu'une simulation correcte de nos résultats ne pouvait se faire qu'en tenant compte d'une dilatation de la distance entre plans d'atomes de cobalt parallèles à la surface. Les valeurs ainsi déduites ont permis alors de simuler les courbes de diffraction à petits angles de manière très

satisfaisante avec l'hypothèse d'une rugosité de chacune des interfaces égale à celle du substrat (pour des épaisseurs des couches inférieures à quelques nanomètres) conformément à ce que nous avons déduit des mesures de RXM.

Il nous semble que l'introduction, dans les simulations, de paramètres supplémentaires comme, par exemple, ceux liés à l'utilisation d'interfaces étendues - avec des profils de composition linéaires dans lesquels les distances entre plans atomiques, les facteurs de diffusion atomiques etc... varient linéairement -, tout en supposant que le cobalt au coeur des couches ait ses paramètres de réseau du métal massif, ne permettrait pas de retrouver un aussi bon accord entre le calcul et l'expérience. En effet, récemment, Y. Huai et col.[58] ont montré que, sur des systèmes multicouches Co/Re, seule une dilatation du cobalt dans la direction perpendiculaire (le désaccord de maille entre le cobalt et le rhénium massifs est de 9,2%) permettait de simuler de manière satisfaisante les courbes expérimentales en dépit de l'introduction de paramètres supplémentaires par rapport à nos simulations comme l'interface à profil variable, la prise en compte de fluctuations d'épaisseur, etc... Pourtant ces hypothèses supplémentaires sont beaucoup plus justifiées dans le cas du système Co/Re qui forme des solutions solides continues tandis que, dans le cas du cobalt et de l'or, la miscibilité à température ambiante est très faible[59] et le temps caractéristique de diffusion[60] de l'un des matériaux dans l'autre est très élevé même à température relativement importante (9 ans à 400K).

La coexistence d'une dilatation dans le plan et perpendiculairement au plan de l'échantillon peut surprendre si on se réfère à la théorie classique des milieux élastiques. Cependant des calculs récents[61] basés sur la méthode

des atomes noyés ("embedded-atom-method") montrent qu'un film libre mince, à plans compacts parallèles au plan de la couche, présente des propriétés élastiques différentes de celles calculées à partir d'une tranche de métal massif : en particulier les dimensions caractéristiques à l'équilibre sont différentes; l'énergie élastique pour une même déformation imposée est réduite sensiblement par rapport au cas "harmonique" (d'un facteur deux pour une déformation de 25%). Il est ainsi possible de penser que des calculs plus complets permettront peut-être d'expliquer l'origine de cette dilatation importante de la maille cristalline du cobalt déposé sur de l'or (111).

Les mesures d'EXAFS[62] ont montré que, sur les multicouches Au/Co avec les épaisseurs de cobalt les plus faibles, une proportion significative d'atomes de cobalt (30%) est caractérisée par une distance entre plus proches voisins cobalt supérieure à celle du cobalt massif et ceci dans le plan et hors du plan des couches. Cependant la distance moyenne entre plus proches voisins est assez nettement plus petite que celle pouvant être déduite de nos mesures de RHEED, DRXGA ou MET. Ce désaccord pourrait s'expliquer par le fait que deux types de régions coexistent dans l'échantillon : l'une, au cobalt dilaté, serait bien cristallisée pour donner les spectres de DRXGA; l'autre (constituée des joints de grain ou de régions à forte densité de dislocations) aurait des paramètres de maille voisins de ceux du cobalt massif. L'EXAFS tend donc à montrer que cette dernière région est prédominante dans nos échantillons, contrairement aux résultats obtenus par des techniques de diffraction. Cependant les mesures magnétiques récentes (mise en évidence directe de couplages d'échange ferro ou antiferro-magnétique de deux couches de cobalt au travers de film d'or [63]) ne peuvent aisément s'expliquer que par l'hypothèse d'une densité de dislocations faible et peut-être même inférieure au résultat du modèle

élastique simple évoqué antérieurement. Compte tenu de ces considérations il semblerait donc que le rattrapage des pas de réseaux se ferait plutôt par des déformations "élastiques" dans la couche de cobalt et que l'estimation par l'EXAFS de la proportion de régions à cobalt dilaté par rapport à celles à cobalt non dilaté a été sous-évaluée

Ses propriétés magnétiques.

Les principales propriétés magnétiques découvertes sur ces échantillons sont les suivantes :

Anisotropie perpendiculaire.

Des mesures de constante d'anisotropie de nos échantillons Au/Co/Au ont pu être effectuées entr'autres par de la résonance ferromagnétique, et ont montré que la constante d'anisotropie K^{eff} variait suivant une loi linéaire de l'inverse de l'épaisseur, e , de la couche de cobalt [64]:

$$K^{\text{eff}} = K_1 + \frac{(2K_s)}{e}$$

avec $K_s \cong 0,6 \text{ erg.cm}^{-2}$ et $K_1 \cong 3,2 \text{ erg.cm}^{-3}$ à 10K.

La dépendance en $1/e$ est la signature d'un effet de surface et la grande valeur de K_s par rapport à d'autres systèmes déposés dans des conditions variées a été interprétée en faisant intervenir la notion d'anisotropie magnétoélastique liée aux contraintes subies par le film de cobalt que nous avons mises en évidence[36].

Corrélativement il a été montré sur nos échantillons Au/Co/Au que la direction de facile aimantation était perpendiculaire au plan de la couche

jusqu'à une épaisseur critique de la couche de cobalt très grande et égale à $e^* \cong 1,2 \text{ nm}$ pour devenir parallèle au-delà.

Champ coercitif.

Un effet intéressant sur le champ coercitif, H_c , de tels échantillons a été observé ([Fig.28](#)) : A basse température ($T = 10\text{K}$) et en aimantation perpendiculaire ($e < e^*$) H_c décroît rapidement comme approximativement $1/e^2$. Ceci a pu être interprété par P. Bruno et col.[36, 65] comme étant dû aux mouvements de parois de domaines dans un film mince présentant des fluctuations spatiales de tension de paroi. A température ambiante le champ coercitif perpendiculaire a une variation plus compliquée qui est représentée sur la [figure 28](#).

Rotation Faraday.

Pour la première fois une rotation Faraday spécifique, amplifiée comparativement au cobalt massif, a été observée[66] à température ambiante sur les échantillons Au/Co/Au à aimantation perpendiculaire : elle peut atteindre 10^6 degrés/cm ([Fig.29](#)). Cette mesure magnéto-optique par transmission de la lumière incidente polarisée rectilignement s'est avérée être beaucoup plus sensible que celle utilisant l'effet Kerr polaire (expérience en transmission avec l'aimantation perpendiculaire au plan du film). L'effet Faraday présente en outre l'avantage d'être moins dépendant de la nature des métaux de couverture de la couche de cobalt et de la qualité optique des interfaces que son équivalent en réflexion. Ces expériences ont confirmé l'existence d'un effet de traînage observé par G. Bayreuther et col. [67] consistant en une augmentation du champ coercitif quand la vitesse de balayage du cycle d'hystérésis croît.

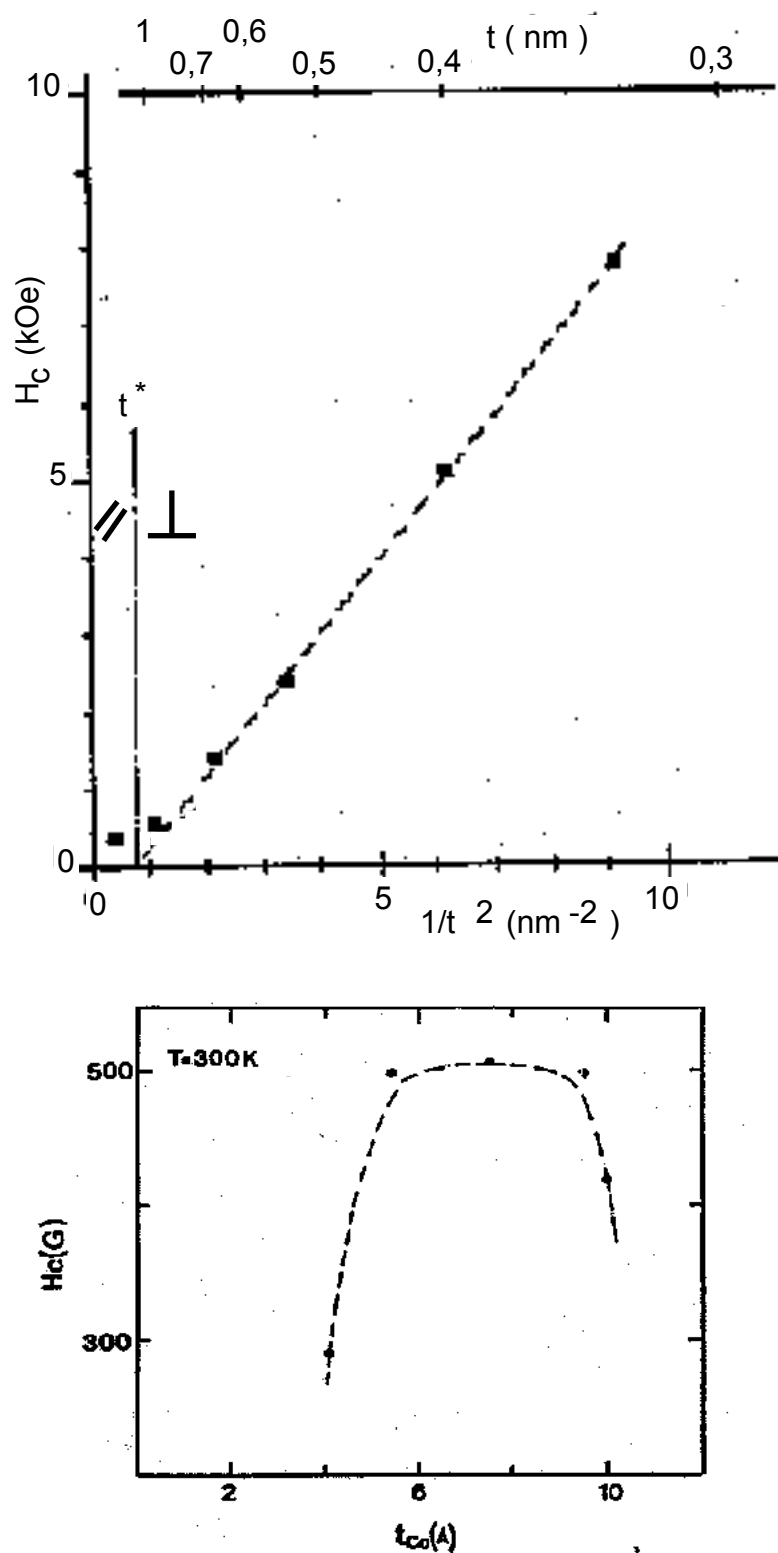


Figure 28 : Variation de H_c en fonction de l'épaisseur de la couche de cobalt dans un système Au/Co/Au; la courbe du haut (resp. bas) a été obtenue à 4,2K (resp. 300K). D'après [36, 65].

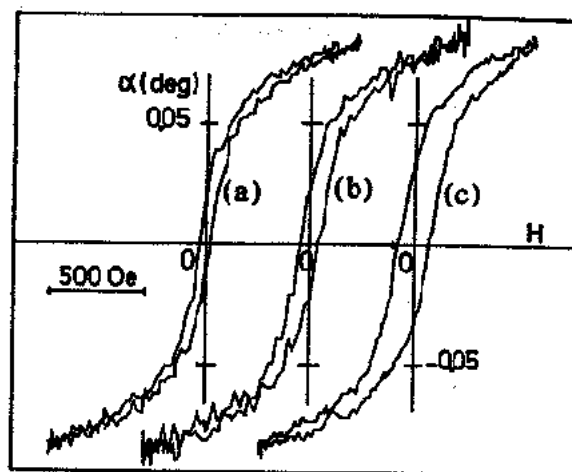
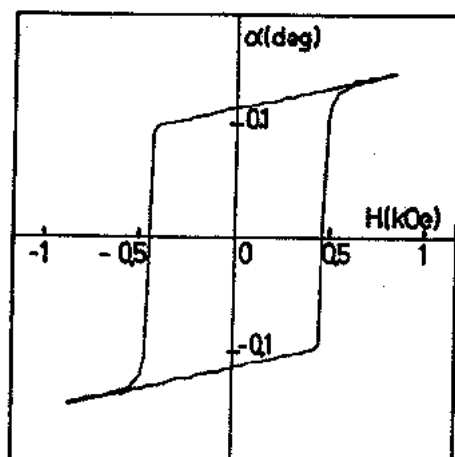


Figure 29 : - en haut : effet Faraday sur un sandwich Au/Co;
- en bas : mise en évidence d'un effet de trainage. La fréquence de parcours du cycle d'hystérésis vaut (a) 0,4 Hz, (b) 4 Hz, (c) 16 Hz.

Ce phénomène de traînage est lié essentiellement [68] à l'activation thermique du retournement de moments magnétiques en situation métastable (traînage de fluctuation thermique).

Plus récemment l'utilisation de la microscopie Faraday[69] a permis de visualiser la coexistence de domaines de taille micrométrique lors du processus de renversement de l'aimantation sous champ au voisinage du champ coercitif dans le même type d'échantillons Au/Co/Au et de suivre leur évolution temporelle. Ces observations ont permis ainsi de prouver la validité du modèle proposé par P. Bruno et col. [68], impliquant la coexistence de domaines magnétiques sous champ avec renversement de l'aimantation par déplacement de leur parois. Il a été possible d'établir, à partir de l'observation de l'évolution temporelle de la structure en domaines magnétiques, que deux mécanismes pouvaient survenir : la nucléation de domaine ou bien encore la propagation de parois. Des échantillons d'épaisseurs pourtant très voisines ont révélé un comportement soit à nucléation prédominante, soit à propagation de parois prédominante. Cela a été attribué, sans que le problème soit encore parfaitement élucidé, à de faibles différences de qualité des interfaces Au/Co ou à des textures différentes.

Magnétorésistance.

Une augmentation importante de la magnétorésistance[47, 48, 50] a pu être observée sur des systèmes, d'une part, de type bicouches de structure Au(25 nm)/Co(e_1)/Au(e_{Au})/Co(e_2)/Au(5 nm) pouvant être symétriques ($e_1 = e_2$) ou dissymétriques ($e_1 \neq e_2$) ou, d'autre part, de type monocouches Au(25 nm)/Co(e_1)/Au(5 nm). Pour les bicouches de cobalt

l'épaisseur d'or intercalaire était supérieure à 3 nm afin de s'affranchir des couplages entre films d'or.

Dans le cas de bicouches dissymétriques la courbe ([Fig.30](#)) donnant la variation relative de résistance électrique présente un plateau pour des valeurs de champs magnétiques comprises entre celles des champs coercitifs ($H_{c1} \neq H_{c2}$) associés à chacune des deux couches de cobalt d'épaisseurs différentes : Ceci a pu être interprété correctement par la théorie du transport électrique dépendant de la direction relative du spin des électrons de conduction et de la direction de l'aimantation (perpendiculaire pour les faibles épaisseurs de cobalt utilisées) puisque entre H_{c1} et H_{c2} les deux films de cobalt se comportent comme des monodomains avec des aimantations opposées, conduisant ainsi à un maximum de résistance électrique.

Dans le cas de bicouches symétriques ([Fig.31](#)) ou de monocouches de cobalt le maximum de RE se produit au voisinage du champ coercitif de l'échantillon en raison d'une structure de(s) la(es) couche(s) magnétique(s) en multidomains conférant à un électron de spin σ une probabilité 1/2 de rencontrer un domaine de spin majoritaire σ' antiparallèle à σ .

Si on définit $T^{\sigma\sigma'}$ comme la probabilité qu'a un électron de spin σ de traverser un film de cobalt de spin majoritaire σ' , les valeurs typiques de $T^{\uparrow\downarrow}$ et de $\alpha = \frac{1 - T^{\uparrow\downarrow}}{1 - T^{\uparrow\uparrow}}$ ont pu être déterminées pour l'ensemble des cas évoqués ci-dessus[50] :

$$0,6 < T^{\uparrow\uparrow} < 0,7 \quad \text{et} \quad \alpha \approx 2,5.$$

Les valeurs typiques de magnétorésistance obtenues sur ces échantillons sont de l'ordre de quelques pour cent à température ambiante et, par

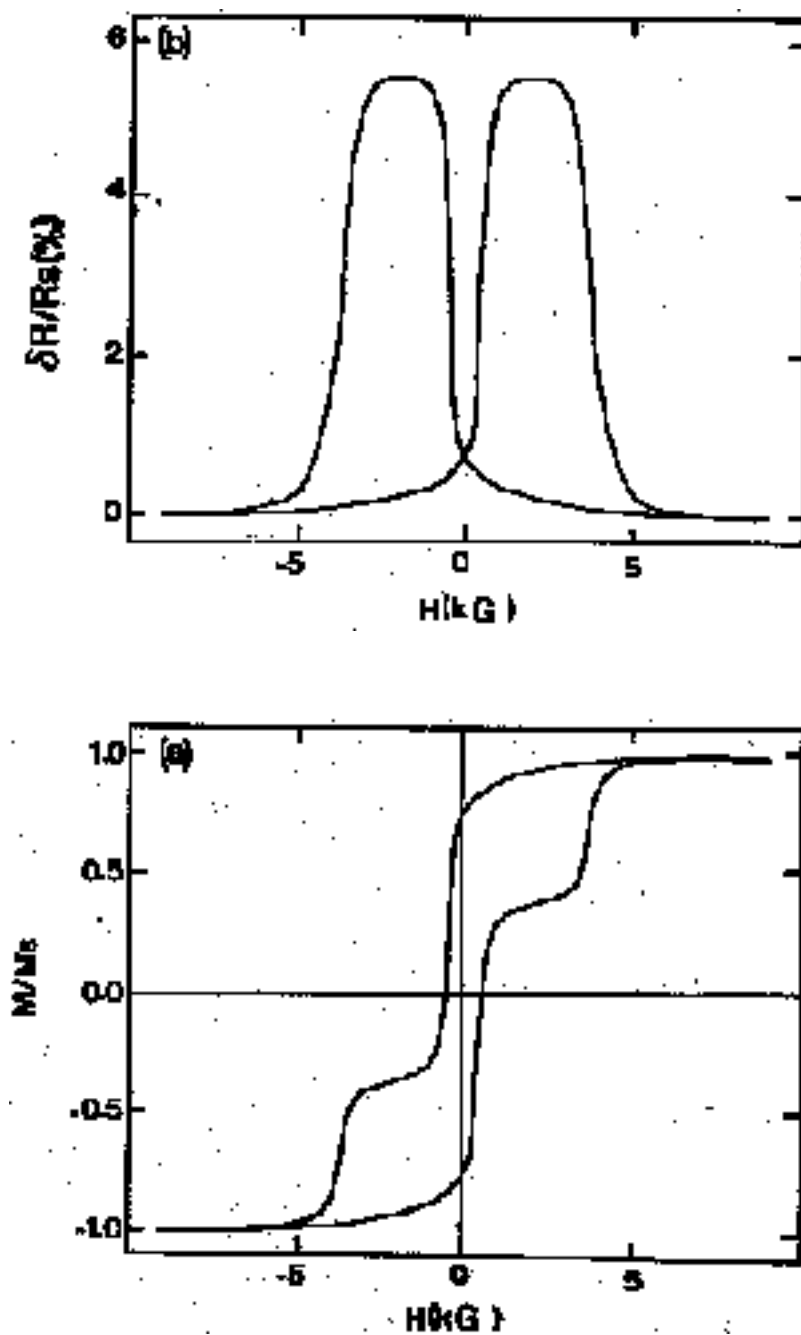


Figure 30 : Variation de MR et cycle d'hystérésis pour l'échantillon Au/Co(1nm)/Au(7nm)/Co(0,5nm)/Au. D'après [50].

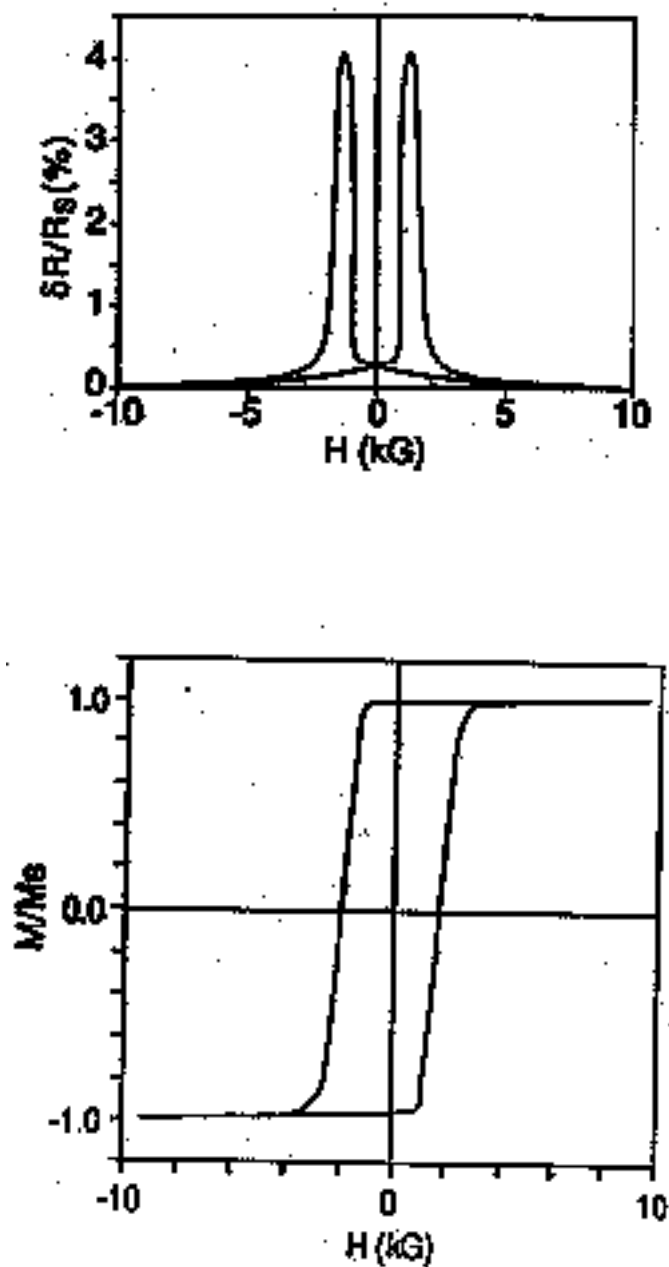


Figure 31 : Variation de MR et cycle d'hystérésis pour l'échantillon Au/Co(0,8nm)/Au(7nm)/Co(0,8nm)/Au. D'après [50].

conséquent, inférieures à celles obtenues sur d'autres systèmes et ceci en raison essentiellement du court-circuit pour les EC constitué par la couche d'or de base.

Tout récemment[63] a été mis en évidence un couplage d'échange oscillant entre couches de cobalt séparées par un intercalaire d'or (111) par des mesures de magnétorésistance : trois pics correspondant à un couplage antiferro ont pu être détectés pour des systèmes de bicouches symétriques à épaisseur variable d'intercalaire d'or. Une mesure directe de la valeur des couplages ferro ou antiferro magnétique a pu être faite en utilisant l'effet Kerr in situ sur des empilements $Au/Co(e_1)/Au(e_{Au})/Co(e_2)$.

Le système Cu/Co.

Le système Co/Cu a été très étudié ces derniers temps : un couplage antiferromagnétique entre couches de cobalt séparées par du cuivre avait pu être observé sur des multicouches Co/Cu d'orientation c.f.c. (100) [70] déposées par évaporation sous ultravide (UHV) sur substrat monocristallin de cuivre, sur des tricouches[41] Co/Cu/Co de structure proche de celle mentionnée précédemment et aussi sur des multicouches Co/Cu déposées par pulvérisation orientées préférentiellement (111)[39, 71]. Par contre d'autres expériences menées sur des multicouches Co/Cu(111) déposées par évaporation sous UHV n'avaient révélées aucune interaction antiferromagnétique[72]. Pour expliquer cette différence de comportement suivant les modes de préparation il avait été alors suggéré que, dans les multicouches obtenues par pulvérisation et d'orientation préférentielle (111), il existait des cristallites (100) qui à eux seuls conféraient à l'empilement ses propriétés antiferromagnétiques. Aussi une

étude[62, 73-75] des propriétés structurales et magnétiques d'empilement multicouches Cu/Co déposés sur notre substrat d'or de base a été menée.

Des études par diffraction de rayons X aux grands et petits angles ont permis de vérifier que les couches avaient une structure compacte (c.f.c. ou h.c.) avec les plans (111) parallèles au substrat de verre. La présence de pics de superstructure sur les diagrammes ([Fig.32](#)), en dépit d'un faible contraste d'indices, a permis de conclure que les interfaces étaient abruptes (rugosité équivalente à celle du substrat soit 0,4 nm). Ces mesures ont

permis également d'obtenir des indications sur la valeur moyenne des déformations dans la direction de croissance : pour les différentes multicouches à épaisseur constante et faible (0,6 nm) de cobalt une légère augmentation de la distance entre plans atomiques a été notée ; pour des épaisseurs plus grandes de cobalt il semble que la distance entre plans d'atomes de cobalt décroisse, quand l'épaisseur de cobalt augmente, ceci pouvant peut-être résulter du passage d'une structure de type c.f.c. à celle h.c. du métal massif. Ce comportement est compatible avec les résultats de RMN qui montrent la présence de faute d'empilements avec un environnement local de type h.c. pour les films les plus épais.

Afin de pouvoir obtenir des renseignements sur les déformations se produisant dans chacun des deux matériaux nous avons effectué en collaboration avec l'équipe de A. Fontaine des mesures de spectroscopie d'absorption (EXAFS) sur la ligne D41 du synchrotron DCI (1,85 GeV) du LURE. Les spectres d'EXAFS aux seuils K du cuivre et du cobalt ont été

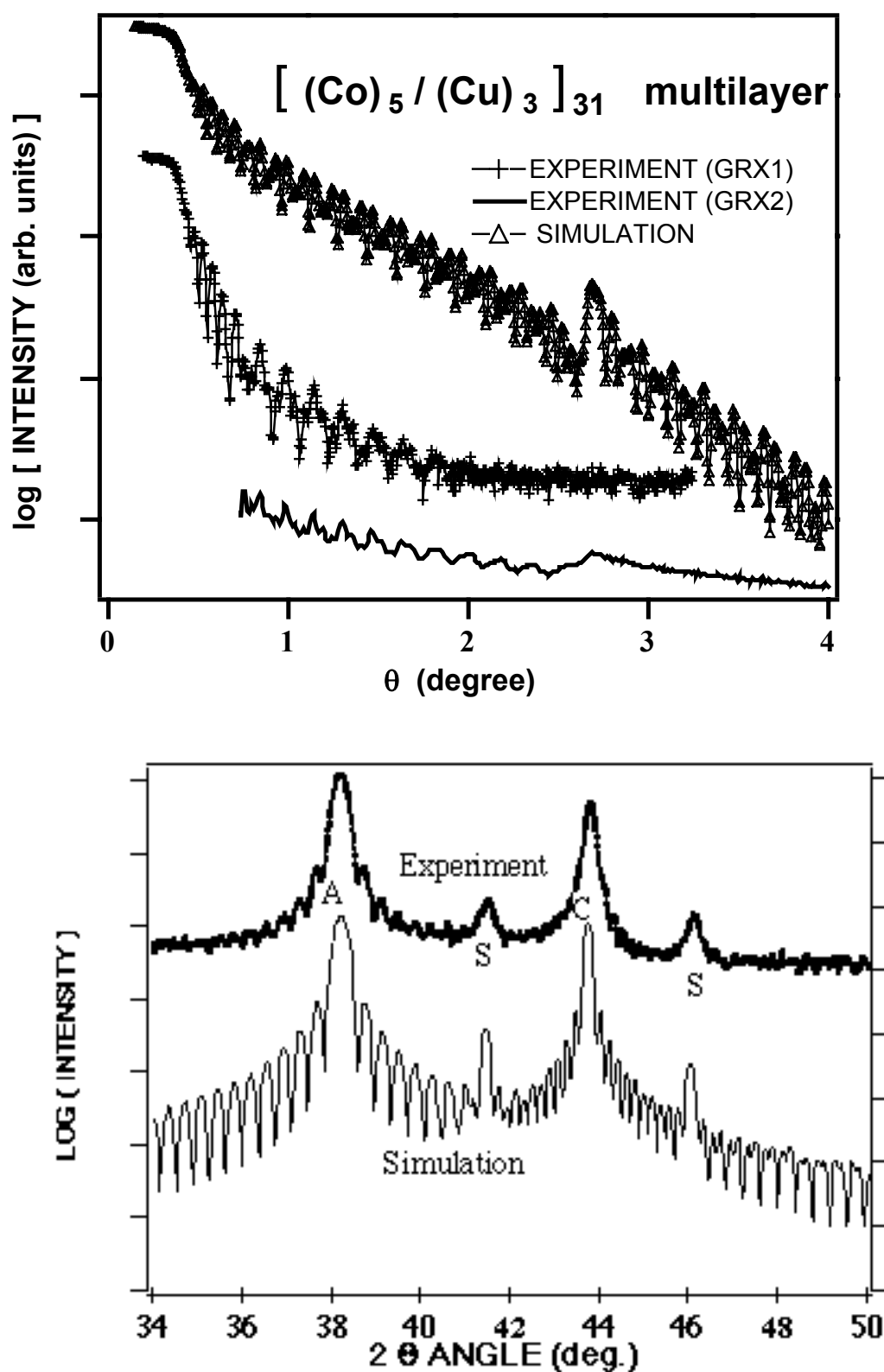


Figure 32 : Courbes de DRXPA (en haut) et DRXGA (en bas) pour des multicouches Co/Cu(111).

mesurés pour deux géométries, l'une avec la surface de l'échantillon parallèle, l'autre perpendiculaire à la direction de polarisation du faisceau de rayons X incident, afin de pouvoir tester la distance entre atomes de cobalt (ou de cuivre) plus proches voisins dans le plan ou perpendiculairement au plan des couches. Ces mesures ont montré que ([Fig.33](#)) :

- i) les couches de cuivre avaient une structure c.f.c.. très ordonnée tandis que le film de cobalt, principalement c.f.c. avec quelques fautes d'empilement, étaient localement plus désordonné que celui de cuivre.
- ii) dans le plan des films, le réseau de cobalt (respectivement cuivre) était légèrement dilaté (resp. contracté). Dans la direction de croissance les modifications des pas de réseaux ont été indécélables par EXAFS.

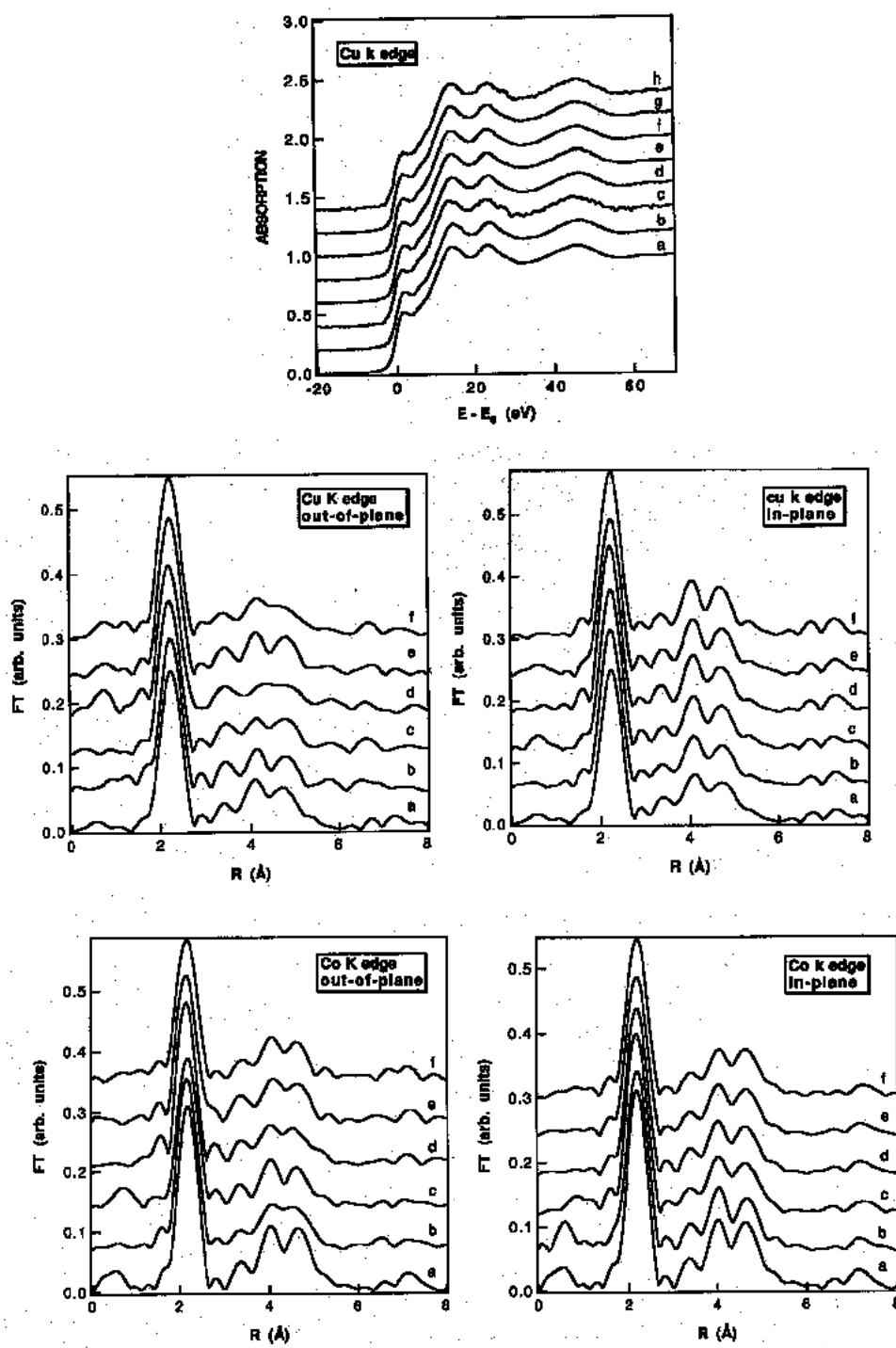


Figure 33 : Spectre EXAFS et transformées de Fourier aux seuils K du Cu et Co de multicouches Cu/Co.

Des informations complémentaires sur la structure des multicouches Co/Cu(111) évaporées sous ultravide ont été apportées par les expériences de RMN effectuées à la température de l'hélium liquide à l'aide d'un appareil à écho de spin fonctionnant à fréquence variable[76]. Il est possible en étudiant l'absorption résonante d'un champ magnétique radio-fréquence de connaître la symétrie de l'environnement de l'atome étudié : dans notre cas particulier il s'agit du ^{59}Co . Le pic principal (à 214 MHz) provient de la phase c.f.c. du cobalt légèrement dilaté (0,5%) dans le plan par rapport au cobalt massif, résultat[77] en bon accord avec les résultats d'EXAFS. La présence d'un pic à 170 MHz bien résolu et provenant d'atomes de cobalt interfaciaux à trois plus proches voisins de cuivre est caractéristique d'interfaces abruptes même pour les échantillons les plus minces en épaisseur (3 monocouches atomiques de cobalt).

Ces échantillons avec des épaisseurs individuelles des couches de cobalt de 3 à 10 monocouches atomiques ont révélé une grande magnéto-résistance et un champ de saturation important. Ceci a pu être interprété par l'existence d'un couplage d'origine antiferro-magnétique au travers des couches de cuivre. Il a été ainsi possible de vérifier que, contrairement aux résultats de Egelhof and Kief[72], et conformément à ceux de plusieurs autres groupes, des couplages antiferromagnétiques pouvaient être observés sur des échantillons Co/Cu ayant crûs par évaporation sous ultravide dans l'orientation (111).

Conclusion de la deuxième partie.

Des empilements alternés de couches minces de métaux nobles et de métaux magnétiques de transition ont été élaborés au laboratoire par

évaporation sous ultravide dans des conditions que nous n'avons cessé d'améliorer. Les structures ainsi obtenues ont été soigneusement étudiées et caractérisées au moyen de diverses techniques d'analyse des surfaces et interfaces que nous avons, pour certaines d'entr'elles, développées au laboratoire, ou, pour les autres, utilisées grâce à des collaborations menées avec différents laboratoires extérieurs. L'ensemble de ces dispositifs nous ont permis de mettre en évidence des modifications de structure des échantillons en couches minces par rapport à celles des métaux massifs et de réaliser des échantillons de haute qualité ayant permis la découverte de propriétés magnétiques originales et intéressantes.

Troisième partie : les recherches en
cours.

Nous avons poursuivi nos travaux sur les échantillons en couches minces à base de métaux de transition magnétiques et de métaux nobles dans deux voies différentes : l'une sur l'étude du dichroïsme circulaire magnétique dans les multicouches magnétiques par spectroscopie d'émission X et l'autre sur la transmission d'électrons de faible énergie résolue en spin à travers des films minces magnétiques.

Etude du dichroïsme circulaire magnétique dans les multicouches magnétiques par spectroscopie d'émission X.

En utilisant des expériences de spectroscopie d'*émission* X (XES) il est possible, conformément à la prédiction théorique récente faite par Strange, Durham et Gyorffy[78], de sonder l'état de spin des états *occupés* d'éléments ferromagnétiques en jouant sur la direction relative de la polarisation circulaire du rayonnement synchrotron utilisé et de la direction d'aimantation de l'échantillon ; la première démonstration expérimentale[79] en a été faite par Hague, Marriot et col. L'application de cette méthode XES est très prometteuse pour l'étude des multicouches magnétiques car elle permet de sonder les états de valence des constituants séparément et donc de connaître les propriétés magnétiques de chacune des deux couches. Aussi, et depuis près d'un an, a vu le jour une collaboration avec C.F. Hague et J.M. Marriot du Laboratoire de Chimie Physique - Matière et Rayonnement à Paris afin d'étudier les couches minces magnétiques que nous fabriquons au laboratoire.

Ces expériences, très déduisantes sur le papier, sont très difficiles car les intensités observées sont de plusieurs ordres de grandeur inférieures à celles mesurées pour les expériences plus "classiques" de dichroïsme circulaire magnétique par spectroscopie d'absorption X (qui permet de sonder l'état de spin des états *inoccupés*). C'est pourquoi il a été utile, dans un premier temps, de mener une collaboration avec l'Université d'Uppsala (Suède) pour pouvoir utiliser les instruments les plus performants existant actuellement pour les études XES avec rayonnement synchrotron.

Dans le cadre de cette étude nous avons été amenés à travailler aussi bien sur les problèmes de croissance et de caractérisation des échantillons que sur le déroulement de l'expérience utilisant le rayonnement synchrotron. Nous avons d'abord travaillé en automne 92 au synchrotron de Lund, Suède, sur le montage mis au point par l'équipe du Professeur Nordgren de l'Institut de Physique d'Uppsala. Ces expériences[80] ont permis de retrouver les premiers résultats obtenus sur le fer, à savoir la mise en évidence d'un signal dichroïque sur la bande d'émission $L_{2,3}$ du fer massif ([Fig.34](#)). En raison d'impondérables expérimentaux les multicouches Cu/Co ou bien Au/Co n'ont pu encore être étudiées mais le seront vraisemblablement prochainement sur le montage utilisant un nouveau détecteur à localisation (du type de celui utilisé par l'équipe du Professeur Nordgren) qui est en cours de montage sur le synchrotron SUPERACO de LURE.

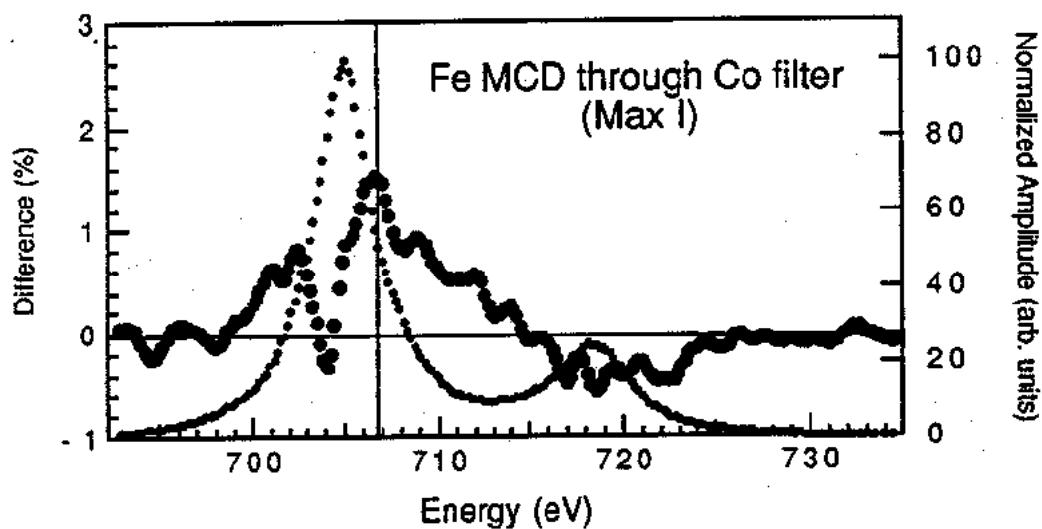


Figure 34 : Spectre de fluorescence X au seuil L_{2,3} du fer et dichroïsme magnétique circulaire.

Transmission d'électrons de faible énergie résolue en spin à travers des films minces magnétiques.

Nous avons vu, dans la deuxième partie de ce mémoire, que les expériences de magnétorésistance géante pouvaient s'interpréter simplement en supposant que les coefficients de transmission et de réflexion des électrons de conduction aux interfaces dépendent de l'orientation relative de leur spin avec l'aimantation de la couche mince. L'idée simple qui venait naturellement était de se demander s'il n'était pas possible de monter une expérience de mesure directe de ces coefficients en utilisant les éléments suivants :

- i) une source d'électrons polarisés en spin et d'énergie aussi faible que possible pour pouvoir se rapprocher du cas des électrons de conduction;
- ii) un échantillon de structure très proche de ceux utilisés dans les expériences de la partie deux de ce mémoire mais séparé de son substrat trop épais pour pouvoir être traversé par les électrons;
- iii) un système d'analyse en énergie des électrons au travers de l'échantillon afin de pouvoir étudier finement les désexcitations survenant aux électrons lors de la traversée des couches minces.

Le but de ces travaux est aussi de pouvoir déterminer directement le lpm des électrons (élastique, inélastique) de très faible énergie (E) à travers la matière afin d'étudier la partie basse énergie de la courbe "universelle" $lpm = f(E)$.

Pour pouvoir mener à bien cet objectif ambitieux, une collaboration très étroite a été menée avec l'équipe dirigée par G. Lampel du Laboratoire de la Physique de la Matière Condensée de l'Ecole Polytechnique à Palaiseau.

Notre travail a revêtu deux aspects :

- i) l'obtention de films minces décollés de leur substrat et de qualité proches de ceux réalisés antérieurement;
- ii) la participation au montage de l'optique électronique de transport et d'analyse avec mes collègues H.J. Drouhin, G. Lampel et Y. Lassailly de l'Ecole Polytechnique.

Réalisation des échantillons

Pour pouvoir réaliser des films minces autosupportés (dans un premier temps d'or et de cobalt) de très grandes qualités cristallographiques et géométriques, je me suis inspiré d'une méthode classique qui permet de déposer les films minces sur un substrat massif et de les décoller par la suite pour les tendre sur un trou de diamètre typique de 3 mm percé dans une plaquette de molybdène poli : sur un substrat de verre est déposée, par évaporation sous ultravide, une couche mince de NaCl sur laquelle a lieu ensuite les différents autres dépôts métalliques, typiquement une couche de base d'or de 20 nm, puis une épaisseur variable de cobalt (quelques fractions de nanomètre) et, pour finir une épaisseur de 1 à 2 nm d'or afin d'éviter l'oxydation du cobalt intercalaire lors du changement de substrat. Le sandwich Au/Co/Au est ensuite sorti de l'enceinte ultravide puis récupéré sur le trou en plongeant délicatement le substrat dans de l'eau

désionisée : le chlorure de sodium se dissout alors et le sandwich d'or et de cobalt flotte sur la surface libre de l'eau puis est ensuite tendu sur le trou à la manière d'une peau de tambour. Notre premier travail a d'abord été de trouver les conditions de vitesse de dépôt, de température de substrat et d'épaisseur de NaCl déposée pour pouvoir obtenir un film d'or de haute qualité. Pour des épaisseurs faibles (quelques nanomètres) de NaCl, après recuit de la couche d'or, nous obtenons des diagrammes RHEED constitués de fins bâtons associés à la diffraction du faisceau d'électrons par les rangées d'atomes de la surface libre très lisse de l'or. Les simulations des courbes obtenues par DRXPA, des mesures de DRXGA, des expériences de microscopie à force atomique ont confirmé le caractère lisse de la surface libre de l'or et une texture (111) excellente.

L'apparition éventuelle d'une dégradation irréversible de la couche de cobalt lors du trempage dans l'eau a été recherchée. Pour cela nous avons effectué, en collaboration avec J. Ferré du laboratoire de Physique des Solides d'Orsay, des mesures de magnéto-optique en transmission sur les échantillons avant décollement et après trempage dans l'eau puis refixation du film sur son substrat de verre. Aucune modification dans la forme ni dans les valeurs d'angle de rotation Faraday ou de champ coercitif entre ces deux mesures avant et après trempage dans l'eau n'a été détectable. Ce résultat intéressant est dû vraisemblablement au fait que l'échantillon décollé flotte à la surface de l'eau sans que celle-ci ne mouille le dessus de la tricouche Au/Co/Au.

Il a été ensuite possible d'étudier le cycle d'hystérésis par effet Kerr des mêmes films minces d'or et de cobalt (1 nm d'épaisseur) cette fois-ci tendus sur le trou de 3 mm à l'atmosphère ambiante : malgré la grande sensibilité

aux vibrations un cycle d'hystérésis identique à celui obtenu sur la couche non décollée a été obtenu.

Nous avons ensuite voulu savoir si ce procédé de préparation de nos échantillons ne créait pas en surface une couche épaisse d'impuretés (carbonées ou autres) définitivement accrochée sur les surfaces libres : Il aurait été alors vain d'entreprendre les mesures de transmission des électrons à faible énergie dans de bonnes conditions. C'est pourquoi des mesures de spectroscopie Auger sur les échantillons tendus sur les trous ont été entreprises. Peu après la mise sous vide de la couche mince dans l'enceinte ultravide (Pression de l'ordre de 10^{-9} Torr) nous avons pu constater la présence de pics "parasites" de carbone et d'oxygène : le premier est dû au phénomène classique de physi-sorption d'impuretés carbonées sur le substrat d'or et le deuxième est lié à la présence vraisemblable de molécules d'eau sur la surface. Celles-ci se sont révélées être peu solidement fixées puisque elles se sont désorbées sans aucune autre intervention au bout d'une durée d'une heure environ sous ultravide. Un chauffage de l'échantillon à une température de 150°C a permis une élimination presque complète du pic de carbone. Néanmoins un chauffage à une température plus élevée de notre substrat provoque la rupture de la peau de tambour lors du refroidissement.

Des premiers essais de césiation ont aussi eu lieu, ayant permis de mettre en évidence l'apparition des pics Auger du césium associée à la photoémission d'un courant électronique sous la lumière rouge du laser He-Ne consécutive à la diminution du travail de sortie du système.

Le dispositif de transmission d'électrons.

Parallèlement a été installé le montage de transmission d'électrons polarisés en spin dans l'enceinte ultravide de l'Ecole Polytechnique après qu'une première ébauche de l'expérience ait été testée à l'IOTA sur le montage qui nous avait permis d'étudier les effets de taille quantiques sur le système Au/In (cf. première partie de ce mémoire) : la source d'électrons ne présentait alors aucune polarisation de spin. Ce premier montage nous avait permis de montrer qu'une discrimination en énergie des électrons transmis pourrait être d'un grand intérêt pour l'étude du problème posé et de préciser les caractéristiques importantes à retenir pour le dispositif expérimental définitif ([Fig.35](#)).

Sur le bâti ultra-vide de l'Ecole Polytechnique, les électrons sont obtenus par photoémission d'un cristal d'AsGa éclairé par une diode laser infrarouge puis focalisés par une optique de grandissement unitaire sur le film mince autosupporté. Les énergies de travail utilisées sont faibles ($< 20\text{eV}$) et la résolution en énergie de ce système est de l'ordre de 20 meV [81]. La polarisation des électrons est obtenue en modifiant celle (circulaire droite ou gauche) de la lumière incidente : la direction de polarisation est parallèle à celle de propagation des électrons. L'énergie des électrons transmis est analysée par une optique à grilles retardatrices. Les optiques électroniques de transport et d'analyse sont fixes. Sur un carrousel mobile sont disposés les différents montages qui supportent soit la tricouche Au/Co/Au étudiée et qui peut être refroidie à 77 K , soit un échantillon d'or de référence, ou bien encore une grille fine d'or servant aux calibrations de l'électronique : les surfaces de ces différentes couches ou grilles sont perpendiculaires au faisceau d'électrons. Le carrousel permet d'amener successivement les différentes couches minces :

- i) devant un dispositif de chauffage des lames minces destiné à désorber les impuretés adsorbées;
- ii) entre deux évaporateurs de césium placés devant chacune des deux faces de l'échantillon afin d'abaisser le travail de sortie ($W_s(\text{Au}) \pm 5 \text{ eV}$) pour

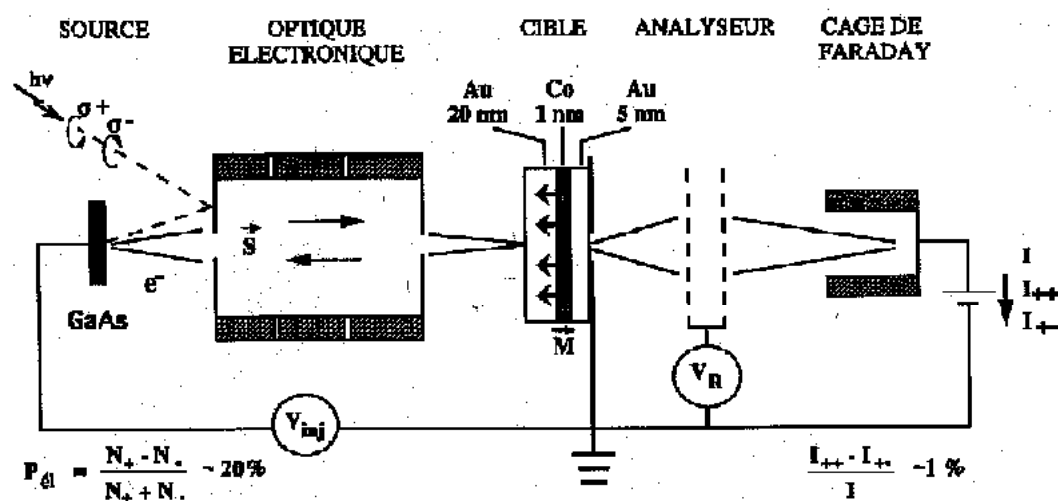


Figure 35: Schéma de l'expérience de transmission d'électrons à spins polarisés.

que les électrons incidents puissent avoir une énergie aussi proche que possible de celle du niveau de Fermi de l'échantillon;

iii) un système permettant d'aimanter l'échantillon loin de l'optique électronique.

Les échantillons magnétiques utilisés sont aimantés perpendiculairement à leur plan : pour cela nous utilisons les sandwichs d'or et de cobalt dont l'épaisseur est inférieure à la valeur critique au delà de laquelle l'axe de facile aimantation est parallèle au plan de l'échantillon. Comme le cycle d'hystérésis est très carré, l'aimantation rémanente est très proche de celle à saturation ce qui nous permet de travailler dans la zone centrale de l'optique électronique sans champ magnétique extérieur avec une aimantation de la couche de cobalt importante.

Des expériences préliminaires de calibration de transmission d'électrons non polarisés ont été faites sur une feuille d'or de 20 nm d'épaisseur. Dans la distribution en énergie des électrons transmis ([Fig.36](#)), entre le pic des électrons élastiques et la structure large des électrons secondaires, on retrouve des structures déjà observées par spectroscopie de perte d'énergie.

Très récemment nous venons d'enregistrer, pour des énergies incidentes très faibles, un courant transmis qui, pour une fraction de quelques pourcent, dépend de la polarisation des électrons incidents ainsi qu'il était attendu ([Fig.37](#)).

Le développement ultérieur de l'expérience de transmission d'électrons consistera à ne fabriquer dans une première cloche ultravide que la couche de base d'or (20 nm en épaisseur) puis d'effectuer les autres dépôts de cobalt ou d'or dans la cloche ultravide où est mesuré le courant transmis.

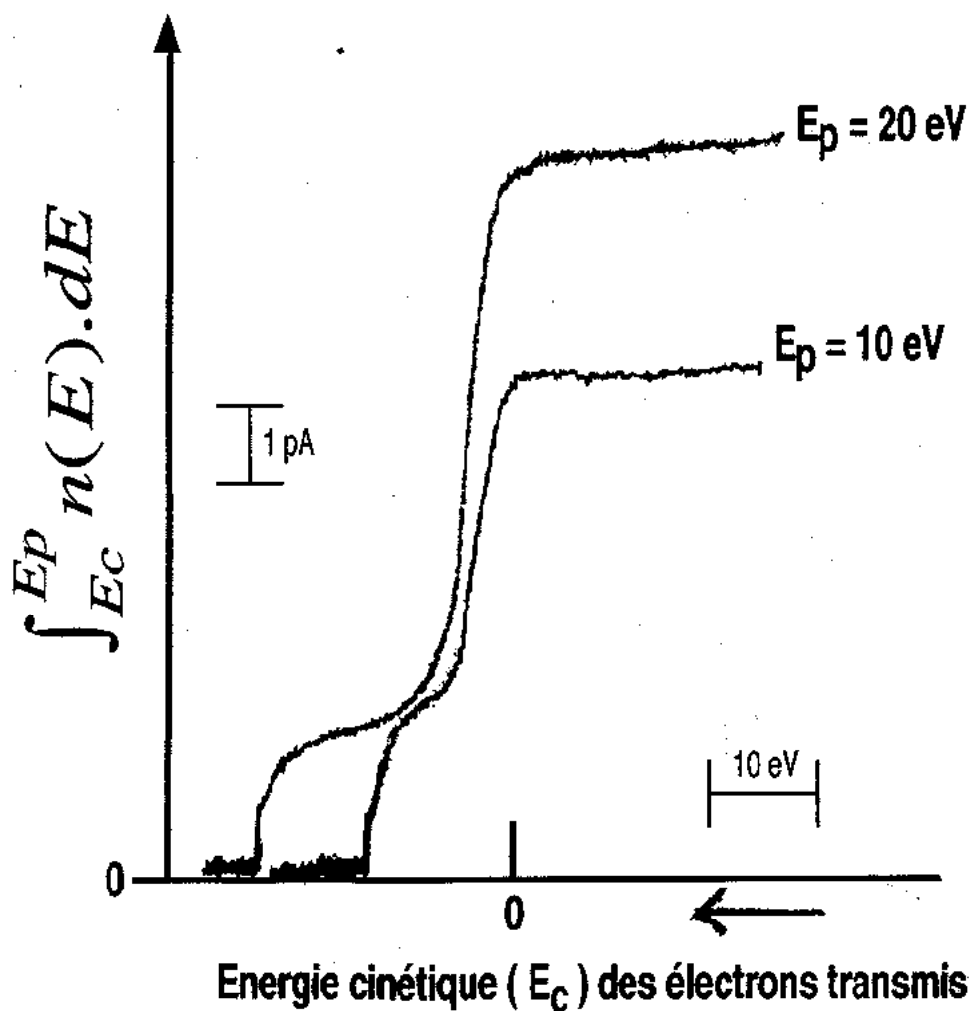


Figure 36 : Distribution en énergie des électrons transmis au travers d'une couche d'or de 20nm d'épaisseur.

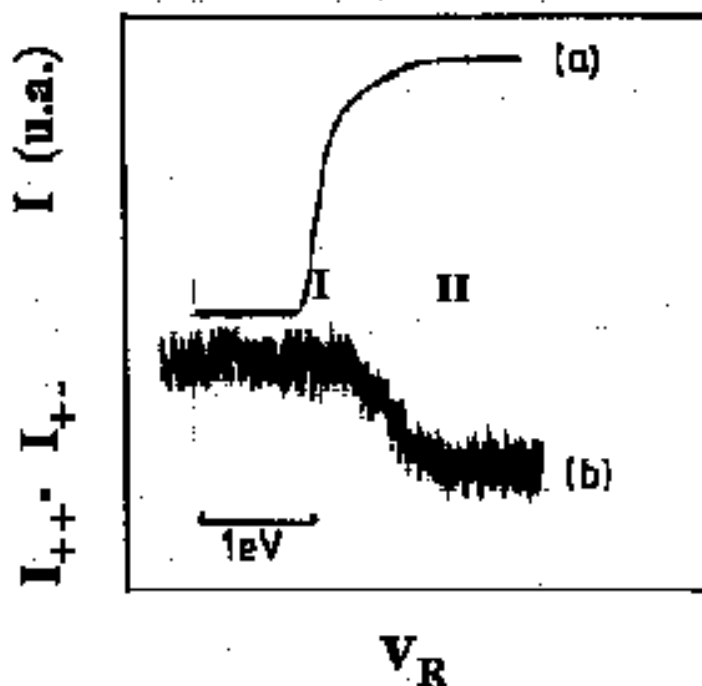


Figure 37A : Courant électronique total en fonction du potentiel retardateur V_R pour une énergie incidente d'injection V_{inj} de 1eV
 a) pour un faisceau d'électrons incidents non polarisés;
 b) en modulant leur polarisation de spin.

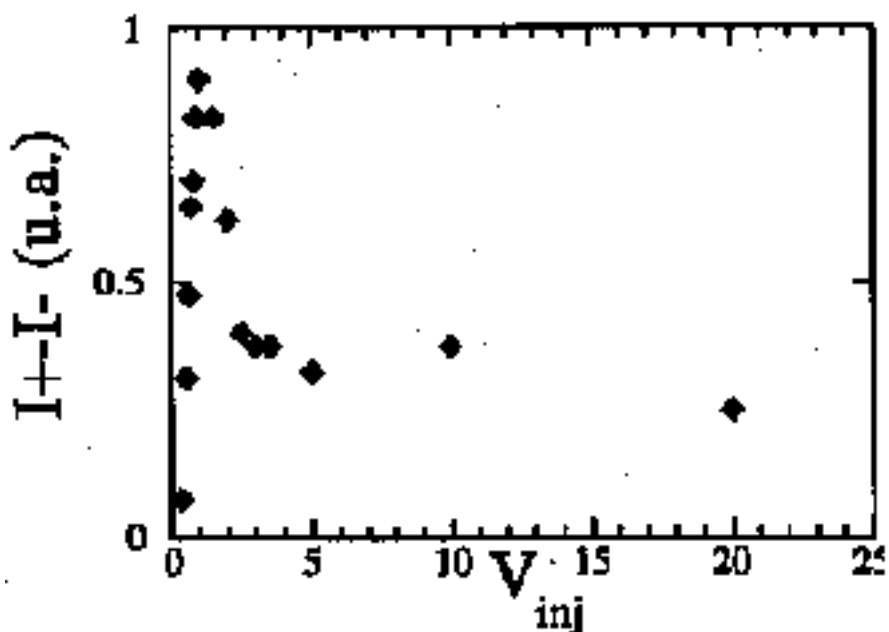


Figure 37B : Variation de la transmission différentielle $I^{\uparrow\uparrow} - I^{\uparrow\downarrow}$

Ceci permettra d'avoir une plus grande souplesse dans le choix des épaisseurs des couches magnétiques et de rendre caduque l'utilisation de la couverture d'or permettant ainsi d'obtenir des courants transmis plus intenses. Ces dépôts in-situ pourront être effectués dans de bonnes conditions puisque nous avons pu déterminer les conditions d'obtention du film autosupporté d'or pratiquement exempts de toutes traces d'impuretés. Nous prévoyons de suivre la croissance in-situ du cobalt sur des films autosupportés d'or par des mesures d'effet Kerr ou Faraday .

Conclusion générale.



Les travaux, qui sont décrits dans ce mémoire, ont porté sur l'étude de couches minces déposées sur des échantillons amorphes (lames de "floatglass") recouverts d'une couche-tampon d'or, de quelques dizaines de nanomètres d'épaisseur, préalablement recuite. Nous disposions alors d'un substrat polycristallin texturé (111) de très haute qualité sur lequel deux types d'études ont été développées.

Dans un premier temps, nous nous sommes intéressés à la croissance de l'indium, à basse température et sous ultra-vide, sur ce substrat, essentiellement par des méthodes non destructives et opérant pendant les dépôts, telles que la mesure de la résistance électrique, du travail de sortie ou encore la diffraction d'électrons rapides rasants.

Ces méthodes ont permis de mettre en évidence la croissance par plans atomiques successifs de l'indium sur l'or (hétéroépitaxie) à basse température. Nous avons pu étudier de manière détaillée un phénomène d'effet de taille quantique, lié à la quantification de la composante transverse du vecteur d'onde des électrons utilisés, aussi bien sur les mesures de résistance électrique, de travail de sortie que sur celles de diffraction d'électrons rapides rasants.

Par des mesures de conductivité électrique, une analyse soignée des modifications survenant, dans les bicouches or/indium, pendant les recuits a pu être menée. Suivant les valeurs des surépaisseurs d'indium déposées sur le substrat d'or à la température de l'azote liquide, nos expériences ont révélé l'apparition d'aucune, d'une ou encore de deux évolutions irréversibles que nous avons pu localiser à l'interface Au/In et dont les répercussions sur les effets quantiques ont été systématiquement étudiées. Nous avons pu suivre les températures d'apparition de ces changements de structure de l'empilement, suivant l'épaisseur de la couche d'indium.

Pour expliquer la grande valeur de la période des oscillations de taille quantique observée, nous avons monté une expérience d'absorption d'électrons de faible énergie par les bicouches, afin de vérifier le modèle physique simple que nous avons proposé, à savoir un effet de vernier entre le phénomène quantique proprement dit et la croissance de type Frank-van der Merwe de l'indium sur l'or (111). Nous avons pu mettre en évidence, pour une certaine gamme d'énergie des électrons incidents, des oscillations du courant absorbé en fonction de l'épaisseur du dépôt dont la période variait avec l'énergie, confirmant ainsi notre hypothèse de départ.

Nos travaux se sont ensuite poursuivis par l'étude de multicouches de métaux nobles et de métaux magnétiques de transition déposées sur notre substrat d'or (111). Nous avons été amenés à étudier successivement les conditions de croissance ainsi que les structures cristallographiques et géométriques de différents systèmes, comme ceux à base de Au/Fe ou Au/Co ou Cu/Co, par des méthodes in-situ de RHEED ou de réflectométrie de rayons X mous. Ces études ont été poursuivies, en dehors de l'enceinte de dépôt, par des expériences de diffraction de rayons X, de microscopie électronique en transmission et d'EXAFS en collaboration avec plusieurs laboratoires extérieurs. Ces échantillons ont dévoilé des propriétés magnétiques nouvelles et fort intéressantes qui ont été étudiées par les équipes du campus d'Orsay avec lesquelles nous avons collaboré étroitement.

En particulier nous avons pu mettre en évidence que, dans le cas du dépôt alterné de cobalt et d'or, les rugosités des surfaces étaient pratiquement constantes et égales à celle du substrat tant que les épaisseurs des couches ne dépassaient pas 3 nm. Nous avons alors pu réaliser des multicouches à grand nombre de périodes et d'excellente qualité.

Une dilatation de la distance entre rangées d'atomes de la surface libre de la couche de cobalt, à faible épaisseur, a été observée par RHEED : celle-ci relaxe et disparaît quand l'épaisseur de la couche de cobalt est supérieure à 2 nm. Cette dilatation planaire du cobalt ainsi qu'une expansion du réseau dans la direction perpendiculaire ont pu être observées sur des couches de cobalt recouvertes d'or par des méthodes de diffraction ex-situ.

Dans le cas du système Cu/Co une étude fine de la structure de multicouches a été réalisée. La haute qualité de ces échantillons a permis de déceler un couplage antiferromagnétique sur ce système déposé par évaporation sous vide et d'orientation (111).

L'ensemble de ces échantillons ont révélé des propriétés magnétiques originales telles que une anisotropie magnétique perpendiculaire à haute épaisseur critique (Co/Au) , une grande magnéto-résistance, des effets magnéto-optiques etc... La connaissance détaillée des structures de ces empilements a permis d'affiner certains modèles des propriétés magnétiques.

Puis nous avons présenté les recherches actuellement en cours - et les premiers résultats - portant sur l'étude du système Co/Cu par dichroïsme circulaire magnétique en fluorescence de rayons X ou bien encore sur la transmission d'électrons de faible énergie et polarisés en spin au travers de couches minces de cobalt et d'or. Nous pensons que notre bonne maîtrise des conditions de croissance et un contrôle précis des structures de ces couches seront une aide importante dans l'avancement rapide de ces recherches.

-=-=-=-=-

Bibliographie.

- [1] C. Pariset and J. P. Chauvineau, *Surf. Sci.* **78** (1978) 478-500.
- [2] J. P. Chauvineau and C. Pariset, *J. de Physique* **37** (1976) 1325-1329.
- [3] A. Matthiessen, *Rep. Brit. Ass.* **32**, **286** (1862) 286, 337.
- [4] C. Marlière, *Thèse*, Université Paris XI (1985).
- [5] E. H. Sondheimer, *Adv. in Phys.* **1** (1952) 1.
- [6] K. Fuchs, *Proc. Cambr. Philos. Soc.* **34** (1938) 100.
- [7] M. S. P. Lucas, *Appl. Phys. Lett.* **4** (1964) 73.
- [8] A. F. Mayadas, M. Shatzkes and J. F. Janak, *Appl. Phys. Lett.* **14** (1969) 345.
- [9] Z. Tesanovic, M. V. Jaric and S. Maekawa, *Phys. Rev. Lett.* **57** (1986) 2760.
- [10] J. P. Chauvineau and C. Marlière, *Thin Solid Films* **125** (1985) 25.
- [11] C. Marlière, *Thin Solid Films* **136** (1986) 181.
- [12] R. Dimmich and F. Warkusz, *Thin Solid Films* **109** (1983) 103.
- [13] D. Renard and G. Nihoul, *Phil. Mag. B.* **55** (1987) 75.
- [14] C. Pariset, *Thèse*, Université Paris XI (1976).
- [15] E. Wigner and J. Bardeen, *Phys. Rev.* **48** (1935) 84.
- [16] F. K. Schulte, *Surf. Sci.* **55** (1976) 427.
- [17] F. K. Schulte, *Phys. Stat. Sol. (b)* (1977) 149.

- [18] W. Kohn and L. J. Sham, *Phys. Rev. A* **140** (1965) 1133.
- [19] P. Hohenberg and W. Kohn, *Phys. Rev. B* **136** (1964) 864.
- [20] I. P. Batra, S. Ciraci, G. P. Srivastava, J. S. Nelson and C. Y. Fong, *Phys. Rev. B* **34** (1986) 8246.
- [21] J. Hölzl and P. Schrammen, *Appl. Phys. A* **3** (1984) 353.
- [22] J. Hölzl, F. K. Schulte and H. Wagner, *Springer Tracts in Modern Physics* (Springer Verlag, Berlin, 1979).
- [23] C. Marlière, *Vacuum* **41** (1990) 1192.
- [24] P. A. Anderson, *Phys. Rev.* **47** (1935) 958.
- [25] C. Marlière, *Surf. Sci.* **269/270** (1992) 777.
- [26] J. J. Harris, B. A. Joyce and P. J. Dobson, *Surf. Sci.* **103** (1981) L90.
- [27] C. Koziol, G. Lilienkampf and E. Bauer, *Appl. Phys. Lett.* **51** (1987) 901.
- [28] S. T. Purcell, B. Heinrich and A. S. Arrott, *Phys. Rev. B* **35** (1987) 6458.
- [29] M. Jalochowski, E. Bauer, H. Knoppe and G. Lilienkampf, *Phys. Rev. B* **45** (1992) 13607-13613.
- [30] M. Jalochowski and E. Bauer, *Phys. Rev. B* **37** (1988) 8622-8626.
- [31] J. P. Chauvineau, *Rev. Phys. Appl.* **23** (1988) 1645-1652.
- [32] P. Croce and L. Névoz, *Rev. Phys. Appl.* **11** (1976) 113.
- [33] P. Croce and B. Pardo, *Nouv. Rev. d'Opt. Appl.* **4** (1970) 229.

-
- [34] L. Névod, B. Pardo and J. Corno, *Rev. Phys. Appl.* **23** (1988) 1675.
- [35] L. Névod and P. Croce, *Rev. Phys. Appl.* **15** (1980) 761.
- [36] P. Bruno, *Thèse*, Université Paris XI (1989).
- [37] P. Bruno and J. P. Renard, *Appl. Phys. A* **49** (1989) 499.
- [38] C. Chappert and P. Bruno, *J. Appl. Phys.* **64** (1988) 5736.
- [39] S. S. P. Parkin, R. Bhadra and K. P. Roche, *Phys. Rev. Lett.* **66** (1991) 2152.
- [40] F. Petroff, A. Barthélémy, D. H. Mosca, D. K. Lottis, A. Fert, P. A. Schroeder, W. P. Pratt, R. Ioloe and S. Lequien, *Phys. Rev. B* **44** (1991) 5355.
- [41] A. Cellobada, R. Miranda, C. M. Schneider, P. Schuster and J. Kirschner, *J. Magn. Magn. Mater.* **102** (1991) 25.
- [42] Y. Yafet, *Phys. Rev. B* **36** (1987) 3948.
- [43] C. Chappert and J. P. Renard, *Europh. Lett.* **15** (1991) 553.
- [44] R. Coehorn, *Phys. Rev. B* **44** (1991) 9331.
- [45] D. M. Deaven, D. S. Rokhsar and M. Johnson, *Phys. Rev. B* **44** (1991) 5977.
- [46] P. Bruno and C. Chappert, *Phys. Rev. Lett.* **67** (1991) 1602.
- [47] C. Dupas, D. Renard, J. P. Renard, J. Seiden and E. Vélou, *J. Appl. Phys.* **63** (1988) 4300.

- [48] E. Vélú, C. Dupas, D. Renard, J. P. Renard and J. Seiden, *Phys. Rev. B* **37** (1988) 668.
- [49] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. N. v. Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich and J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.* **61** (1988) 2472.
- [50] F. Trigui, *Thèse*, Université Paris XI (1992).
- [51] R. E. Camley and J. Barnas, *Phys. Rev. Lett.* **64** (1989) 664.
- [52] P. M. Levy, S. Zhang and A. Fert, *Phys. Rev. Lett.* **65** (1990) 1643.
- [53] C. Marlière, J. P. Chauvineau and D. Renard, *Thin Solid Films* **189** (1990) 359.
- [54] C. Marlière, D. Renard and J. P. Chauvineau, *Thin Solid Films* **201** (1991) 317.
- [55] K. Shintaku, Y. Daitoh and T. Shinjo, *Phys. Rev. B* **47** (1993) 14584-14587.
- [56] C. Césari, J. P. Faure, G. Nihoul, K. L. Dang, P. Veillet and D. Renard, *J. Magn. Magn. Mater.* **78** (1989) 296.
- [57] N. Mliki, K. Abdelmoula, G. Nihoul, C. Marlière and D. Renard, *Thin Solid Films* **224** (1993) 15.
- [58] Y. Huai, R. W. Cochrane and M. Sutton, *Phys. Rev. B* **48** (1993) 2568-2576.
- [59] R. M. Bozorth, *Ferromagnetism* (D. van Nostrand Company, Toronto, 1951).

-
- [60] Loebich, *Zahlenwerten und Funktionen aus Physik-Chemie-Astronomie-Geophysik und Technik* (Springer Verlag, Berlin, 1964); Edited by L. E. Börstein.
- [61] P. M. Stoop, J. H. v. d. Merwe and D. L. Tönsing, *Thin solid Films* **226** (1993) 230-237.
- [62] S. Pizzini, F. Baudalet, E. Dartyge, A. Fontaine, C. Giorgetti, J. F. Bobo, M. Piecuch and C. Marlière., *J. Magn. Magn. Mater.* (1993)
- [63] V. Grolier, D. Renard, B. Bartenlian, P. Beauvillain, C. Chappert, C. Dupas, J. Ferré, M. Galtier, E. Kolb, M. Mulloy, J. P. Renard and P. Veillet, *Phys. Rev. Lett.* (1993) soumis à publication.
- [64] C. Chappert, K. L. Dang, P. Beauvillain, H. Hurdequint and D. Renard, *Phys. Rev. B* **34** (1986) 3192.
- [65] C. Chappert, P. Beauvillain, P. Bruno, J. P. Chauvineau, K. L. Dang, C. Marlière, R. Megy, D. Renard, J. P. Renard, J. Seiden, F. Trigui, P. Veillet and E. Velu., *J. Magn. Magn. Mater.* **93** (1991) 319.
- [66] J. Ferre, G. Penissard, C. Marlière, D. Renard, P. Beauvillain and J. P. Renard, *Appl. Phys. Lett.* **56** (1990) 1588.
- [67] G. Bayreuther, P. Bruno, G. Lugert and C. Turtur, *Phys. Rev. B* **40** (1989) 7399.
- [68] P. Bruno, G. Bayreuther, P. Beauvillain, C. Chappert, G. Lugert, D. Renard, J. P. Renard and J. Seiden, *J. Appl. Phys.* **68** (1990) 5759.
- [69] G. Pénissard, *Thèse*, Université Paris XI (1993).

-
- [70] A. Cebollada, J. L. Martinez, J. M. Gallego, J. J. d. Miguel, R. Miranda, S. Ferrer, F. Battalan, G. Fillion and J. P. Rebouillat, *Phys. Rev. B* **39** (1989) 9726.
- [71] D. H. Mosca, F. Petroff, A. Fert, P. A. Schroeder, W. P. Pratt, R. Laloe and S. Lequien, *J. Magn. Magn. Mater.* **94** (1991) L1.
- [72] W. F. Egelhof and M. T. Kief, *Phys. Rev. B* **45** (1992) 7795.
- [73] S. Pizzini, F. Baudalet, A. Fontaine, D. Chandesris, H. Magnan, A. Fert, F. Petroff and C. Marlière, *J. Physique (Paris)* **C3** (1992) 185.
- [74] S. Pizzini, F. Baudalet, A. Fontaine, D. Chandesris, H. Magnan, A. Fert and C. Marlière., *Appl. Surf. Sci.* **69** (1993) 7.
- [75] S. Pizzini, F. Baudalet, A. Fontaine, M. Galtier, D. Renard and C. Marlière, *Phys. Rev. B* **47** (1993) 8754.
- [76] K. L. Dang, P. Veillet, C. Chappert, P. Beauvillain and D. Renard, *J. Phys. F* **16** (1986) L109.
- [77] J. P. Renard, P. Beauvillain, C. Dupas, K. L. Dang, P. Veillet, E. Vélou, C. Marlière and D. Renard, *J. Magn. Magn. Mater.* **115** (1992) L147.
- [78] P. Strange, P. J. Durham and B. L. Gyorffy, *Phys. Rev. Lett.* **67** (1991) 3590.
- [79] C. F. Hague, J. M. Marriot, P. Strange, P. J. Durham and B. L. Gyorffy, *Phys. Rev. B* **48** (1993) 3560.
- [80] L. C. Duda, C. F. Hague, D. C. Mancini, J. M. Marriot, C. Marlière, J. Nordgren, P. Syk and N. Wassdahl, *Proc. M.R.S.* **307** (1993) à paraître.

[81] C. Hermann, H.-J. Drouhin, G. Lampel, Y. Lassailly, D. Paget, J. Peretti, R. Houdré, F. Ciccacci and H. Riechert, *Spectroscopy of Nonequilibrium Electrons and Phonons* (Elsevier Science Publishers B.V., 1992); Edited by C. V. Shank and B. P. Zarkharchenya.

[82] P. Houdy, *Habilitation*, Université Paris VI (1991).
