



HAL
open science

Couches épitaxiales magnétiques à paramètre cristallin ajustable

Mustafa Eleoui

► **To cite this version:**

Mustafa Eleoui. Couches épitaxiales magnétiques à paramètre cristallin ajustable. Matière Condensée [cond-mat]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2004. Français. NNT : . tel-00009222

HAL Id: tel-00009222

<https://theses.hal.science/tel-00009222>

Submitted on 10 May 2005

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

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

THÈSE
présentée par
ELEOUI Mustafa
pour obtenir le titre de
DOCTEUR
DE L'UNIVERSITÉ JOSEPH FOURIER - GRENOBLE I

Spécialité : Physique

Couches épitaxiales magnétiques à paramètre cristallin ajustable

Date de soutenance

19 Novembre 2004

COMPOSITION DU JURY

Ahmad BSIESY	Président
Véronique DUPUIS	Rapporteur
Jean-Pierre BUCHER	Rapporteur
Serge TATARENKO	Examineur
Jean-Christophe TOUSSAINT	Invité
Olivier FRUCHART	Directeur de thèse

Thèse préparée au Laboratoire de magnétisme Louis Néel - CNRS - Grenoble
(Laboratoire lié par convention à l'Université Joseph Fourier - Grenoble I et à
l'Institut National Polytechnique de Grenoble)

*À mon père,
à Rajaa, Lama et Sami ...*

Remerciements :

Cette thèse a été effectuée au sein du Laboratoire de magnétisme Louis Néel à Grenoble et concerne un travail de recherche sur les couches tampon à paramètre de maille ajustable et les systèmes Fe/W(110) et Fe/Mo(110). Elle a pu être achevée grâce à la contribution de nombreuses personnes qui d'une manière ou d'une autre ont participé à l'avancement de mes recherches. Je tiens dans les quelques lignes suivantes à leur adresser un remerciement fortement mérité.

En première lieu, merci à Olivier Fruchart de m'avoir proposé ce sujet passionnant et de m'avoir encadré, encouragé et soutenu tout au long de plus de trois ans et demi. Je le remercie de m'avoir accepté, tout d'abord, en stage de DEA, au cours duquel il m'a fait ressentir le goût de la recherche et surtout du magnétisme après une longue période d'arrêt d'études et de recherche. Il m'a beaucoup appris et j'apprécie sa façon d'expliquer les phénomènes scientifiques avec beaucoup de patience et d'enthousiasme. Je lui dois en particulier ces moments là d'écriture de cette page que j'ai pensé ne jamais pouvoir atteindre un jour ; je le remercie pour tout son encouragement, et soutien tout au long de cette thèse. Je remercie également Claudine Lacroix, directrice du Laboratoire Louis Néel au cours des deux premières années de cette thèse, de m'avoir accueilli pendant le stage de DEA et la thèse. Son encouragement et son soutien étaient indispensables et m'ont beaucoup aidé, avec le soutien continu d'Olivier Fruchart, à surmonter toutes les difficultés rencontrées au cours des deux premières années. Je remercie aussi Claire Meyer pour toutes les discussions scientifiques, son encouragement et pour la lecture de certaines parties de ce manuscrit.

Je tiens à remercier les membres de jury. En particulier je suis reconnaissant à Véronique Dupuis et Jean Pierre Bucher d'avoir été rapporteurs de ce manuscrit et d'avoir réalisé ce travail délicat pendant la période estivale. Je remercie Serge Tatarenko pour l'intérêt qu'il a porté à ce travail, Ahmed Bsiesy pour ses remarques et d'être venu pour juger cette thèse. Je remercie également Jean-Cristophe Toussaint d'avoir accepté de faire partie de ce jury et en particulier pour sa collaboration importante en micromagnétisme et simulation numérique.

Je remercie Philippe David et Véronique Santonacci dont la contribution était l'élément moteur dans l'avancement de cette thèse. C'est grâce à eux que la plupart des échantillons (sauf un tombé dans la chambre de dépôt) ont pu

être élaborés. Je tiens à remercier également Luc Ortéga et Annick Liénard d'avoir accepté et aidé à faire les mesures nécessaires en rayons X rasants. Je remercie également, les personnels du pôle magnétométrie pour leur soutien lors des différentes mesures de cycles d'hystérésis magnétique. Je remercie en particulier Eric Eyraud pour les discussions à propos du magnétomètre à SQUID.

Je remercie Liliana-Daniela Buda pour sa disponibilité dans les derniers jours avant la soutenance ; les discussions avec elle m'ont beaucoup aidé sur les calculs micromagnétiques dans un réseau de bandes.

Je dois un remerciement à Fabien Chenyis, avec qui j'ai partagé le bureau D-216 lors de ses séjours séparés au laboratoire. C'est avec lui que la première couche ("La couche du siècle!") à paramètre variable a vu le jour. Je le remercie pour les différentes discussions scientifiques et d'avoir accepté de corriger des fautes d'orthographe lors de la rédaction de ce manuscrit.

Je tiens à remercier la Région Rhône-Alpes d'avoir accepté notre projet EMERGENCE 2001 intitulé "Couches épitaxiales magnétiques à paramètre cristallin ajustable : application à des études de processus de croissance des métaux et au magnétisme de couches minces métalliques épitaxiées" et d'avoir financé la bourse de cette thèse.

Je tiens finalement à remercier l'ensemble du laboratoire Louis Néel, plus particulièrement Veronique Fauvel, Sabine Domingues-Gadalet et Eliane Foret pour leurs soutien et encouragement.

Pour terminer, je souhaite remercier les amis proches et ma famille qui m'ont suivi et soutenu tout au long de cette thèse.

Table des matières

Introduction générale	ix
I CROISSANCE	1
1 Croissance épitaxiale et moyens mis en œuvre	3
1.1 Théorie de la croissance épitaxiale	3
1.1.1 Définitions	3
1.1.2 Processus atomiques de croissance	5
1.1.3 Modes de croissance	5
1.2 Auto-assemblage et auto-organisation	7
1.2.1 Définition	7
1.2.2 Auto-assemblage	8
1.2.3 Auto-organisation	8
1.3 Moyens mis en œuvre et collaborations	9
1.3.1 Caractérisations structurales	10
1.3.2 Caractérisations morphologiques	12
1.3.3 Caractérisations magnétiques	18
1.4 Les systèmes Fe/W(110) et Fe/Mo(110) dans les couches minces	26
1.4.1 Croissance et structure	26
1.4.2 Magnétisme	27
1.4.3 Au Laboratoire Louis Néel	27
2 Couches tampon	31
2.1 Couches tampon pures W(110) et Mo(110)	31
2.1.1 Intérêt des surfaces W(110) et Mo(110)	31
2.1.2 Les couches tampon au LLN	32
2.2 Couches tampon à paramètre de maille ajustable	34
2.2.1 Montage expérimental	34
2.2.2 Couche tampon à paramètre de maille intermédiaire . .	36
2.2.3 Couches tampon à paramètre continûment variable . .	38

2.3	Interface chimique	39
2.3.1	Principe	39
2.3.2	Analyse par spectroscopie Auger	41
2.4	Conclusion	43
3	Croissance de bandes auto-organisées de Fe (110)	49
3.1	Bandes auto-organisées de Fe/W(110) dans la littérature	49
3.2	Le système Fe/W(110)	51
3.2.1	Bandes auto-organisées épaisses de Fe/W(110)	51
3.2.2	Estimation des déformations	51
3.2.3	Analyse et discussion	54
3.3	Effet de l'interface	58
3.3.1	Réalisation expérimentale	58
3.3.2	Analyse et discussion	59
3.4	Effet du paramètre cristallin	62
3.4.1	Réalisation expérimentale : Fe/W/W _x Mo _{1-x}	62
3.4.2	Analyse et discussion	64
3.5	Conclusion	67
II	MAGNÉTISME	69
4	Propriétés magnétiques de bandes auto-organisées épaisses de Fe	71
4.1	Renversement d'aimantation - Exemple du système Mo/Fe/W(110)	71
4.1.1	Bandes magnétiques à température ambiante	73
4.1.2	Anisotropie et coercitivité	74
4.1.3	Champ d'anisotropie et énergie dipolaire dans les bandes de Fe/W(110)	74
4.1.4	Activation thermique et coercitivité	78
4.2	Effet de l'interface	80
4.3	Mesure en X-PEEM : Domaines magnétiques stables	83
4.4	Conclusion	84
5	Modélisation : modèle micromagnétique analytique du retournement d'aimantation dans une nanostructure ultra-mince	87
5.1	Introduction	88
5.2	Préliminaires	90
5.2.1	Principe et approximations du modèle	90

5.2.2	Grandeurs réduites ou sans dimensions	91
5.2.3	Procédure de calcul	93
5.3	Amélioration de la précision du modèle existant	93
5.4	Extension du modèle à un bord incliné	97
5.5	Évaluations numériques	100
5.6	Loi d'échelle approximative pour le champ de retournement . .	102
5.7	Comparaison avec des simulations numériques et discussion . .	104
5.7.1	Procédé de calcul numérique	104
5.7.2	Comparaison des valeurs du champ de retournement . .	104
5.7.3	Domaine de validité du modèle	105
5.7.4	Conséquences de l'approximation du couple au bord . .	107
5.7.5	Implications pour les expériences en général	107
5.8	Implications pour les nanostructures de Fe/cc(110) fabriquées au LLN	108
5.9	Conclusion	109
A	Compléments sur le chapitre 5	111
A.1	Profil du volume de nucléation	111
A.2	Discussion et résolution numérique	112
	Conclusion générale	115

Introduction générale

La fabrication de couches minces épitaxiales a été le sujet de recherches nombreuses et approfondies durant les dernières deux ou trois décennies. Les motivations ont été de deux ordres. En premier lieu, utiliser dans des dispositifs intégrés des matériaux déjà connus, en espérant que leurs propriétés soient peu perturbées par rapport à celles, connues, de l'état massif. C'est le cas par exemple des semi-conducteurs et métaux utilisés dans la fabrication de microprocesseurs. En second lieu, utiliser les contraintes liées à l'épitaxie (désaccord paramétrique, énergies de surface, cinétique de croissance, effets de taille finie) pour fabriquer des matériaux n'existant pas à l'état massif, et présentant des propriétés originales. C'est le cas par exemple de l'anisotropie magnétique perpendiculaire, utilisée en enregistrement magnéto-optique. Sur le plan de la croissance, il a été réalisé depuis quelques années que ces contraintes pouvaient être mises à profit pour fabriquer non pas des couches continues, mais obtenir spontanément des nanostructures lors du dépôt (fils, plots, ...). C'est ce que l'on appelle auto-assemblage ou auto-organisation. Ces modes de croissance particuliers ont été étudiés en détail pour les semi-conducteurs, du fait de la perspective d'utilisation de boîtes quantiques pour des dispositifs opto-électroniques (lasers, sources à un photon). Beaucoup moins d'études ont été réalisées sur les systèmes métalliques, en particulier pour les métaux magnétiques. Notons que ce second cas ouvre des portes tant sur le plan des applications que sur celui des études fondamentales. C'est au second cas que nous nous intéresserons dans cette thèse, plus précisément aux effets d'un désaccord paramétrique sur les couches minces métalliques, et ce plus particulièrement sur les matériaux magnétiques.

Le rôle essentiel du désaccord paramétrique entre les réseaux de la couche et de son substrat est maintenant reconnu dans de nombreux aspects des couches minces. Il nous semble cependant que dans un certain nombre de cas son intervention est reconnue, mais n'a pu être quantifiée du fait de l'impossibilité de faire varier continûment et indépendamment chacun des paramètres pertinents. Citons en particulier un sujet très actuel en magnétisme, relié à l'anisotropie magnétique. Cette anisotropie tire son origine du couplage spin-

orbite, qui du fait des distorsions cristallines d'une part, et de la brisure de symétrie aux interfaces d'autre part, est fortement modifiée dans les couches ultraminces. Ce sont des contributions à l'anisotropie dites magnétoélastique et d'interface.

L'objectif principal de cette thèse est d'établir un lien quantitatif entre un désaccord paramétrique ou un paramètre de maille différent du massif d'une part, et un comportement de croissance ou une propriété magnétique d'autre part.

Notre travail de croissance est fondé sur une méthode originale que nous avons développé, de fabrication de couches minces à paramètre cristallin ajustable et d'énergie de surface contrôlable indépendamment. Nous mettons ensuite à profit ce développement pour étudier les effets du désaccord paramétrique et de l'interface chimique sur la croissance de bandes de Fe auto-organisées. Nous avons pu ainsi faire croître des bandes d'épaisseur jusqu'à cinq nanomètres, ce qui contraste avec les résultats de la littérature, c'est à dire deux plans atomiques au plus. Cette épaisseur inhabituellement élevée nous a permis d'obtenir rémanence, coercitivité, et domaines magnétiques stables à température ambiante. Enfin nous avons développé un modèle micromagnétique analytique du renversement d'aimantation dans une nanostructure ultramine, qui pourra être utilisé dans l'avenir pour interpréter le renversement d'aimantation de certains systèmes minces et plats dont nous avons démontré la croissance dans cette thèse.

La première partie du manuscrit est consacrée à la croissance. Le chapitre 1 présente une introduction générale sur la croissance, l'auto-assemblage et l'auto-organisation. Nous introduisons les moyens mis en œuvre pour l'élaboration et les caractérisations de nos échantillons. Dans ce chapitre nous décrivons également le dichroïsme magnétique circulaire de rayons X employé, dans ce manuscrit, pour l'imagerie X-PEEM de domaines magnétiques stables à température ambiante. Le deuxième chapitre décrit notre méthode de fabrication de couches tampon composites de W et Mo, à paramètre cristallin ajustable, ainsi qu'une optimisation, par spectroscopie Auger quantitative et par STM, d'une fine couche d'interface. Le chapitre 3 présente une méthode de croissance de bandes de Fe auto-organisées épaisses présentant une "hauteur magique" de 5.5 nm. Dans ce chapitre nous étudions en particulier les effets de l'interface et du paramètre cristallin de la couche tampon sur la croissance de ces bandes et nous cherchons à comprendre l'origine physique de cette épaisseur magique.

La seconde partie du manuscrit est consacrée au magnétisme. Nous présentons dans le chapitre 4 les propriétés magnétiques de bandes de

Fe auto-organisées épaisses. Nous mettons en évidence qu'elles sont ferromagnétiques à température ambiante, et nous étudions l'effet de l'interface et du paramètre de maille sur l'anisotropie magnétique de ces bandes, en étudiant les quatre systèmes suivant : Mo/Fe/W(110), Mo/Fe/Mo/W(110), Mo/Fe/Mo(110) et Mo/Fe/W/Mo(110). Nous montrons également dans ce chapitre des domaines magnétiques stables à température ambiante. Le chapitre 5 présente une amélioration et une extension d'un modèle micro-magnétique analytique du renversement d'aimantation dans une nanostructure ultramince. Ce chapitre présente l'intérêt du modèle pour les nanostructures fabriquées au laboratoire, les fondements physiques du modèle, les calculs dans les grandes lignes, la résolution et une discussion. L'annexe est dédiée à préciser quelques calculs mathématiques analytiques et certaines techniques de calcul numérique employées dans le chapitre 5.

Première partie
CROISSANCE

Chapitre 1

Croissance épitaxiale et moyens mis en œuvre

Afin de fournir les bases nécessaires à l'analyse des résultats expérimentaux, nous décrivons brièvement dans ce chapitre la croissance épitaxiale. Nous parcourons ensuite les différentes recherches effectuées sur l'élément ferromagnétique Fe, en mettant l'accent sur deux systèmes particuliers, Fe/Mo(110) et Fe/W(110), qui nous intéressent dans notre travail. Et finalement nous résumons les recherches, concernant ces deux systèmes, rapportées dans la littérature ou effectuées précédemment au laboratoire Louis Néel.

1.1 Théorie de la croissance épitaxiale

1.1.1 Définitions

Une *interface* solide est définie comme un petit nombre de couches atomiques qui séparent deux solides en contact [Markov 1995]. Ses propriétés diffèrent significativement de celles des matériaux massifs qu'elle sépare. La surface d'un solide est un cas particulier d'interface où le solide est en contact avec l'atmosphère environnante ou, avec le vide.

Dans un sens macroscopique on définit le terme *morphologie* pour désigner la forme de la surface. Les propriétés macroscopiques d'une surface dépendent des détails microscopiques déterminés par la structure atomique. Le terme *structure* est réservé aux détails microscopiques d'une surface, et il est utilisé pour décrire les arrangements géométriques des atomes de surface. Il faut noter que ces deux concepts sont reliés car la structure atomique influence significativement la morphologie d'une surface.

En croissance, une interface solide avance par l'addition d'un nouveau matériau (appelé dépôt) sur la surface d'un autre solide (appelé le substrat). On définit la vitesse de dépôt comme étant la quantité de matière déposée par unité de temps; elle s'exprime en $\text{\AA} \cdot \text{min}^{-1}$. Le dépôt peut cristalliser en relation avec la structure cristallographique du substrat; c'est l'*épitaxie*. On distingue deux types d'épitaxie : l'*homoépitaxie* lorsque les deux matériaux sont identiques, et l'*hétéroépitaxie* dans le cas contraire. Dans le cas de l'hétéroépitaxie le matériau déposé conserve, dans le plan de la couche, la structure et le paramètre de maille du substrat (jusqu'à une certaine épaisseur critique du solide en croissance); c'est le pseudomorphisme [Markov et Stoyanov 1987, Royer 1928]. Le réseau cristallin du matériau déposé est orienté d'une manière faisant coïncidence entre quelques vecteurs de son réseau réciproque avec le réseau réciproque de la surface du substrat monocristallin. Selon la longueur des vecteurs en coïncidence on parle d'une épitaxie du première ordre (coïncidence de vecteurs principaux), du second ordre et ainsi de suite.

Rappelons enfin deux définitions nécessaires lorsqu'on parle de la croissance de couches minces, la monocouche et le taux de couverture.

◆ *La monocouche*, noté MC, est définie par la densité d'atomes nécessaires à la constitution d'un plan atomique complet d'un monocristal massif. Cette quantité dépend donc du matériau et de l'orientation du plan atomique à constituer. Dans l'hétéroépitaxie une différence de paramètre de maille important peut exister, dans les tout premiers stades de croissance, par rapport au massif. Cette différence peut être positive ou négative selon les paramètres de maille du substrat et du dépôt. Dans ce cas la complétion d'un plan atomique sur le substrat requiert alors un nombre non entier de MC. Dans le cas qui nous intéresse dans ce manuscrit, les monocouches de Fe(110), W(110) et Mo(110) correspondent, respectivement, à une densité d'atomes de 17.22×10^{14} atomes/cm², 14.11×10^{14} atomes/cm² et 14.27×10^{14} atomes/cm². Lors de l'épitaxie de Fe/Mo(110), le premier plan atomique de Fe a la même densité que la surface de Mo(110) et correspond donc à 0.83 MC, et dans le cas de Fe/W(110) à 0.82 MC. L'intérêt de cette définition réside dans le fait qu'elle mesure la quantité de matière indépendamment du mode croissance, et des déformations (pas toujours connus). Cependant, la morphologie et les propriétés physiques d'une couche sont souvent reliées plus directement au nombre réel de plans atomiques de la couche qui est une grandeur locale et de valeur entière. Cela nous amène à définir une autre unité, l'unité de plan atomique (notée HA pour hauteur atomique), qui décrit le nombre de plans atomiques effectivement empilés dans une couche ou un îlot. Les caractéristiques des dépôts pourront donc être décrits à partir de ces deux unités, l'une calibrée par rapport au massif, l'autre décrivant ce qui est ob-

servé expérimentalement. Pour le premier plan atomique de Fe/W(110) on a $1 \text{ HA} = 0.82 \text{ MC}$.

◆ *Le taux de couverture*, souvent noté Θ dans ce manuscrit, caractérisera la quantité de matière déposée par unité de surface de l'échantillon. Exprimé en HA elle correspond à l'épaisseur en nombre de plans atomiques qu'aurait le film s'il était parfaitement continu. Exprimé en MC, le taux de couverture caractérisera le volume de Fe déposé, calibré sur le massif. Pour des taux de couverture élevé le nm se substituera à la MC en conservant une description calibrée sur le massif.

1.1.2 Processus atomiques de croissance

Lors de l'épitaxie, des atomes sont physisorbés sur le substrat, ces atomes sont appelés *adatoms* et sont très mobiles car peu liés latéralement. L'organisation de ces adatoms sur la surface du substrat, et par conséquent la morphologie de la couche formée, est très dépendante des conditions expérimentales, comme la température et la symétrie du substrat, la vitesse de dépôt (ou taux de dépôt, représentant le flux d'atomes arrivant à la surface) et le matériau déposé. Cette organisation engage différents types de processus atomiques à la surface du substrat [Brune 1998] (Fig. 1.1), comme l'adsorption d'un adatome sur la surface, la désorption ou la re-évaporation, la diffusion de surface, la nucléation d'un agrégat et l'interdiffusion. Chacun de ces processus est caractérisé par une énergie d'activation et un pré-facteur. Ces processus sont décrits par des lois exponentielles du type Arrhenius. Pour une température de substrat donnée T_s et un taux de dépôt R certains processus peuvent être cinétiquement favorisés et d'autres sont contrôlés par le taux de dépôt.

1.1.3 Modes de croissance

À l'équilibre thermodynamique tous les processus atomiques progressent dans des directions opposées à des vitesses identiques. Par conséquent il n'y a pas de croissance dans cette condition puisque la vitesse d'adsorption d'atomes sur le substrat est égale à celle de ré-évaporation. La croissance cristalline a donc lieu seulement dans une situation de non-équilibre thermodynamique et elle doit être traitée comme un phénomène cinétique hors équilibre [Madhukar 1983].

Dans le cas d'une croissance épitaxiale on peut classer la croissance en trois catégories, classification établie en 1958 pour la première fois par Bauer [Bauer 1958, Bauer et Poppa 1972, Bauer 1982]. Les liaisons des atomes déposés peuvent être plus ou moins fortes avec des atomes identiques ou

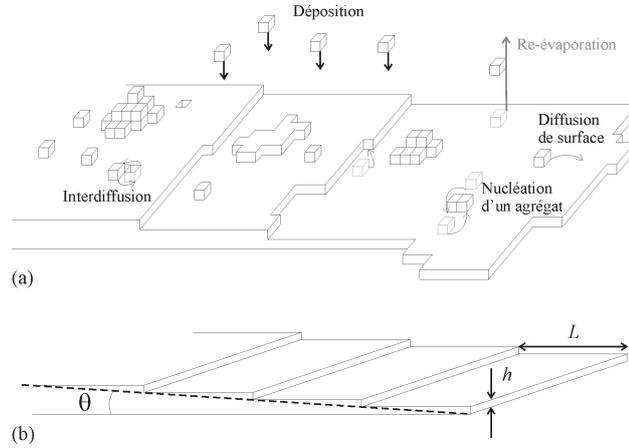


FIG. 1.1 – Représentations schématiques (a) des processus atomiques engagés lors de l'épitaxie. (b) d'une surface *vicinale* définie comme une surface dont l'orientation est voisine d'une orientation cristalline dense. θ est la désorientation par rapport à la face dense et la largeur de terrasse est $L = h/\tan\theta$, h étant la hauteur atomique du plan dense.

avec le substrat. Par conséquent le potentiel chimique des premières couches déposées est différent de celui du cristal massif [Markov 1995] :

► Le premier mode est appelé *Frank-van der Merve* (FM) ou croissance bidimensionnelle (2D) (Fig.1.2-a). Dans ce mode chaque couche non terminée du cristal tend à se compléter avant qu'une couche nouvelle commence à croître. Pour cela ce mode est désigné aussi par "croissance couche par couche". Ce mode est favorisé si $\gamma_s > \gamma_d + \gamma_{\text{int.}}$, où γ_s est l'énergie libre de surface du substrat, γ_d l'énergie libre de surface du dépôt, et $\gamma_{\text{int.}}$ l'énergie libre d'interface dépôt-substrat. Ce mode se rencontre, par exemple, pour l'homoépitaxie de toutes les surfaces stables.

► Le cas contraire, lorsque $\gamma_d + \gamma_{\text{int.}} > \gamma_s$, est appelé le mode *Volmer-Weber* (VW) ou croissance tridimensionnelle (3D) (Fig. 1.2-b). Dans ce mode plusieurs couches commencent à croître simultanément, ce qui provoque la formation de petites collines et de creux sur le substrat. Ce mode VW se rencontre, par exemple, pour le cas Pb/Si(111).

► Et enfin, un troisième type de croissance intermédiaire peut se produire, appelé *Stranski-Krastanov* (SK), où la croissance marque, à une certaine épaisseur critique, une transition de 2D à 3D (Fig. 1.2-c). Ce mode peut se produire en particulier si les premières monocouches vérifient la condition de croissance couche par couche, alors que c'est la condition (VW) qui est vérifiée par les couches suivantes. Ce mode de croissance est rencontré en hétéroépitaxie où le désaccord paramétrique entre substrat et dépôt incite

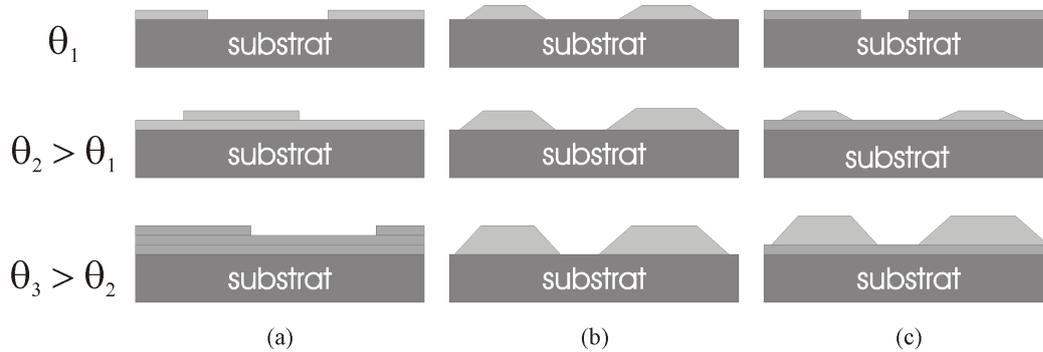


FIG. 1.2 – Représentation des trois modes de croissance à différent taux de couverture θ : (a) Frank-van der Merwe, (b) Volmer-Weber et (c) Stranski-Krastanov.

les couches déposées à se relaxer. Dans ces conditions il est énergétiquement plus favorable que les premières couches déposées croissent couche par couche et après une certaine épaisseur critique les contraintes sont éliminées plus efficacement en croissance tridimensionnelle. Des arguments de dépendance de l'énergie de surface par rapport à l'épaisseur, intervenant dans les quelques premiers plans atomiques, sont également souvent invoqués pour expliquer le mode de croissance SK. Le mode SK est très connu, et se rencontre, par exemple, pour Si/Ge, Fe/W, ...

1.2 Auto-assemblage et auto-organisation

Pendant longtemps les modes de croissance SK et VW ont été perçus comme des inconvénients, l'objectif étant la fabrication de couches minces continues. Il a ensuite été reconnu que ces modes pouvaient être exploités pour fabriquer spontanément des nanostructures. Ce développement a démarré il y a une vingtaine d'années pour les semiconducteurs (fabrication de boîtes quantiques [Reithmaier et Forchel 2003]), et il y a environ une décennie pour les métaux [Voigtländer et *coll.* 1991].

1.2.1 Définition

Dans ce manuscrit nous appelons *auto-assemblage* le cas, le plus courant, où les nanostructures sont réparties à peu près aléatoirement sur la surface. Nous appelons *auto-organisation* le cas où les nanostructures présentent un ordre positionnel à au moins moyenne distance. Notons que l'utilisation de ces deux termes n'est pas encore figée dans la littérature. Notons également

que les nanostructures ainsi formées peuvent présenter de nombreuses caractéristiques : plots, bandes ou fils ... etc.

1.2.2 Auto-assemblage

L'auto-assemblage présente un intérêt croissant en électronique et en magnétisme. Un intérêt est d'arriver à créer des nanostructures monocristallines exemptes de défauts et donc a priori idéales pour l'étude de propriétés physiques, magnétiques par exemple. Un second avantage est de pouvoir fabriquer en masse des structures de taille très inférieure à la résolution des techniques de lithographie conventionnelles, avec pour limite ultime l'atome individuel [Gambardella et *coll.* 2003]. En magnétisme on peut citer, par exemple, la croissance auto-assemblée de Fe/Mo(110) obtenue par dépôt laser pulsé (DLP) au LLN [Jubert et *coll.* 2001] et sa mise à profit pour l'étude de situations micromagnétiques par microscopie à force magnétique (MFM) et simulation numérique [Jubert et *coll.* 2003]. Citons également les recherches menées par A. Wachowiak, M. Bode, R. Wiesendanger et *coll.* [Wachowiak et *coll.* 2002] : 8 à 10 MC de Fe sont déposées à température ambiante sur une surface vicinale de W(110) puis recuites à 800 K pendant 10 min, formant des îlots auto-assemblés de Fe allongés plus d'une MC pseudomorphe de Fe. Ces îlots ont une dimension latérale entre 150 et 500 nm et une hauteur de 8 à 9 nm. L'aimantation dans et hors du plan a été mesurée par spectroscopie à effet tunnel polarisé en spin (SP-STTS) et étudiée par simulation numérique. La structure fine du cœur de vortex, à aimantation perpendiculaire, a pu être étudiée grâce à l'excellente résolution du SP-STTS. Le gonflement et la compression de ce cœur en fonction du signe du champ magnétique appliqué perpendiculairement au plot ont pu être confirmés. Des études similaires ont également été effectuées par Yamasaki et *coll.* [Yamasaki et *coll.* 2003] sur des îlots auto-assemblés de Fe/W(001). En électronique, les boîtes quantiques [Xie et *coll.* 1995, Orlov et *coll.* 1997, Eberl 1997, Reithmaier et Forchel 2003], ayant une structure électronique quantifiée semblable à celle d'un atome individuel, ouvrent des portes nouvelles : photo-détecteurs, laser et transistors etc.

1.2.3 Auto-organisation

L'auto-organisation peut [Brune 1998, Teichert 2002], quant à elle, être réalisée lorsque le substrat présente un certain ordre avant tout dépôt, comme un réseau de dislocations [Brune et *coll.* 1998] ou un réseau de marches atomiques [Gambardella et *coll.* 2000, Hauschild et *coll.* 1998, Gambardella et *coll.* 2002]. Par exemple, H. Brune et *coll.* [Brune et *coll.* 1998] ont

développé une méthode de croissance auto-organisée de plots sur un réseau de dislocations : un premier dépôt à haute température de 2MC de Ag/Pt(111) forme une couche continue de Ag parcourue par un réseau hexagonal de dislocations. Dans un second temps, une quantité de 0.1 MC d'Ag est à nouveau déposée, mais à basse température (110 K). Les nouveaux adatoms d'Ag n'ont pas une énergie suffisante pour franchir les dislocations, et s'agrègent, formant un réseau de plots auto-organisés. Également l'auto-organisation a été mise à profit par Hauschild et *coll.* [Hauschild et *coll.* 1998a] : un réseau de bandes de Fe est obtenu par décoration de marches sur un substrat de W(110). Les mesures magnétiques par effet Kerr ont montré que d'une part l'axe de facile aimantation est perpendiculaire aux bandes, du fait de la forte anisotropie magnétique d'interface, et d'autre part que ces bandes ont une température de Curie $T_c \simeq 180$ K. L'influence des interactions dipolaires sur la mise en ordre ferromagnétique, interactions faibles mais à longue portée, a été étudiée. Citons enfin l'étude effectuée par Bode et *coll.* [Bode et *coll.* 2001] sur l'imagerie magnétique, par SP-STM, de bandes de Fe obtenues par décoration de marches sur une surface de W(110) présentant des marches régulières peu espacées par des terrasses de largeurs 9 nm. Une quantité de 1.6 MC de Fe est déposée à 450 K sur W(110). Par cette méthode la seconde monocouche de Fe forme des nanobandes allongées le long de marches atomiques. Ces bandes sont caractérisées par un faible champ de saturation perpendiculaire et absence d'hystérésis (rémanence nulle). Ceci est dû au fait que les bandes aimantées perpendiculairement préfèrent occuper un état fondamental désaimanté par couplage anti-ferromagnétique, c'est à dire échangeant périodiquement la direction de l'aimantation entre les bandes adjacentes.

1.3 Moyens mis en œuvre et collaborations

Au lieu de l'épitaxie par jet moléculaire (EJM) faisant chauffer les cibles par effet Joule et/ou bombardement électronique, nous utilisons des impulsions laser courtes, de durée 10 ns, et donc de puissance instantanée élevée ce qui entraîne la fusion locale de la cible et l'évaporation d'atomes. Le dépôt par laser pulsé (DLP) est généralement utilisé pour l'élaboration de matériaux de composition complexe et notamment les oxydes car cette méthode de dépôt a la propriété de préserver à peu près la stoechiométrie de la cible utilisée [Shen et *coll.* 2004]. Dans le laboratoire nous utilisons le DLP pour l'élaboration de couches minces d'éléments simples de façon similaire à l'EJM sous ultraviolet [Ducruet 2003, Jubert 2001, Fruchart 1998, Robaut 1995]. Pour une revue du DLP effectué dans ces conditions, voir J. Shen et *coll.* [Shen et *coll.* 2004]. Le

laser utilisé est un Nd-YAG doublé en fréquence ($\lambda = 532$ nm) avec une durée d'impulsion de 10 ns et une fréquence de tir de 10 Hz. Le dépôt est effectué dans un dispositif sous ultra-vide contenant trois enceintes principales (Fig. 1.3) :

▷ Une enceinte dédiée au stockage, à la préparation et à l'analyse chimique des échantillons par spectroscopie Auger. Le vide de base dans cette chambre est de 2×10^{-10} Torr.

▷ Une enceinte de dépôt dont le vide de base est de $4 \cdot 10^{-11}$ Torr et typiquement à 10^{-10} Torr pendant le dépôt. Le faisceau laser est focalisé sur la cible de l'élément à déposer, elle-même en face du substrat. On peut contrôler l'énergie reçue par la cible, et la vitesse de dépôt, en réglant la puissance laser (de valeur moyenne allant jusqu'à 2W) et sa focalisation sur la cible. Cette enceinte est munie d'un ensemble de diffraction d'électrons rasants de haute énergie, d'une balance à quartz pour mesurer la vitesse de dépôt, d'un cache micrométrique permettant la réalisation de couches à gradient d'épaisseur, et d'un chauffage du substrat jusqu'à 1200K. La température du substrat est mesurée par un thermocouple placé à l'arrière du porte-échantillon. Ce thermocouple donne une température inférieure à celle sur l'échantillon, pour cela une calibration utilisant un pyromètre avait été effectué permettant de déduire la vraie température de l'échantillon en connaissant la température indiquée par le thermocouple. Les températures de dépôts données dans ce manuscrit correspondent aux vraies températures de l'échantillon.

▷ Enfin une enceinte d'analyse par microscope à effet tunnel de type Omicron UHV STM-1, dont le vide est de 10^{-10} Torr.

1.3.1 Caractérisations structurales

La structure cristalline des couches épitaxiées est sondée :

- *in situ* par diffraction d'électrons rasants de haute énergie (Reflection High Energy Electron Diffraction, RHEED) : un faisceau d'électrons d'énergie 10 keV est dirigé en incidence rasante sur la surface de la couche, et du fait de leur angle d'incidence la profondeur sondée par ces électrons n'est que d'un plan atomique, ce qui rend cette technique sensible à la surface uniquement. Le diagramme de diffraction, obtenu par visualisation des électrons diffractés sur un écran fluorescent, décrit alors l'ordre de surface de la couche et donne également des informations sur sa topographie (en particuliers les facettes d'îlots de Fe).

- *ex situ* par *diffraction de rayons X*, utilisant un diffractomètre en géométrie $\theta/2\theta$, (*collaboration avec le Laboratoire d'Études des Propriétés Électroniques des Solides, LEPES*), ainsi que par un diffractomètre 4 cercles pour l'analyse de texture (*collaboration avec le laboratoire de Cristallographie*).

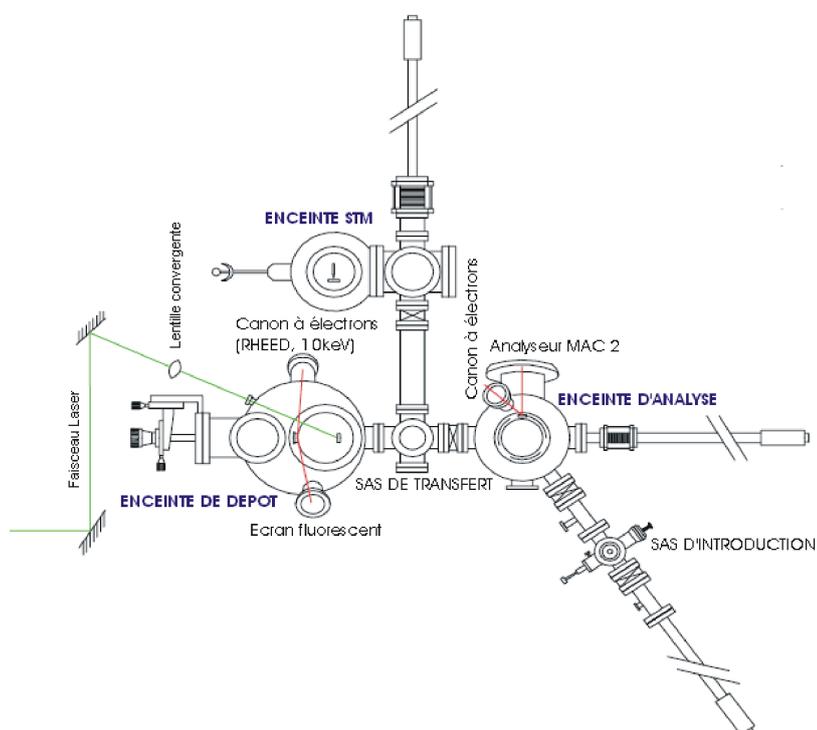


FIG. 1.3 – Dispositifs expérimentaux du dépôt par laser pulsé employés dans la préparation et l'étude, par spectroscopie Auger, STM, et RHEED d'échantillons étudiés.

1.3.2 Caractérisations morphologiques

Nous sommes intéressés par l'étude de la qualité de surface de la couche tampon et de la forme des objets épitaxiés sur ces substrats. Nous effectuons ces études, *in situ*, par la Microscopie à Effet Tunnel (Scanning Tunneling Microscopy, STM), et *ex situ*, par Microscopie à Force Atomique (Atomic Force Microscopy, AFM). L'utilisation de ces microscopies s'est rapidement généralisée dans les laboratoires de recherche, depuis le prix Nobel de physique en 1986 attribué à Rohrer et Binnig, qui en 1983 montrèrent des images à l'échelle atomique d'une surface de silicium balayée à l'aide d'une pointe métallique [Binnig et *coll.* 1982; 1983] (Ce prix récompensa également Ruska qui, en 1931, avait réalisé le premier microscope électronique). Ce sont des microscopies dites à sonde locale. Ceci signifie que les dimensions de la sonde (une pointe) et sa distance par rapport à l'échantillon sont très petites devant celles de l'objet à imager. C'est la raison pour laquelle il faut balayer la sonde pour reconstruire l'image de l'ensemble de l'objet. La ou les propriétés de surface qui sont "cartographiées", avec une résolution sans précédent, dépendent de la nature de la sonde. Le STM sonde la densité des états électroniques au voisinage du niveau de Fermi. L'AFM repose sur les interactions interatomiques si l'on travaille dans le vide. Plus généralement, il existe maintenant une famille de microscopies reposant sur des interactions de différentes sortes (magnétiques, électrostatiques, frottement, etc...) dont la portée influence la résolution ultime. L'intérêt des techniques STM/AFM tient non seulement à leur extrême résolution mais aussi à leur souplesse d'emploi, puisqu'elles sont utilisables dans tous les milieux (vide, air, liquides).

Le STM et l'AFM sont deux techniques complémentaires. L'AFM est une technique de mesure *ex situ*, relativement facile à utiliser et permet de sonder un grand champ de surface (jusqu'à $100\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m}$) mais elle a une résolution moyenne. Le STM, utilisé *in situ* chez nous, est doté d'une résolution atomique mais permet de sonder un champ relativement petit (chez nous jusqu'à $800\ \text{nm} \times 800\ \text{nm}$). Également il ne permet pas d'imager les surfaces isolants, ce que peut faire l'AFM.

(A) Microscope à effet tunnel STM

A.1 principe du STM : L'idée de base est simple. Une pointe métallique, généralement en tungstène, détermine la topographie d'une surface en la survolant à quelques angströms suivant un balayage bidimensionnel. L'évaluation de la distance pointe-échantillon est effectuée par la mesure du courant tunnel entre la pointe et la surface sondée. Un courant tunnel entre deux électrodes (la pointe et la surface sondée) apparaît lorsque les deux

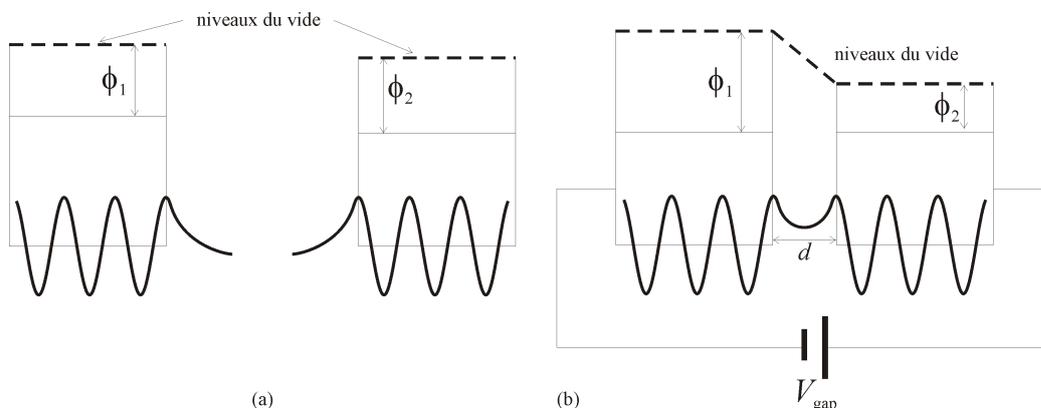


FIG. 1.4 – (a) Schématisation des fonctions d’onde électroniques au niveau de Fermi dans deux métaux de travaux de sortie ϕ_1 et ϕ_2 respectivement. (b) Les deux métaux sont suffisamment rapprochés l’un de l’autre pour permettre le recouvrement des fonctions d’onde. Lorsqu’une tension est appliquée entre eux un courant tunnel s’établit [Bai 2000].

électrodes sont suffisamment proches l’une de l’autre. La fonction d’onde d’un électron au niveau de Fermi dans chaque électrode décroît de façon exponentielle dans le vide avec une longueur d’extinction caractéristique $1/K$ donnée telle que

$$K = \sqrt{2m\phi/\hbar} \quad (1.1)$$

où m est la masse de l’électron et ϕ est le travail de sortie local. Ainsi lorsque les deux électrodes sont suffisamment proches l’une de l’autre les fonctions d’onde de la pointe et la surface se recouvrent (Fig. 1.4). Lorsqu’une tension, V_{gap} , est appliquée entre les électrodes un courant tunnel I s’établit entre la pointe et l’échantillon. La tension V_{gap} est généralement appliquée à l’échantillon. À faible tension et basse température, I décroît exponentiellement avec la distance d entre la pointe et la surface :

$$I \propto V_{\text{gap}} e^{-2Kd}. \quad (1.2)$$

Le courant tunnel varie typiquement d’un ordre de grandeur pour un déplacement vertical de 1 \AA [Binnig et *coll.* 1982].

A.2 Modes opératoires en STM : La relation 1.2 permet de déterminer la distance connaissant le courant tunnel et vice-versa. Ceci est mis à profit dans deux modes de travail en STM : le *mode à courant constant* et le *mode à hauteur constante* (Fig. 1.5).

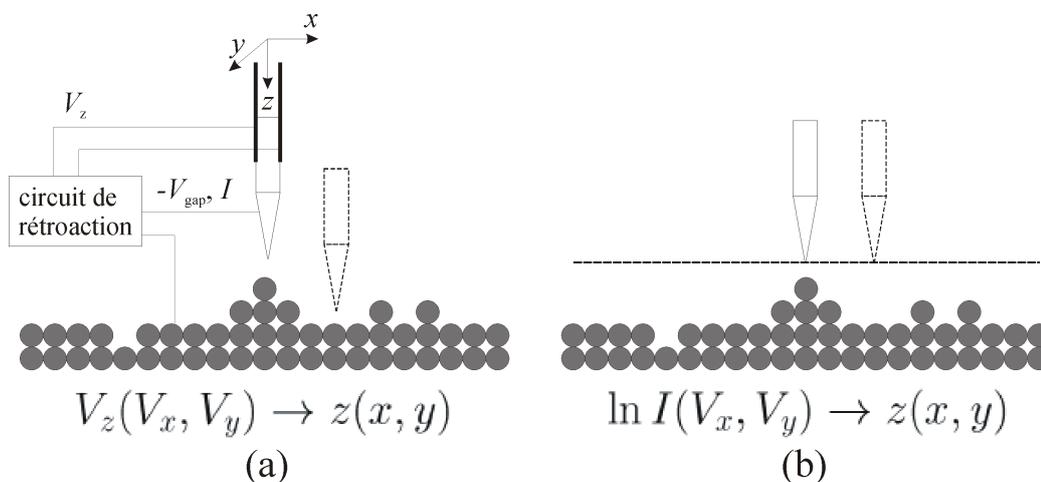


FIG. 1.5 – Schématisation des deux modes opératoires en STM : (a) à courant constant et (b) à hauteur constante. I est la valeur de courant de consigne pour (a) et le courant tunnel pour (b) et V_{gap} est la tension appliquée entre la pointe et l'échantillon. Pour (a), V_z est la tension de rétroaction ajustant la hauteur de la pointe au dessus de la surface sondée [Bai 2000].

Dans le *mode à courant constant* le courant tunnel est maintenu constant, et égal à une certaine valeur de consigne de quelques dixièmes de nA, en appliquant une tension de rétroaction sur un tube piézoélectrique faisant reculer ou approcher la pointe de la surface sondée. Les déplacements de la pointe fournissent alors la carte topographique de la surface. La tension de rétroaction doit réagir assez rapidement, en particulier pour les surfaces rugueuses, pour que la pointe réagisse rapidement sans rentrer en contact avec la surface.

Dans le *mode à hauteur constante* la pointe est maintenue à une hauteur constante dans le vide indépendamment de la topographie de l'échantillon. Par conséquent le courant tunnel varie lorsque la pointe survole la surface et la topographie est déterminée par les variations du courant. L'intérêt de ce mode est d'éliminer la boucle de rétroaction, source d'instabilités et limitant la vitesse de balayage. Cependant, du fait de la décroissance exponentielle de $I(d)$, ce mode n'est adapté qu'à de très faibles corrugations, typiquement des plans atomiques plats, pour sonder des atomes, des reconstructions, etc.

La pointe STM est généralement faite d'un métal conducteur non réactif, comme le tungstène, et afin de sonder les surfaces avec une bonne résolution, la pointe doit se terminer par un nombre restreint d'atomes. Par exemple ceci peut être réalisé en passant un courant à travers la pointe pendant qu'elle est en contact avec une solution concentrée d'hydroxyde de potassium ou de

sodium [Bai 2000].

A.3 Caractéristiques et performances : Au laboratoire Louis Néel nous utilisons un microscope commercial de type Omicron UHV STM-1, ajouté aux bâtis UHV depuis 1999. Les pointes utilisées sont en tungstène et préparées par voie électrochimique dans NaOH ($5 \text{ mol.}\ell^{-1}$). Ce microscope permet de réaliser des images de nos échantillons *in situ* avec une taille de balayage maximum de $800 \text{ nm} \times 800 \text{ nm}$. Il est équipé d'un système permettant de déplacer l'échantillon devant la pointe de plusieurs millimètres, selon une seule direction. Ceci est très pratique pour la caractérisation d'échantillons préparés en coin. Ceci permet, par exemple, d'étudier la surface d'un dépôt en fonction de la quantité de matière déposée sur un même échantillon. Nous avons utilisé ce microscope pour sonder des surfaces métalliques de Fe, W et Mo, en mode courant constant de 0.1 nA à 0.5 nA avec une tension de polarisation de $V_{\text{gap}} = -0.2 \text{ V}$ à -0.1 V . Les substrats de Saphir utilisés étant isolants, un système de patte mobile a été mis au point, lors de l'addition du STM aux chambres existantes, afin d'assurer le contact entre les surfaces sondées et le porte échantillon STM. L'effet d'ombrage du dépôt DLP impose de faire tourner la patte après le dépôt à l'aide d'un manipulateur de type "wobblestick" pour établir le contact électrique avant les observations.

(B) Microscope à force atomique (AFM)

B.1 Le principe : le microscope à force atomique fait partie de la famille des microscopes à pointe et à balayage (*Scanning Probe Microscopes, SPM*). L'AFM sonde les forces de Van der Waals entre la pointe et l'échantillon, qui sont estimées par le déplacement et/ou la torsion d'un levier souple sous lequel est montée la pointe. L'amplitude et le type de déflexion permettent de remonter au module et à la direction de la force de Van der Waals ressentie par la pointe. Pour les couches minces métalliques la carte de la composante verticale de la force de Van der Waals donne directement la topographie de l'échantillon. La force de Van der Waals (Fig. 1.6-a), entre les atomes de la pointe et ceux présents à la surface de l'échantillon sondé, présente deux régimes : répulsif ou attractif selon la distance pointe-échantillon.

B.2 Les modes de travail : Il existe deux modes de travail en AFM :

► **Le mode statique, ou mode contact :** La pointe est amenée au contact de l'échantillon (force répulsive) et le levier subit une déflexion. Le balayage peut être effectué de deux manières :

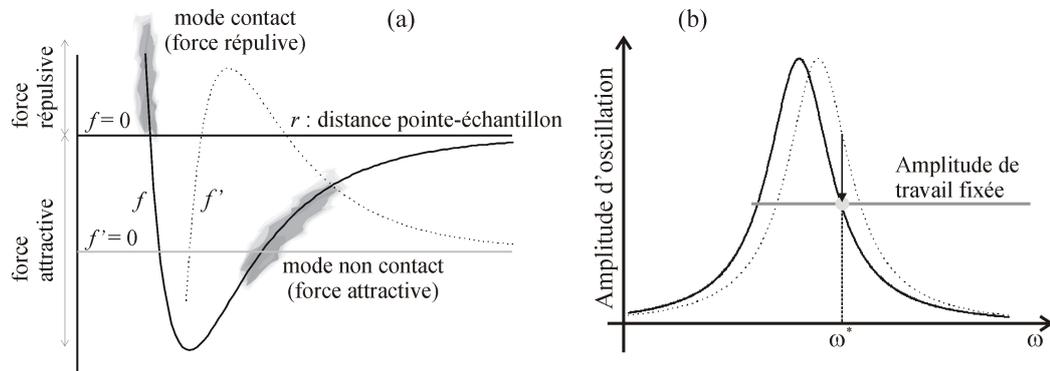


FIG. 1.6 – (a) Force de Van der Waals (courbe continue) entre les atomes d'une pointe AFM et les atomes de la surface d'un échantillon sondé, et son gradient $f' = df/dr$ (courbe pointillée). (b) En pointillé est schématisée l'amplitude d'oscillation d'un levier libre en fonction de la fréquence d'excitation. Lorsque la pointe s'approche de l'échantillon cette courbe se décale vers la courbe continue et l'amplitude d'oscillation à la fréquence de travail ω^* fixée diminue.

- Une rétroaction sur l'altitude permet de conserver une déflexion constante. Le signal de rétroaction constitue directement la topographie de la surface. Ceci est le mode le plus couramment utilisé.
- L'échantillon étant immobile la pointe suit la surface de l'échantillon et la topographie est reproduite par les déplacements verticaux de l'extrémité du levier. Ceci n'est adapté que pour de très petites tailles de balayage, et une faible rugosité.

► **Le mode résonance, ou mode non-contact** : Le système fait vibrer le levier à une fréquence proche de sa fréquence de résonance (typiquement entre 20 et 400 kHz) avec une amplitude de quelques dizaines à quelques centaines d'angströms. Ensuite il détecte les changements de l'amplitude de vibration ou de la phase de la réponse lorsque la pointe s'approche de la surface de l'échantillon. La sensibilité de cette détection donne lieu à une résolution verticale meilleure que 1 \AA dans l'image.

La pulsation de résonance d'un levier de masse m et de constante de raideur k_{eff} est donnée par la relation :

$$\omega = \sqrt{\frac{k_{\text{eff}}}{m}} \quad (1.3)$$

Dans cette expression la constante de raideur est noté k_{eff} car elle change de valeur lorsque le levier s'approche de la surface de l'échantillon. Le compor-

tement du levier est influencé par les forces interatomiques. En particulier pour un gradient de force f' , la constante de raideur effective est donnée par la relation suivante :

$$k_{\text{eff}} = k - f' \quad (1.4)$$

Dans cette équation la constante k est la valeur de la constante de raideur du levier quand il est libre, c'est à dire lorsqu'il est loin de la surface de l'échantillon.

Les équations (1.3) et (1.4) montrent que si le levier se déplace dans un régime où le gradient de force est positif et croissant, alors la constante de raideur effective diminue et par conséquent sa fréquence de résonance décroît. La figure 1.6-a montre que dans le régime non contact le gradient de force est positif et croît lorsque la distance pointe-échantillon diminue. Pour cela lorsqu'un levier est porté près de la surface de l'échantillon, le gradient de force augmente et sa fréquence de résonance décroît comme décrit précédemment.

Si la fréquence de résonance se décale, alors l'amplitude des oscillations du levier à une fréquence donnée ω^* change. La figure 1.6-b schématise une courbe de réponse (amplitude de vibration en fonction de la pulsation) pour un levier. Si la courbe se décale vers la gauche, par exemple, alors il y a un changement (dans ce cas une diminution) dans l'amplitude de l'oscillation du levier à la pulsation donnée (ω^*). Ce décalage en amplitude est à la base de la technique de mesure de la modulation d'amplitude et est utilisé afin de détecter les changements dans la fréquence de résonance. Le mode opératoire consiste à conserver une amplitude constante par une rétroaction sur l'altitude de l'échantillon, donc sur l'interaction pointe-échantillon. La topographie est alors directement donnée par le signal de rétroaction. Le mode non-contact correspond (1) à un abaissement de la fréquence de résonance (2) au point de fonctionnement sur le flanc droit du pic. Ce mode peut être sélectionné en choisissant une pulsation de travail ω^* légèrement supérieure à la pulsation de résonance à vide ω_0 (Fig. 1.6-b), de telle sorte que la boucle de rétroaction "glisse" sur le flanc du pic.

B.3 Caractéristiques et performances : Le microscope utilisé est un AutoProbe CP de Park Scientific Instruments (actuellement VEECO). La courbure du levier est déterminée au niveau d'une photodiode à deux cadrans par la déflexion d'un faisceau laser focalisé sur l'extrémité du levier portant la pointe. Le levier, le laser et la photodiode sont solidaires et fixes dans le repère du laboratoire. Le balayage est effectué par l'échantillon qui est monté sur un tube piézoélectrique. Les déplacements du tube sont contrôlés par une tension appliquée sur ces piézoélectriques, et corrigés par une détection

Tube piézoélectrique	5 μm	100 μm
Aire de balayage		
balayage latéral Max	5 μm	100 μm
balayage vertical Max	2.5 μm	7.5 μm
Résolution du contrôle		
résolution latérale Max	0.0013 \AA	0.25 \AA
résolution verticale Max	0.009 \AA	0.025 \AA

TAB. 1.1 – Caractéristiques des deux tubes piézoélectriques utilisés au LLN

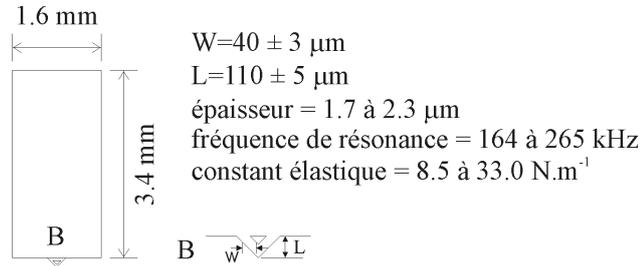


FIG. 1.7 – Spécifications d'une pointe AFM utilisée au LLN.

optique interférométrique dans les directions horizontales x et y . Deux tubes ont été utilisés dont les caractéristiques sont résumées dans le tableau 1.1. La figure 1.7 résume les spécifications des pointes non contact utilisées.

1.3.3 Caractérisations magnétiques

Nous mesurons les cycles d'hystérésis de nos échantillons par un magnétomètre à SQUID de Quantum Design (noté dans la suite SQUID-QD) installé au laboratoire Louis Néel depuis deux ans. L'observation de domaines magnétiques est effectuée par microscopie d'émission de photo-électrons de rayons X, notée X-PEEM (X-ray Photo-Electron Emission Microscopy) combinée avec le dichroïsme magnétique circulaire de rayons X, XMCD (X-ray Magnetic Circular Dichroism) sur la ligne *NanoSpectroscopy* au synchrotron Elettra (Trieste-ITALIE). Dans la suite nous décrivons les principes et le fonctionnement du magnétomètre à SQUID Quantum Design et le principe du X-PEEM et du XMCD.

(A) Magnétomètre à SQUID Quantum Design

Le système magnétomètre à SQUID-QD est un instrument de mesure de haute performance, spécialisé dans la caractérisation de matériaux magnétiques exigeant une haute précision sur une gamme de température

étendue de 1.9 K à 400 K, et dans des champs magnétiques allant jusqu'à +7 T et produits par des bobines supraconductrices. Le système détecte le *moment magnétique* d'un échantillon à partir duquel l'aimantation et la susceptibilité magnétique sont déterminées.

Ce magnétomètre comporte les composants supraconducteurs suivants :

- un aimant pour produire les champs magnétiques intenses,
- deux anneaux de détection et deux anneaux de compensation couplés inductivement avec l'échantillon,
- un SQUID (Superconducting QUantum Interference Device) connecté avec des fils supraconducteurs aux anneaux de détection,
- un blindage entourant le SQUID.

Le SQUID est placé à environ 11 cm au dessous de l'aimant dans un tube de blindage supraconducteur faisant écran à tout champ magnétique extérieur et au champ magnétique appliqué. Le SQUID délivre une tension strictement proportionnelle au courant circulant dans sa boucle d'entrée. L'échantillon se déplace dans un système d'anneaux supraconducteurs, appelés anneaux de détection (Fig. 1.8-a) qui sont connectés au SQUID par des fils supraconducteurs, permettant au courant induit dans les anneaux de détection de se coupler inductivement avec le SQUID. Les anneaux de détection sont localisés au milieu de l'aimant et à l'extérieur de la chambre de l'échantillon. La chambre de l'échantillon a la forme d'un tube de diamètre 9 mm et rempli avec un gaz d'hélium à basse pression. La mesure est effectuée en déplaçant l'échantillon à travers ces anneaux de détection. Le déplacement du moment magnétique de l'échantillon induit alors un courant électrique dans les anneaux de détection. Les anneaux de détection, le SQUID et les fils de connexion entre eux forment un circuit supraconducteur fermé. Par conséquent tout changement dans le flux magnétique à travers les anneaux de détection produit un changement dans le courant permanent circulant à travers ce circuit, ce changement étant proportionnel au changement dans le flux magnétique. Puisque le SQUID fonctionne comme un convertisseur courant-tension, les variations du courant du circuit produisent des variations correspondantes dans la tension de sortie du SQUID, qui sont proportionnelles au moment magnétique de l'échantillon. Dans un système étalonné correctement la mesure des variations de la tension du SQUID fournit une mesure très précise du moment magnétique de l'échantillon. Notre système est étalonné par une petite bille en Pd de diamètre 0.5 mm.

Le système de détection (Fig. 1.8-a) est configuré de façon à éliminer le bruit dû aux fluctuations du champ magnétique produit par l'aimant supraconducteur. Si le champ magnétique varie uniformément la variation du flux dans

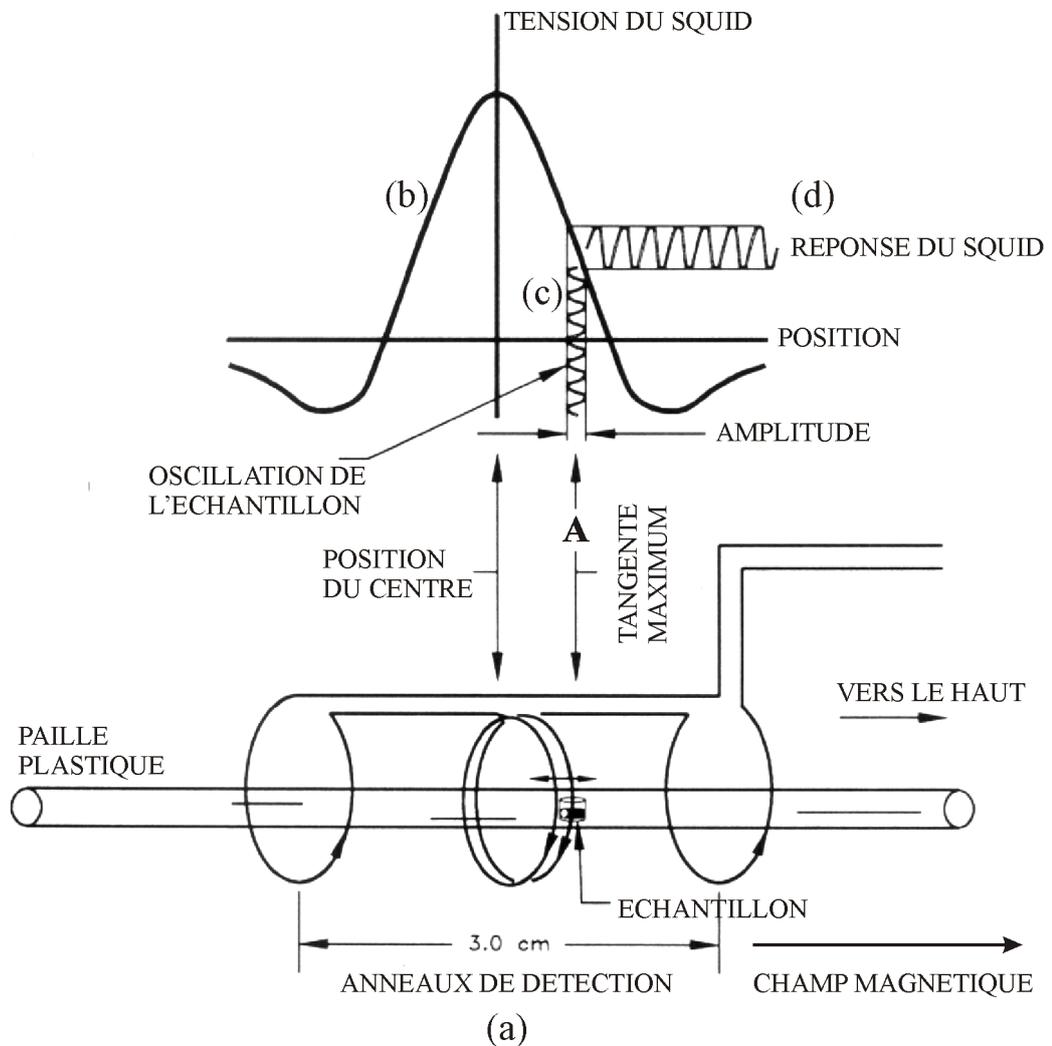


FIG. 1.8 – (a) Anneaux de détection (au centre) et de compensation (au bords). (b) Tension du SQUID en fonction de la position de l'échantillon lorsque celui-ci se déplace tout au long de la distance accessible dans les anneaux de détection (3 cm). Au point A la pente de cette courbe est maximale et la réponse du SQUID est linéaire. (c) En mode de détection RSO l'échantillon effectue un certain nombre d'oscillations autour de A. L'amplitude, la fréquence et le nombre de ces oscillations sont choisis par l'expérimentateur. (d) Réponse du SQUID aux oscillations de l'échantillon.

les deux anneaux centraux sera compensée exactement par la variation des flux dans les deux anneaux au bord. Lors de longues périodes de mesure, le courant circulant dans le système de détection peut devenir important, le magnétomètre empêche ce phénomène de se produire en chauffant une petite section du circuit de détection lors de chaque changement de la valeur du champ magnétique.

La production du champ magnétique est assurée par un solénoïde supraconducteur entourant la chambre de l'échantillon. Cet aimant est construit comme une boucle supraconductrice complètement fermée, ce qui permet de changer le courant à une certaine valeur, puis travailler en mode courant permanent, sans aucune alimentation, pendant toute la mesure. Afin de porter le courant jusqu'à une valeur différente de celle déjà établie dans l'aimant, une petite section du circuit de l'aimant est chauffée, cette section devient conductrice normale, et fonctionne comme un interrupteur ouvrant ainsi le circuit de l'aimant. Le courant dans l'aimant est alors établi en connectant l'alimentation (une source de courant) aux bornes de cette section normale. Quand le champ magnétique atteint la valeur demandée, le chauffage de la section normale est arrêté, permettant à cette section de se refroidir et de revenir à l'état supraconducteur. L'alimentation est finalement coupée, et totalement déconnectée de l'aimant. Nos mesures sont effectuées en mode RSO : l'échantillon effectue un certain nombre (3 à 20 cycles) d'oscillation avec une certaine amplitude (entre 1 et 3 cm) et fréquence (entre 4 et 10 Hz) choisis par l'utilisateur. Le signal du SQUID a alors la forme présentée dans la figure 1.8-b.

(B) Dichroïsme magnétique circulaire de rayons X (XMCD) et Microscopie d'émission de photo-électrons de rayons X (X-PEEM)

Rayonnement synchrotron polarisé circulairement et XMCD Actuellement, en utilisant le rayonnement synchrotron de haute brillance disponible dans les synchrotrons de troisième génération (comme l'ESRF à Grenoble, ou Elettra en Italie où nous avons réalisé plusieurs expériences) et en fixant l'énergie des photons X à une valeur de seuil d'absorption caractéristique d'un élément, des propriétés caractéristiques d'un élément déterminé peuvent être sondées. En plus, si le rayonnement X utilisé est polarisé circulairement alors le dichroïsme magnétique circulaire (XMCD) peut être exploité pour fournir une information magnétique [Stöhr et *coll.* 1993]. Le rayonnement polarisé circulairement de haute brillance et accordable en énergie est uniquement produit dans les synchrotrons. En fait, dans une ligne de faisceau à aimant de courbure (bending-magnet beamline) on peut obtenir une polarisation circulaire en choisissant la partie du faisceau dont les

photons sont émis au-dessus ou en-dessous du plan du faisceau de l'anneau de stockage. Ceci est dû au fait que le rayonnement synchrotron émis par un électron *relativiste* se déplaçant sur une trajectoire circulaire, horizontale dans notre cas, contient deux polarisations linéaires orthogonales. La première, notée σ , se trouve dans le plan du mouvement, et la seconde, notée π , est perpendiculaire à ce plan. L'amplitude de cette dernière, π , est nulle lorsque la direction d'observation des RX se trouve dans le plan du mouvement. Au-dessus et au-dessous du plan ces deux polarisations ne sont pas nulles et sont déphasées de $\pi/2$ l'une par rapport à l'autre et produisent donc une polarisation circulaire droite (ou gauche) selon que la direction d'observation des RX est au-dessus (ou en-dessous) du plan de rotation des électrons. Dans un aimant de courbure, un rayonnement polychromatique est produit par l'électron lorsqu'il est sur sa trajectoire en arc de cercle. C'est le principe de production de rayonnement synchrotron des instruments de seconde génération. La caractéristique des synchrotrons de troisième génération est de pouvoir démultiplier la brillance du faisceau synchrotron, en utilisant des composants d'insertion comme les *wigglers* et les *onduleurs* composés de pôles magnétiques. Théoriquement, pour l'utilisation de N pôles, la brillance est multipliée par $2N$. Ces composants font osciller les électrons dans un plan perpendiculaire à leur direction de mouvement, les forçant à faire de nombreux arcs, sources de RX. La superposition cohérente des photons produits dans ces arcs successifs produit un faisceau constitué d'harmoniques en fréquences bien déterminées. Ces fréquences, et donc l'énergie des photons, sont réglables par le bias de l'écartement verticale entre les aimants utilisés, comme pour ID12B de l'ESRF à Grenoble.

Définition du signal dichroïque Schütz et *coll.* [Schütz et *coll.* 1987] ont montré que l'absorption de rayons X polarisés circulairement dépend de l'état magnétique de l'échantillon. Au seuil d'absorption K du Fe, et pour une polarisation circulaire fixe de photons X incidents, ils ont mis en évidence un changement dans le spectre d'absorption quand l'aimantation est renversée d'une orientation parallèle à une orientation antiparallèle à la direction des photons incidents (spin s_γ du photon). On parle alors de dichroïsme magnétique circulaire de rayons X (XMCD).

En pratique, le XMCD, des éléments 3d est réalisé au seuil d'absorption L car les transitions K ne portent que très peu de sensibilité sur le magnétisme. Le signal dichroïque est dû au fait que les sections efficaces d'absorption, aux seuils d'absorption profonds d'atomes magnétiques alignés dépendent de l'orientation relative du spin du photon par rapport à la direction de l'aimantation locale. Le signal dichroïque est exploité en valeur absolue (signal

dichroïque absolu) ou en asymétrie XMCD. Le signal dichroïque absolu est défini par

$$\Delta I_{\text{XMCD}} = I^+ - I^-, \quad (1.5)$$

où I^+ (resp. I^-) est l'intensité du spectre obtenue avec des rayons X polarisés circulairement droit (resp. gauche). L'asymétrie XMCD est, elle, définie par

$$A_{\text{XMCD}} = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} \quad (1.6)$$

et varie entre -100 % et +100 %.

Exemple Afin d'illustrer l'avantage de ce signal dichroïque, nous allons regarder à titre d'exemple un échantillon étudié par Swiech et *coll.* [Swiech et *coll.* 1997]. Cet échantillon présente un réseau de plots carrés de Permalloy ($20 \mu\text{m} \times 20 \mu\text{m}$) sur un substrat en Si. Une petite région d'un carré de Permalloy a été sondée par rayons X polarisés circulairement, et les intensités d'absorption, correspondant aux photons incidents polarisés circulairement droit ou gauche, sont représentées sur la figure 1.9-a en fonction de l'énergie des photons incidents. Selon la polarisation des photons X, les intensités aux seuils d'absorption Fe $L_{2,3}$ sont différentes, et on remarque plus particulièrement que le signe du signal dichroïque (Eq. 1.6) est inversé au seuil L_2 du Fe. Le fait que cette asymétrie se produit précisément à un seuil d'absorption de l'élément sondé, rend le dichroïsme magnétique circulaire, en plus de sa sensibilité à l'aimantation, sensible également à la nature chimique de l'élément en question.

Origine de l'asymétrie dichroïque Dans la suite nous allons présenter l'origine de cette asymétrie dichroïque. En fait le signal XMCD obtenu dans l'absorption initial d'un photon X, de spin \mathbf{s}_γ , est transmis aux électrons secondaires émis selon un processus à deux étapes [Schönhense 1999, Schneider 1997, Schneider et *coll.* 1997] schématisés sur la figure 1.9-b :

▷ Premièrement l'excitation optique crée un trou dans un niveau atomique profond (niveau $2p_{3/2}$ sur la figure). La polarisation du photon incident, \mathbf{s}_γ , induit une polarisation préférentielle du phot-électron [Fano 1969, Schönhense 1999]. Juste au-dessus du seuil d'absorption l'état final de cet électron se trouve dans un état inoccupé de la bande d, au-dessus de l'énergie de Fermi E_F . La densité d'états inoccupés de spin minoritaire dans cette bande étant le plus important pour le Fer, les électrons primaires ayant le spin minoritaire sont alors favorisés, alors que les électrons à spin majoritaire trouvent une plus faible proportion d'états inoccupés disponibles. Cette sélection est connue sous le nom de *règles de somme*; elle est à l'origine de l'asymétrie

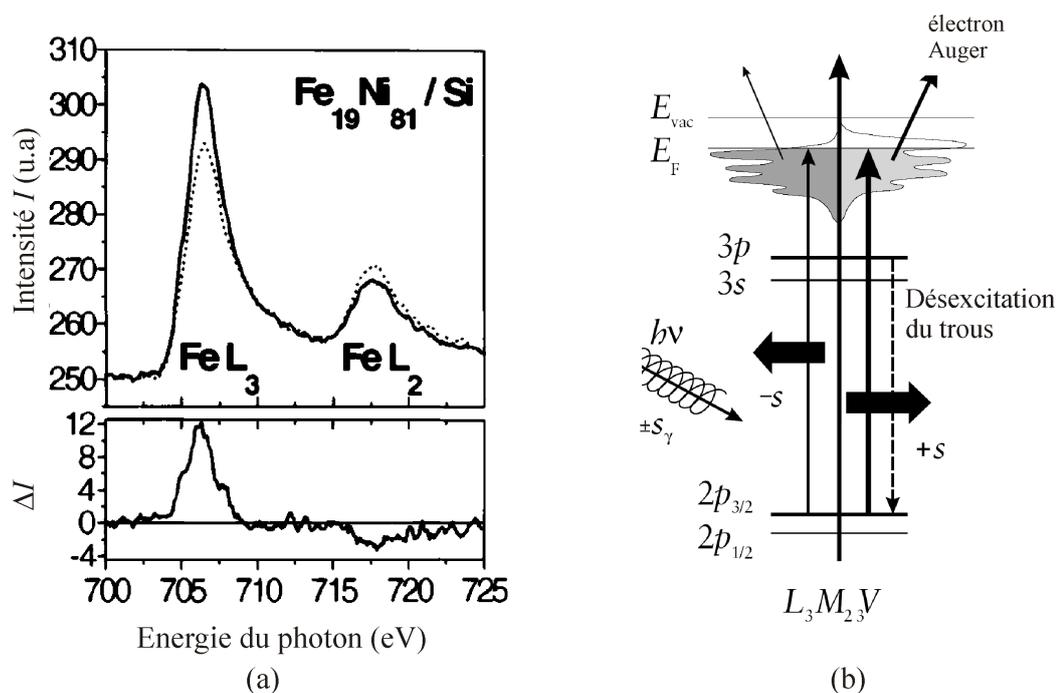


FIG. 1.9 – (a) Un exemple de microspectroscopie magnétique {tiré de [Swiech et *coll.* 1997]} utilisant le dichroïsme magnétique circulaire de rayons X (XMCD). En fonction de l'énergie des photons X incidents sont représentées, en haut, les deux intensités d'absorption correspondant aux photons X incidents polarisés circulairement droit (I^+ , courbe continue) et gauche (I^- , en pointillé), et en bas, le signal dichroïque absolu ΔI (Eq. 1.5). Remarquer l'inversion de signe de ce signal entre les seuils $L_{2,3}$. (b) Origine de l'asymétrie XMCD [Schönhense 1999]. L'asymétrie est liée à l'étape initiale de la photoexcitation à partir d'un état de niveau atomique profond vers un état inoccupé dans un niveau de densité d'états dépendant du spin et se trouvant juste au-dessus de l'énergie de Fermi E_F .

XMCD dans le premier stade du processus de la photoabsorption. Il en résulte une différence dans les sections efficaces d'absorption pour deux directions d'aimantation opposées, ce qui est équivalent à deux probabilités différentes de création du trou. L'axe de quantification du spin électronique est définie selon $-\mathbf{M}$ et le spin du photon incident est selon \mathbf{s}_γ . Par conséquent la projection de \mathbf{s}_γ sur \mathbf{M} fournit une mesure du signal XMCD observé.

▷ Dans la seconde étape, le trou de cœur est comblé soit par fluorescence soit par un processus Auger. Dans ce dernier cas le dichroïsme magnétique initial est transféré aux électrons Auger produits. Pour deux configurations parallèle et antiparallèle de \mathbf{M} et \mathbf{s}_γ on obtient deux intensités différentes d'électrons Auger. Lors de ses cheminement vers la surface ces électrons produisent, par des processus inélastiques, une cascade d'électrons secondaires. Avec une bonne approximation l'intensité de ces électrons secondaires est proportionnelle au nombre d'électrons Auger initialement produits. Ainsi le signal XMCD initial, obtenu dans l'étape précédente, est transféré, par le biais d'électrons Auger, aux électrons secondaires de plus faible énergie.

L'exploitation du signal XMCD, par le comptage des électrons secondaires émis, est appelée, en anglais, "total electron yield". Une fois extraits, une image est obtenue à partir de ces électrons en utilisant une optique électromagnétique déjà mise au point pour la microscopie LEEM (Low Energy Electron Microscopy). En pratique, souvent les deux instruments (LEEM et X-PEEM) sont disponibles sur le même porte-échantillon, en utilisant la même optique d'imagerie, mais des sources d'illumination différentes, soit un faisceau d'électron (LEEM), soit des RX mous (X-PEEM).

X-PEEM L'acronyme PEEM signifie Photo-Electron Emission Microscopy, soit en français : microscopie d'émission de photo-électrons. En PEEM une image est construite par une optique électromagnétique à partir des électrons secondaires photo-émis à la suite de l'absorption de photons X-mous (300 eV-1600 eV) (*X-PEEM*), de photons UV émis par une source classique (*UV-PEEM*) ou par un laser. La résolution spatiale est d'environ 10-100 nm. Cette résolution dépend fortement de l'échantillon mesuré, de la source employée et de la distribution en énergie des électrons secondaires émis. Pour une source UV, par exemple, cette distribution est relativement faible (0 eV-5 eV) et la résolution peut atteindre assez facilement 20 nm. Pour le rayonnement synchrotron, par contre, les électrons secondaires peuvent avoir une énergie entre 0 eV et l'énergie primaire des photons, ce qui donne lieu à une aberration chromatique des lentilles électroniques et une résolution moins bonne que 100 nm. Pour améliorer cela, un filtrage en énergie des électrons est nécessaire.

Modes d'utilisation du PEEM Le PEEM est essentiellement utilisé dans trois modes différents [Schönhense 1999]. En utilisant les électrons issus d'un processus XMCD le contraste magnétique des différents éléments dans un alliage ou une multicouche magnétique permet de reconstruire une image magnétique de la surface. Ce mode donne accès aux structures magnétiques et phénomènes couplés avec une sensibilité submonocouche et la capacité d'imager les couches internes jusqu'à 5 nm de profondeur environ. C'est ce mode que nous avons employé dans nos mesures (voir chap. 4).

Les deux autres modes utilisent des sources de lumière UV simples et sont attractives pour des applications standards dans les laboratoires. Les changements induits dans le champ magnétique de fuite par les trajectoires d'électrons au voisinage de la surface produisent un contraste du type Lorentz. Le troisième type de contraste est du au phénomène de rotation Kerr du vecteur diélectrique à l'intérieur d'un matériau magnétique.

1.4 Les systèmes Fe/W(110) et Fe/Mo(110) dans les couches minces

1.4.1 Croissance et structure

Les systèmes Fe/W(110) et Fe/Mo(110) occupent une place importante dans les recherches sur les couches minces magnétiques tant concernant la croissance que le magnétisme. En fait le système Fe/W(110) est largement étudié depuis une vingtaine d'années [Waller et Gradmann 1982], car il fournit un système modèle pour l'étude expérimentale du magnétisme en deux dimensions [Przybylski et Gradmann 1987].

Les éléments Fe, W et Mo sont dotés d'une maille cubique centrée et ont respectivement les paramètres de maille suivants : $a_{\text{Fe}} = 2.866 \text{ \AA}$, $a_{\text{Mo}} = 3.147 \text{ \AA}$ et $a_{\text{W}} = 3.165 \text{ \AA}$. Par conséquent un fort désaccord paramétrique, $f = [a_{\text{Fe}} - a_{\text{W(Mo)}}]/a_{\text{W(Mo)}}$, est présent dans les deux systèmes Fe/W(110) ($f = -9.4\%$) et Fe/Mo(110) ($f = -8.9\%$). D'autre part l'énergie du plan (110), qui est le plan le plus dense d'un matériau cubique centré, doit *a priori* avoir l'énergie de surface la plus faible et donc ne pas favoriser la formation de facettes. Les énergies de surface des plans Fe(110), W(110) et Mo(110) ont été calculées par L. Vitos et *coll.* [Vitos et *coll.* 1998] : $\gamma(\text{W}) = 4.00 \text{ J.m}^{-2}$, $\gamma(\text{Fe}) = 2.43 \text{ J.m}^{-2}$ et $\gamma(\text{Mo}) = 3.45 \text{ J.m}^{-2}$. On remarque que l'énergie de surface du plan Fe(110) est la plus faible, ce qui favorise le mouillage par le Fer. La croissance de la première couche de Fe est effectivement plane, elle est également pseudomorphe {W : [Waller et Gradmann 1982, Gradmann et *coll.* 1990], Mo : [Tikhov et Bauer 1990]}, malgré

un coût important en énergie élastique [Sander et *coll.* 1998]. Cette première monocouche constitue alors [Murphy et *coll.* 2002] un système homogène et se présente comme un système modèle pour l'étude du magnétisme en deux dimensions. Des mesures expérimentales de contraintes plus récentes [Sander et *coll.* 1998] de déflexion du substrat de W pendant le dépôt de Fe, ont mis en évidence l'apparition de dislocation de rattrapage à partir de $\Theta = 1.2$ HA.

1.4.2 Magnétisme

À 300 K la croissance de Fe sur W(110) commence par la formation d'îlots d'épaisseur monoatomique qui sont super-paramagnétiques à une température dépendant de la taille de ces îlots ($T > 115$ K) [Elmers et *coll.* 1994]. Pour un taux de couverture $0.6 < \Theta < 1.0$ HA un ordre ferromagnétique est induit par percolation magnétique entre les îlots. La première monocouche de Fe est ferromagnétique jusqu'à 225 K avec un axe de facile aimantation dans le plan selon $[1\bar{1}0]$ [Elmers et *coll.* 1994, Fritzsche et *coll.* 1994]. Pour $1.0 < \Theta \leq 1.5$ HA une seconde couche d'îlots est formée sur la première MC pseudomorphe de Fe. Ces îlots ont une aimantation hors du plan à cause de la contrainte élastique et sont ferromagnétiques à 300 K.

1.4.3 Au Laboratoire Louis Néel

Le système Fe/W(110) a été étudié au LLN dès le début années 1990. Plus tard O. Fruchart et *coll.* [Fruchart 1998] ont optimisé une méthode d'élaboration de couches tampon de Mo(110) et W(110) [Fruchart et *coll.* 1998a, Fruchart 1998]. Ensuite il a été montré que les couches continues de Fe/Mo(110) présentent une anisotropie d'interface planaire [Fruchart et *coll.* 1999a] qui favorise l'axe $[001]$ au détriment de l'axe $[1\bar{1}0]$, d'intensité similaire mais de signe opposé à celle de Fe/W(110). L'étude de ce système a ensuite été poursuivie dans la thèse de P.-O. Jubert [Jubert 2001] : en fonction de la température de dépôt, deux régimes de croissance distincts ont été mis en évidence, permettant la fabrication de particules modèles : des îlots 3D compacts de taille submicronique et des nano-bandes de Fe auto-organisées sur une couche tampon faiblement vicinale de Mo(110). Les propriétés magnétiques et en particulier le retournement d'aimantation d'une particule unique de taille submicronique ont été étudiées par MFM, micro-SQUID et simulation numérique.

(A) Croissance

À haute température de dépôt, entre 600 K et 800 K, la croissance suit le mode Stranski-Krastanov. Mais contrairement au mode Stranski-Krastanov habituel, après la complétion d'un premier plan monoatomique pseudomorphe de Fe sur Mo, se forment simultanément deux types de nanostructures sous forme d'îlots tridimensionnels présentant des densités et des modes de croissance différents. Les îlots les plus denses sont plats, de hauteur moyenne ≈ 1 nm, et croissent par expansion latérale jusqu'à former une couche quasi-continue pour un taux de couverture $\Theta = 2$ nm. La deuxième catégorie d'îlots a une croissance cinq fois plus rapide dans cette gamme de température. Ces nanostructures forment un ensemble d'îlots compacts épitaxiés auto-assemblés sur la surface de Mo(110). Ces îlots présentent une forme compacte, facettée, avec des rapports d'aspect à peu près constants au cours de la croissance $r = \text{longueur/largeur} \simeq 1.7$ et $\eta = \text{hauteur/largeur} \simeq 0.3$. Les îlots sont terminés par des plans cristallographiques parfaits du Fer bcc. La forme de ces îlots est bien comprise par la construction géométrique de Wulff [Herring 1951]. Les dimensions des nanostructures peuvent être contrôlées par le biais du taux de couverture, et surtout de la température, avec une distribution modérée. Les tailles de ces îlots varient de $1200 \text{ nm} \times 640 \text{ nm} \times 195 \text{ nm}$ pour $\Theta \simeq 8$ nm à $275 \text{ nm} \times 200 \text{ nm} \times 35 \text{ nm}$ pour $\Theta \simeq 0.35$ nm.

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

À température modérée (300 K à 600 K) la croissance de Fe sur Mo(110) diffère de la croissance à haute température du fait de limitations cinétiques. De 300 K à 400 K ces limitations cinétiques permettent d'obtenir des couches continues de Fe. Une épaisseur métastable a été mise en évidence pour le système Fe/Mo(110) telle que pour des taux de couverture $2HA < \Theta < e_{\text{met}}$ il ne se forme par le recuit que des structures présentant cette épaisseur sur une couche de mouillage de 1 à 2 plans atomiques. L'origine de cette épaisseur métastable pourrait être attribuée à une réduction optimum des contraintes élastiques ou un effet de confinement quantique [R.Otero et *coll.* 2002, Luh et *coll.* 2001, Luca et *coll.* 1999]. Cette épaisseur ne dépend pas de la température de recuit, mais passe de 6 MC pour un dépôt avant recuit à 300 K, à 8 MC pour un dépôt initial à 400 K. Cette épaisseur métastable est égale à celle d'îlots biseautés obtenus en même temps lors de la formation

d'îlots compacts rappelés ci-dessus. Dans la gamme de taux de couverture $2.2 \text{ MC} \leq \Theta \leq 4.5 \text{ MC}$ il se forme en particulier des bandes nanométriques auto-organisées de Fe, parallèles et régulièrement espacées, de hauteur 1.2 nm à 1.5 nm. L'organisation est reliée à la présence de marches atomiques sur le substrat. Les bandes de Fe/Mo(110) sont exactement parallèles à la direction des marches observées, par STM, sur la surface nue de Mo(110), et présentent la même périodicité. Le dépôt de Fe directement à 500 K mène également à la formation de nanostructures de Fe allongées sur la couche de mouillage de 2 HA. Ces structures ont une forme et une épaisseur moins régulières que les bandes ci-dessus, mais elle ont l'avantage de présenter une hauteur plus importante, de 5 nm.

(B) Propriétés magnétiques

Du fait de leurs caractéristiques morphologiques et structurales très bien définies les îlots 3D compacts ont été utilisés au LLN comme système modèle pour l'étude du retournement d'aimantation d'un système à configuration micromagnétique à fermeture de flux. Ainsi a été étudié le comportement magnétique d'îlots 3D épitaxiés de taille juste sub-micronique ($600 \text{ nm} \times 300 \text{ nm} \times 60 \text{ nm}$). Ces îlots présentent une rémanence nulle, et une anisotropie dominée par la forme, avec un axe de plus facile aimantation parallèle à la grande longueur des îlots, c-à-d à la direction planaire Fe[001]. Les observations MFM à la rémanence après saturation suivant l'axe facile mettent en évidence l'existence de configurations multidomaines avec fermeture de flux, assimilées soit à une structure Landau, soit à une structure de type losange, soit à une troisième configuration non identifiée [Jubert 2001]. Par simulation numérique sur des îlots de forme approchée [Jubert et *coll.* 2003] les deux configurations Landau et losange ont été reproduites. Il a été démontré que l'apparition de l'une ou de l'autre configuration est pilotée par les premiers stades de retour en champ par une brisure de symétrie [Fruchart et *coll.* 2004b].

Les champs de saut de nucléation et d'annihilation de ces îlots, en fonction de l'angle planaire de champ appliqué par rapport à la direction [001], ont été étudiés expérimentalement par micro-SQUID et par simulation numérique. Il a été mis en évidence en particulier un saut dans le champ de nucléation pour des angles de champ appliqué entre 40° et 50° . Ce saut n'est pas dû à la présence d'un défaut, mais a été attribué à la forme des plots et à la possibilité d'existence de configurations non uniformes.

Les propriétés magnétiques de nanostructures allongées de 5 nm de hauteur ainsi que des bandes auto-organisées ont été étudiées par des cycles d'hystérésis macroscopiques avec une analyse fondée sur la séparation des

contributions réversible et irréversible. Les structures étudiées sont parallèles à la direction cristallographique Fe[001]. Dans cette géométrie les anisotropies magnétocristalline et d'interface renforcent l'anisotropie de forme pour stabiliser l'aimantation dans la direction [001]. Ces structures se retournent à 300 K de manière non couplée avec un cycle d'hystérésis moyen carré et un champ coercitif élevé ($H_c/H_a \approx 0.5$). Les cycles d'hystérésis macroscopiques ont révélé aussi l'existence d'une contribution magnétique réversible indépendante. Celle-ci a été attribuée probablement à la couche de mouillage de 2 HA.

Chapitre 2

Couches tampon

Ce chapitre est destiné à montrer les procédés d'obtention, *in situ*, de couches tampon monocristallines d'éléments purs W(110) ou Mo(110), et à paramètre cristallin ajustable W_xMo_{1-x} , ainsi que leurs propriétés morphologiques et structurales. Il présente également une optimisation de la croissance d'une couche d'interface.

2.1 Couches tampon pures W(110) et Mo(110)

2.1.1 Intérêt des surfaces W(110) et Mo(110)

Une *couche tampon* est une sous-couche inerte du point de vue des propriétés physiques recherchées, dont le rôle est de contrôler la croissance de la couche active. C'est, en particulier, en contrôlant les caractéristiques de cette couche tampon que l'on peut ajuster les propriétés de la couche active. Le premier objectif de cette thèse est de développer des couches tampon composites originales permettant de contrôler deux aspects : d'une part *le paramètre de maille cristallin*, d'autre part la nature chimique de *l'interface* avec le matériau actif, magnétique dans notre cas. Ces deux aspects jouent un rôle primordial dans la croissance et les propriétés magnétiques. Leurs effets respectifs étant mal cernés actuellement, nous avons cherché à *les contrôler indépendamment* pour en séparer les rôles.

Les couches tampon réalisées seront constituées de métaux réfractaires présentant la surface (110). Ces surfaces sont bien adaptées pour la croissance de couches minces métalliques [Waller et Gradmann 1982, Kwo et *coll.* 1985], puisque leur énergie de surface est généralement élevée [Mezey et Giber 1982, Vitos et *coll.* 1998]. De plus la possibilité d'alliages de surface, en particulier

avec le Fer, est inexistante pour W(110), et faible pour Mo(110) [Tikhov et Bauer 1990]. En particulier, la surface W(110) est largement utilisée depuis Gradmann et coll. [Waller et Gradmann 1982]. Cette surface permet la croissance pseudomorphe d'une monocouche (MC) de Fe(110) [Przybylski et coll. 1989, Elmers et coll. 1994], ce qui permet, par exemple, de créer un système modèle pour l'étude du magnétisme à deux dimensions [Elmers et coll. 1989; 1994; 1995, Weber et coll. 1990].

Les études les plus fondamentales sur les couches minces métalliques sont souvent réalisées par dépôt sur un monocristal métallique. En effet, la fabrication de couches tampon plates à l'échelle atomique, monocristallines et exemptes de dislocations à leur surface est délicate. Cependant, lorsqu'une telle couche peut être déposée sur des substrats commerciaux (Al_2O_3 , MgO , Si, ...), son utilisation semble préférable à celle d'un monocristal, pour plusieurs raisons :

- Absence de dégazage provenant du cœur du substrat, ce qui évite les longues préparations du cristal. Associé au faible coût des cristaux commerciaux, ceci permet l'élaboration de séries d'échantillons pouvant être caractérisés *ex situ*.
- Toujours du point de vue pratique, le clivage post-élaboration des échantillons permet de mener de front plusieurs types de caractérisations en minimisant le temps consacré à leur fabrication.
- Enfin, la qualité du poli des substrats commerciaux d'oxydes ou de Silicium est bien meilleure que celle des cristaux métalliques, et permet systématiquement d'obtenir une largeur de terrasse atomique supérieure à 100 nm, et pouvant atteindre 500 nm, permettant de se rapprocher au plus près de la surface atomiquement plate idéale.

2.1.2 Les couches tampon au LLN

Pour les raisons décrites ci-dessus, l'équipe "couches minces et nanostructures magnétiques" du laboratoire Louis Néel a optimisé, depuis plusieurs années, le développement de couches tampon pures de W(110) et Mo(110) [Fruchart et coll. 1998a] sur un substrat monocristallin de saphir $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$. C'est cette méthode que nous avons retenue. Elle consiste à déposer l'élément simple Mo (ou W) sur un substrat de $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ à 340 K pour favoriser le mouillage du saphir, puis de monter la température de dépôt progressivement jusqu'à 470 K afin de favoriser l'épitaxie. L'épaisseur des couches déposées est ≤ 10 nm. Un recuit entre 900 K et 1100 K pendant 30 min permet alors la formation d'une couche parfaitement plane et monocristalline (Fig. 2.1). La surface de ces couches est atomiquement plate et parcourue par un réseau

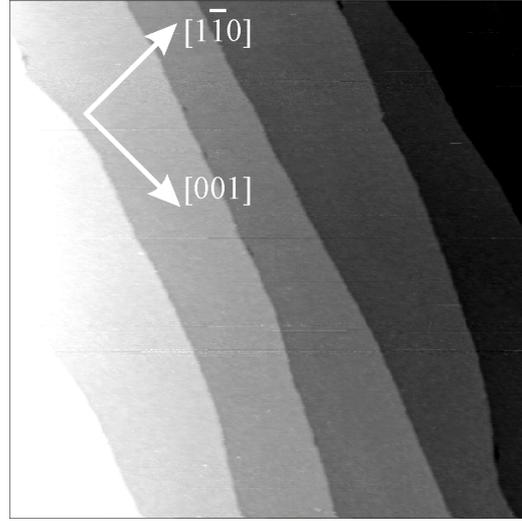


FIG. 2.1 – Image STM ($800\text{ nm}\times 800\text{ nm}$) d'une couche tampon de Mo(110)/Al₂O₃(11 $\bar{2}$ 0), présentant après recuit les terrasses atomiques séparées par des marches mono-atomiques (de hauteur $\simeq 2\text{ \AA}$).

de marches mono-atomiques parallèles, sans défaut de type dislocation ou accumulation de marches.

La fabrication de ces couches de haute qualité est favorisée par l'utilisation du dépôt laser pulsé, qui du fait de son taux de dépôt instantané de plusieurs ordres de grandeur supérieur à celui du dépôt thermique (pour un même taux moyen), permet la formation, à température ambiante, de nanocristaux de très petite taille. Un dépôt par MBE effectué dans les mêmes conditions permet de former cette couche tampon de qualité [Albrecht et *coll.*, non publié]. En étudiant les diagrammes RHEED sur une couche tampon de W(110) préparée par cette méthode, nous avons constaté la formation de macles à sa surface conformément aux observations rapportées [Fruchart et *coll.* 1998a]. Une macle se manifeste par la formation de plusieurs familles de cristaux d'une même espèce cristalline, orientés mutuellement suivant une loi géométrique définie. Nous avons pu éliminer ce phénomène en initiant l'épitaxie sur le substrat de saphir par quelques plans de Mo ($6\text{ à }10\text{ \AA}$), partant de l'observation de l'absence de macles (après recuit) pour les couches Mo/Al₂O₃(11 $\bar{2}$ 0). Enfin, nous rappelons que les relations d'épitaxie entre les plans d'un métal réfractaire cubique centré (MR) et ceux du saphir massif sont uniques : MR(110) || Al₂O₃(11 $\bar{2}$ 0) ; MR(111) || Al₂O₃(0001) ; MR(112) || Al₂O₃(1 $\bar{1}$ 00). D'un point de vue expérimental, nous utilisons des substrats de Saphir, fournis par Union Carbide et par Bicron, sous forme de disques faisant deux pouces de diamètre et d'épaisseur $330 \pm 25\text{ }\mu\text{m}$ et d'impuretés

métalliques ≤ 100 PPM. Ces substrats sont caractérisés par des surfaces vicinales de vicinalité inférieure à 0.3° . Nous avons utilisé le faisceau laser afin de découper ces substrats bruts en échantillons plus petits faisant $6.9\text{ mm} \times 8.9\text{ mm}$ adaptés au porte-substrat employés dans notre dépôt. Les petits substrats sont alors nettoyés puis couverts, sur leur face dépolie, par une couche de W (100-200 nm) déposée par pulvérisation cathodique. Ce dépôt de W permet l'absorption du rayonnement du four à effet Joule. Ce dernier est en effet directement en regard de l'arrière du substrat grâce à une ouverture faite dans le porte-échantillon. Les cibles de métaux simples utilisées, ont une pureté $\geq 99.95\%$. Ces cibles sont polies *ex situ*, puis décapées par le faisceau laser *in situ*.

2.2 Couches tampon à paramètre de maille ajustable

Chaque élément du tableau périodique est caractérisé par une symétrie et un paramètre cristallin propre. Pour obtenir un paramètre arbitrairement intermédiaire, il est connu des matériaux à l'état massif qu'il est possible de réaliser une *solution solide* de deux éléments, c'est à dire un mélange intime à l'échelle atomique. Il est également possible de réaliser des multicouches de période suffisamment faible pour inhiber la formation de dislocations. Nous avons proposé de réaliser un tel système en couche mince, et nous avons réussi à l'obtenir pour le premier couple d'éléments envisagé, W-Mo.

2.2.1 Montage expérimental

On se propose de développer des multicouches en W et Mo à composition variable, notées $W_x\text{Mo}_{1-x}$ ($0 \leq x \leq 1$). Afin de pouvoir ajuster cette composition nous avons utilisé non pas une cible d'un alliage de composition déterminée à l'avance, mais deux cibles distinctes de W et Mo purs. Le dispositif expérimental est schématisé sur la figure 2.2, les moteurs pas à pas étant commandés par ordinateur. Dans un premier temps, on mesure les vitesses de dépôt de W et Mo et on ajuste la puissance laser et sa focalisation sur les cibles afin d'obtenir des vitesses de dépôt v_W et v_{Mo} dans la gamme 0.6 à $1.0 \text{ \AA} \cdot \text{min}^{-1}$. On initie l'épitaxie par quelques plans atomiques de Mo afin d'éviter la formation de macles sur la surface finale (§2.1.2). Ensuite une *séquence alternée* de dépôts de W et Mo est lancée. Elle consiste à déposer le W (ou Mo) en gradients d'épaisseur alternés et inversés, (coins) entre 1 à 10 \AA (Fig. 2.3). Le coin s'étend sur 5 mm au milieu du substrat, les régions de part et d'autre du coin seront constituées de W (ou Mo) pur. Lors du changement

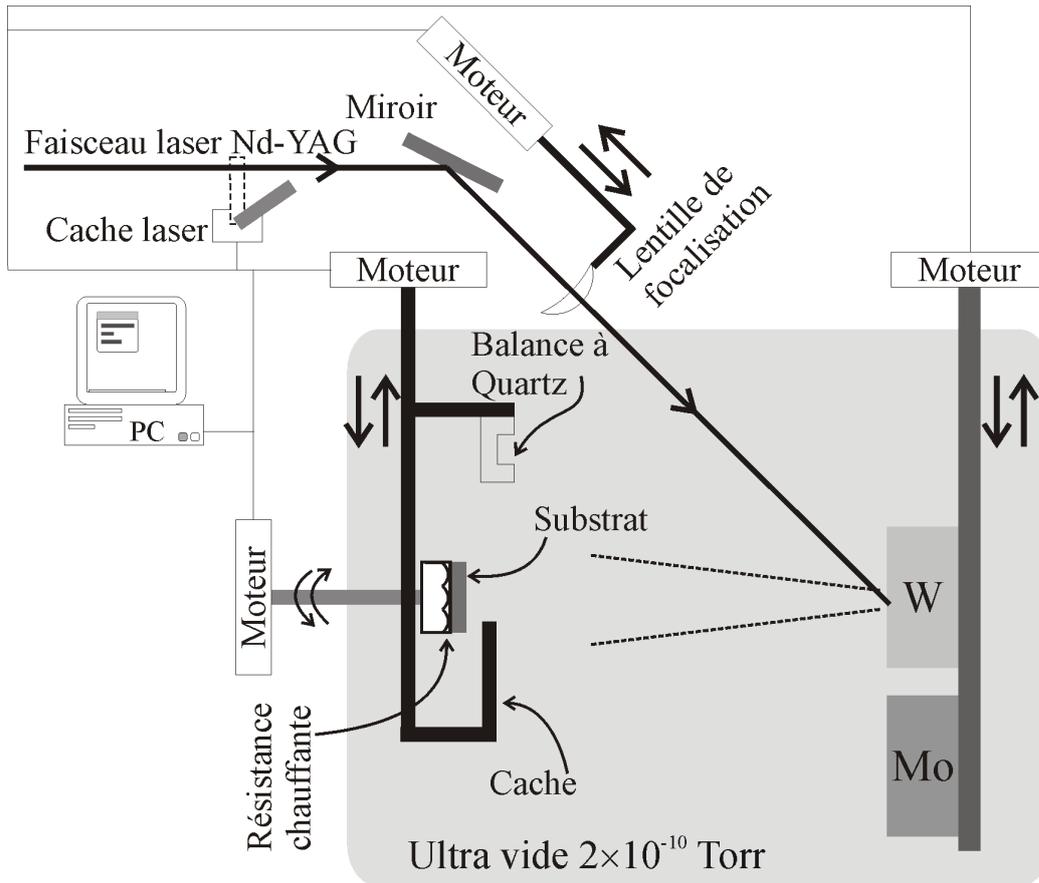


FIG. 2.2 – Dispositif expérimental permettant l'élaboration d'une couche tampon à paramètre continûment variable spatialement. L'automatisation de l'ensemble obturateur/cibles/focalisation du faisceau (devant être adaptée à chaque élément), et son pilotage par ordinateur, permet de produire automatiquement une *séquence* déterminée de W et Mo. Le vide pendant le dépôt est de 2×10^{-10} Torr.

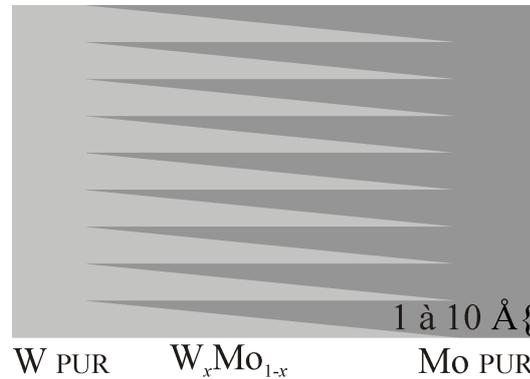


FIG. 2.3 – Représentation schématique d’une couche tampon à paramètre continûment variable spatialement. Les éléments W et Mo sont déposés en coins, entre 0 et 1 à 10 Å, opposés et étendus sur 5 mm le long de la longueur de la couche. Le paramètre de maille varie de droite à gauche entre 3.147 Å, et 3.165 Å.

de cible, le cache laser est fermé, la focalisation est ajustée et l’échantillon est tourné de 180° autour de son axe, ce qui permet d’avoir les coins de W et Mo en opposition. Cette *séquence alternée* est répétée jusqu’à l’obtention d’une couche tampon composite de même épaisseur ($\lesssim 10$ nm) que celle de W (ou Mo) pur présentée ci-dessus. Notons enfin que la température de dépôt au départ est de 340 K pour favoriser le mouillage de saphir, puis elle est montée progressivement (durant 20 min environ) à 470 K afin de favoriser l’épitaxie. À la fin des dépôts la couche finale subit un recuit entre 900 K et 1100 K pendant 30 min environ.

2.2.2 Couche tampon à paramètre de maille intermédiaire

Dans un premier temps nous avons réalisé un mélange intime des deux éléments purs W et Mo, en alternant les dépôts de Mo et W avec une période de 1 HA de chaque élément. Ceci nous a permis de développer une couche tampon $W_{0.5}Mo_{0.5}$.

Les diagrammes RHEED obtenus sur cette couche (Fig. 2.4a) montrent des raies très fines, signe d’une surface très plate. Également la microscopie STM nous atteste que cette couche est vicinale et donc atomiquement plate localement (Fig. 2.4b) présentant des terrasses atomiques de largeur moyenne 160 nm.

Afin de sonder son paramètre de maille, nous avons ensuite caractérisé cette couche tampon de mélange ainsi que des couches de W(110) et Mo(110)

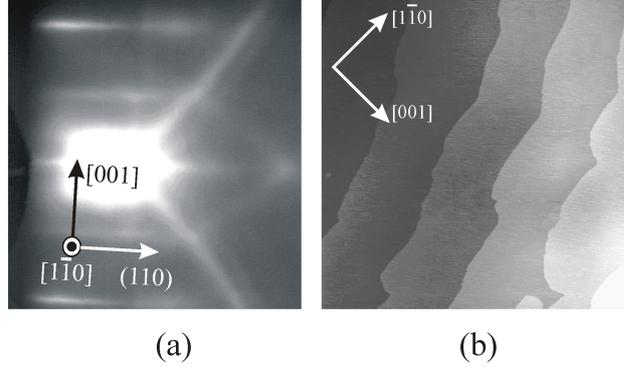


FIG. 2.4 – Caractérisation d’une couche tampon à paramètre de maille intermédiaire $W_{0.5}Mo_{0.5}$. (a) Diagramme RHEED, après recuit. (b) Image STM ($750 \text{ nm} \times 750 \text{ nm}$).

pures par diffraction de rayons X en géométrie $\theta - 2\theta$ sur un diffractomètre sans monochromateur au LLN. La source de rayons X est une anode en cuivre, de longueurs d’onde $\lambda(\text{Cu})_{K\alpha_1} = 1.544390 \text{ \AA}$ et $\lambda(\text{Cu})_{K\alpha_2} = 1.540562 \text{ \AA}$. Pour le W et le Mo purs nous avons retrouvé la valeur du paramètre de maille massif (3.165 \AA et 3.147 \AA , respectivement) dans l’erreur expérimentale, inférieure à 0.003 \AA . Ceci souligne la qualité des couches et l’absence de microstructure contraignante. Nous avons ensuite constaté qu’une couche de composition $W_{0.5}Mo_{0.5}$ présente effectivement un paramètre de maille $3.157 \pm 0.003 \text{ \AA}$, intermédiaire entre les deux valeurs d’éléments purs W et Mo.

On peut expliquer cette valeur en examinant la densité d’énergie élastique accumulée dans cette couche. Cette densité, pour un matériau cubique, s’écrit sous la forme (voir Eq.2.5 dans [Sander 1999])

$$f_{\text{él}} = \frac{1}{2}C_{11}(\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2 + \epsilon_3^2) + C_{12}(\epsilon_1\epsilon_2 + \epsilon_2\epsilon_3 + \epsilon_1\epsilon_3) + \frac{1}{2}C_{44}(\epsilon_4^2 + \epsilon_5^2 + \epsilon_6^2) \quad (2.1)$$

où C_{11} , C_{12} et C_{44} sont les constantes élastiques de rigidité du matériau considéré (ici W et Mo, voir Tab. 2.1). Les ϵ_i ($1 \leq i \leq 3$) représentent les déformations selon les trois axes principaux de la maille cubique centrée, alors que ϵ_i ($4 \leq i \leq 6$) sont les déformations de cisaillement supposées nulles dans notre modèle. En supposant des déformations isotropes telles que $\epsilon_1 = \epsilon_2 = \epsilon_3 = (a - a_{\text{Mo}})/a_{\text{Mo}} = a/a_{\text{Mo}} - 1$ (resp. pour W), et tenant compte de la composition d’une couche W_xMo_{1-x} nous écrivons la densité d’énergie élastique sous la forme

$$f_{\text{él}}(x) = x f_{\text{él}}^{\text{W}} + (1 - x) f_{\text{él}}^{\text{Mo}} \quad (2.2)$$

$$f_{\text{el}}(x) = x\alpha_{\text{W}}(a - a_{\text{W}})^2 + (1 - x)\alpha_{\text{Mo}}(a - a_{\text{Mo}})^2 \quad (2.3)$$

avec

$$\alpha_{\text{Mo}} = \left(\frac{3}{2}C_{11}^{\text{Mo}} + 3C_{12}^{\text{Mo}} \right) / a_{\text{Mo}}^2 \quad (2.4)$$

$$\alpha_{\text{W}} = \left(\frac{3}{2}C_{11}^{\text{W}} + 3C_{12}^{\text{W}} \right) / a_{\text{W}}^2 \quad (2.5)$$

Cette densité d'énergie devrait atteindre son minimum pour le paramètre de maille relaxé $a_{\text{W}_x\text{Mo}_{1-x}} = a(x)$. Ce qui implique

$$a(x) = \frac{x\alpha_{\text{W}}a_{\text{W}} + (1 - x)\alpha_{\text{Mo}}a_{\text{Mo}}}{x\alpha_{\text{W}} + (1 - x)\alpha_{\text{Mo}}} \quad (2.6)$$

En fait cette expression donnerait un paramètre de maille pour la couche composite qui varie presque linéairement en fonction de x . Une telle variation linéaire, dite de Vegard, a été retrouvée, par exemple, par Friot et *coll.* [Friot et *coll.* 2000] sur une couches composites de M_xV_{1-x} (M=Fe ou Nb) préparées par épitaxie par jet moléculaire. En particulier pour la couche $\text{W}_{0.5}\text{Mo}_{0.5}$ ($x = 0.5$), nous trouvons finalement un paramètre de maille $a(0.5) = a_{\text{W}_{0.5}\text{Mo}_{0.5}} = 3.157 \text{ \AA}$, en bon accord avec le résultat expérimental ci-dessus.

Élément	C_{11} (GPa)	C_{12} (GPa)
Mo	465	163
W	517	203

TAB. 2.1 – Constantes élastiques pour W et Mo [Sander 1999].

2.2.3 Couches tampon à paramètre continûment variable

Afin d'atteindre nos objectifs, nous avons élaboré des couches tampon à paramètre continûment variable, entre celui de Mo et celui de W. Expérimentalement, nous procédons selon la méthode expliquée ci-dessus (§2.2.1). Ceci nous permet d'obtenir une couche tampon à composition variable spatialement (Fig. 2.3).

Nous avons, ensuite, caractérisé cette couche par diffraction de rayons X en géométrie $\theta/2\theta$ sur un diffractomètre au laboratoire de cristallographie dédié aux études de diffraction de rayons X en incidence rasante. La source

de rayons X est une anode en fer de longueurs d'ondes $\lambda(\text{Fe})_{\text{K}\alpha_1} = 1.93600 \text{ \AA}$ et $\lambda(\text{Fe})_{\text{K}\alpha_2} = 1.93998 \text{ \AA}$. Nous avons subdivisé une couche à gradient en quatre morceaux afin de sonder leurs paramètres de maille. La figure 2.5 présente les raies (110) obtenues, ainsi que la raie (11 $\bar{2}$ 0) du substrat de saphir prise comme référence. La présence d'oscillations de type Kessing confirme une très bonne qualité monocristalline et la planarité des couches. En regardant ces raies de plus près on constate que la position du pic central, caractéristique du paramètre de maille, change d'une courbe à l'autre. Du fait que la couche sondée par rayons X est d'épaisseur finie, l'intensité diffractée attendue est proportionnelle à $\sin^2(Ndu)/\sin^2(du)$ où N est le nombre de plans $\text{W}_x\text{Mo}_{1-x}$ (110) de la couche, d la distance interréticulaire et $u = 2\pi \sin(\theta)/\lambda$ avec $\lambda = 1.93799 \text{ \AA}$, la valeur moyenne des longueurs d'onde des deux raies $\text{K}\alpha_1$ et $\text{K}\alpha_2$ de l'anode en Fe. L'analyse de ces courbes donne les paramètres de maille suivants à 0.003 \AA près :

- $x = 0$ (coté Mo pur. Fig. 2.5a) : $a = 3.147 \text{ \AA}$
- $0 < x < 0.5$ (Fig. 2.5b) : $a = 3.155 \text{ \AA}$
- $0.6 < x < 0.9$ (Fig. 2.5c) : $a = 3.164 \text{ \AA}$

et une épaisseur de $40 \pm 2 \text{ HA}$ ($\simeq 9 \text{ nm}$). Ces mesures expérimentales sont reportées sur la figure 2.6 qui montre également la variation attendue du paramètre de maille de la couche tampon composite en fonction de sa composition en W (selon Eq.2.6).

Ainsi nous sommes capables de faire varier continûment le paramètre d'une couche tampon, accomplissant à cet étape notre premier objectif.

2.3 Interface chimique

2.3.1 Principe

Maintenant que nous sommes capable de faire varier le paramètre de maille, on va répondre dans la suite à la question suivante : comment peut-on imposer une espèce chimique présente à l'interface du matériau magnétique actif, tout en conservant le paramètre cristallin imposé par la couche tampon décrite dans le paragraphe précédent. Pour ceci nous avons recouvert les couches tampon d'une couche ultramince d'un élément pur, d'épaisseur 1 nm (soit 5 plans atomiques) afin de rester dans le régime de croissance dit *pseudomorphe*, c'est à dire où le matériau déposé adopte, dans le plan, exactement le paramètre cristallin de la couche inférieure. De plus, il est indispensable de prouver d'une part que l'élément déposé a formé une couche parfaitement plate, et d'autre part qu'il ne s'est pas mélangé en surface avec

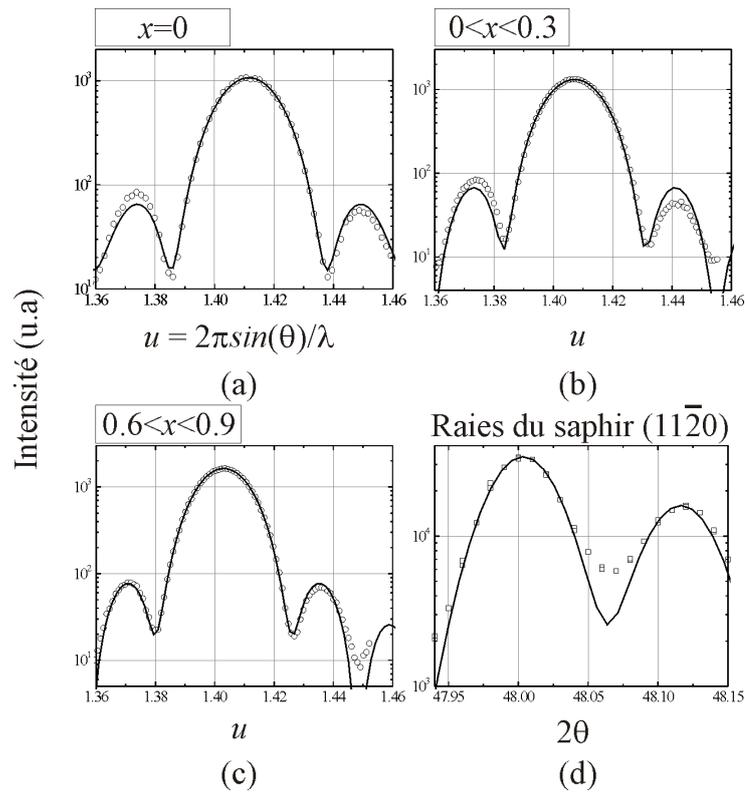


FIG. 2.5 – Raies (110) de trois parties d'une couche tampon W_xMo_{1-x} : (a) $x = 0$ (coté Mo pur) (b) $0 < x < 0.3$ et (c) $0.6 < x < 0.9$. (d) montre les raies ($11\bar{2}0$), $K_{\alpha 1}$ et $K_{\alpha 2}$, du substrat de saphir prise comme référence pour l'angle θ .

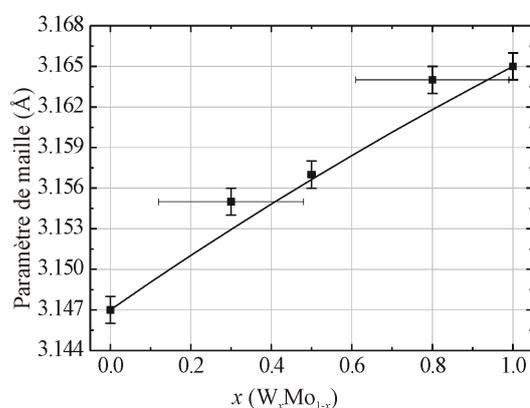


FIG. 2.6 – Paramètre de maille d’une couche à paramètre cristallin continûment variable, en fonction de la composition x en W [carrés pleins : expériences ; courbe continue : modèle (voir Eq.2.6)]. Nous avons caractérisé quatre parties d’une couche à paramètre continûment variable spatialement, d’où des barres d’erreur horizontales représentant la taille de ces parties.

la couche tampon, créant une surface d’alliage. En effet, les phénomènes de ségrégation de surface et d’échange atomique sont courants en croissance.

2.3.2 Analyse par spectroscopie Auger

Pour analyser un éventuel mélange nous avons utilisé la spectroscopie Auger *in situ*, technique permettant de quantifier les proportions de chaque élément, et ceci en ne sondant que les quelques derniers plans atomiques, c’est à dire la zone qui nous intéresse. Comme système test nous avons recouvert une couche tampon de Mo par une couche de W déposé à température ambiante. Le protocole expérimental est le suivant (voir Fig. 2.7) :

Une couche tampon de Mo pur est préparée sur un substrat de saphir selon la méthode décrite précédemment (§2.1.2). Une partie (5 mm de la longueur) de cette couche tampon de Mo est ensuite couverte par une couche ultramince de W en gradient d’épaisseur entre 0 et 20 Å ($4 \text{ Å} \cdot \text{mm}^{-1}$), déposée à température ambiante. Une partie (2 mm de la longueur) de l’échantillon est préservé sans couverture, et la dernière partie est couverte par 10 nm de W. La surface de cet échantillon est étudiée ensuite, point par point, par spectroscopie Auger. Tous les signaux sont pris sur une même gamme d’énergie [100 eV-300 eV] par pas de 0.5 eV. L’énergie des électrons incidents est de 5000 eV. Pratiquement nous pouvons déplacer l’échantillon devant le canon à électrons par pas de 0.01 mm, ce qui correspond à 0.04 Å de W déposé. Nous pouvons distinguer les positions des deux extrémités du coin de

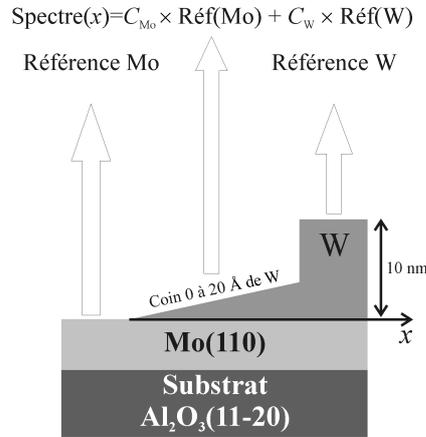


FIG. 2.7 – Schéma d’une couche dédiée à l’étude quantitative par spectroscopie Auger. Le coin de W est déposé à température ambiante. La partie de Mo non couverte et la partie couverte par une grande quantité de W servent à mesurer les signaux Auger de référence de Mo et W respectivement.

W grâce à une légère variation de l’intensité du signal Auger lors du passage de la partie W pur, respectivement Mo pur, vers le coin, et ceci à 0.01 mm près.

Les deux parties en Mo pur et W pur nous fournissent les deux spectres Auger de référence de Mo (noté réf_{Mo}) et W (noté réf_{W}) (voir Fig. 2.9 page 45). D’autres spectres [notés $\text{spectre}(x)$] sont mesurés en fonction de la quantité, x , de W déposée (x allant de 0 à 20 Å). Le signal mesuré en un point du coin de W, provient, *a priori*, des deux éléments Mo et W. Nous l’assimilons à une combinaison linéaire des deux spectres Auger de référence de ces deux éléments :

$$\text{spectre}(x) = C_{\text{Mo}}(x)\text{réf}_{\text{Mo}} + C_{\text{W}}(x)\text{réf}_{\text{W}}. \quad (2.7)$$

Afin de traiter les signaux mesurés, j’ai développé un programme dans l’environnement de programmation orientée objet de Borland DELPHI professionnel¹. Le code permet la déduction des spectres Auger par dérivation de signaux bruts mesurés, leur correction et/ou lissage, puis de déduire les intensités $C_{\text{Mo}}(x)$ de Mo et $C_{\text{W}}(x)$ de W, présentes dans chacun des spectres. Chaque signal Auger brut est dérivé dans un premier temps. Puis un fond parabolique est soustrait de chaque spectre (voir Fig.2.8a-b). La figure 2.8c présente un exemple de spectre obtenu par cette méthode et reproduit par une combinaison linéaire des deux références de W et Mo.

¹Borland DELPHI professionnel, version 6.0, Build 6.163, Copyright ©1983-2001, Borland Software Corporation.

La figure 2.9 présente les deux spectres de référence de W et Mo, ainsi que quelques spectres sur des points intermédiaires du coin de W. La quantité de W déposée diminue en parcourant les figures de haut en bas et de gauche à droite. Remarquons comment les intensités des pics caractéristiques du Mo (à 220 eV et 186 eV par exemple) varient en parcourant les différents spectres. Le changement d'intensité est plus clair sur la figure 2.10 où l'intensité des différents pics de Mo et W, pour tous les spectres, est représenté par une teinte de gris. Par notre code nous sommes capable de reproduire les différents spectres par combinaison linéaire des deux spectres de références.

La variation des coefficients $C_{\text{Mo}}(x)$ et $C_{\text{W}}(x)$ est représentée dans la figure 2.12 (symboles carrés). Du fait de la forte température de fusion de ces deux éléments et du fait que la surface bcc(110) est dense et donc peu sujette aux échanges atomiques, nous supposons qu'il n'y a pas de ségrégation à l'issue du dépôt à température ambiante. *Cette courbe constitue donc une référence d'un état non mélangé.* On constate alors qu'après quelques plans de W déposés on ne distingue quasiment plus le signal du Mo, enterré sous la surface. Un recuit est ensuite indispensable pour obtenir une surface parfaitement lisse (Fig. 2.11). L'acquisition et l'analyse de nouveaux spectres Auger, après ce recuit, montrent des intensités inchangées (Fig. 2.12), ce qui prouve que le lissage de la surface s'est effectué sans ségrégation de Mo vers la surface. Nous avons donc pu obtenir une couche tampon terminée par du W pur. La figure 2.13 montre différentes images STM à différents points du coin de W. On remarque que la surface de la couche d'interface est atomiquement plate pour des épaisseurs dans la gamme 1 à 2 HA HA.

Reste à savoir si cette couche d'interface est effectivement pseudomorphe. La figure 2.14 montre les diagrammes RHEED obtenus sur une couche à paramètre variable, avec et sans interface. Il s'agit d'une interface de Mo. Les raies fines observées montrent qu'on a une surface plate mais à cause de la limitation de la résolution de notre RHEED les positions relatives de ces raies ne peuvent pas confirmer que la couche d'interface est pseudomorphe.

2.4 Conclusion

Nous avons montré dans ce chapitre comment éliminer les macles dans une couche tampon de $\text{W}(110)/\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$. Ensuite nous avons présenté notre approche originale d'élaboration de couches tampon à paramètre cristallin ajustable; le paramètre de maille est spatialement variant. Nous avons démontré par analyse par microspectroscopie Auger et par STM qu'il est possible de couvrir la couche tampon par une fine couche d'interface de W (ou Mo) (d'épaisseur 1 à 2 HA) et que cette couche est atomiquement plate

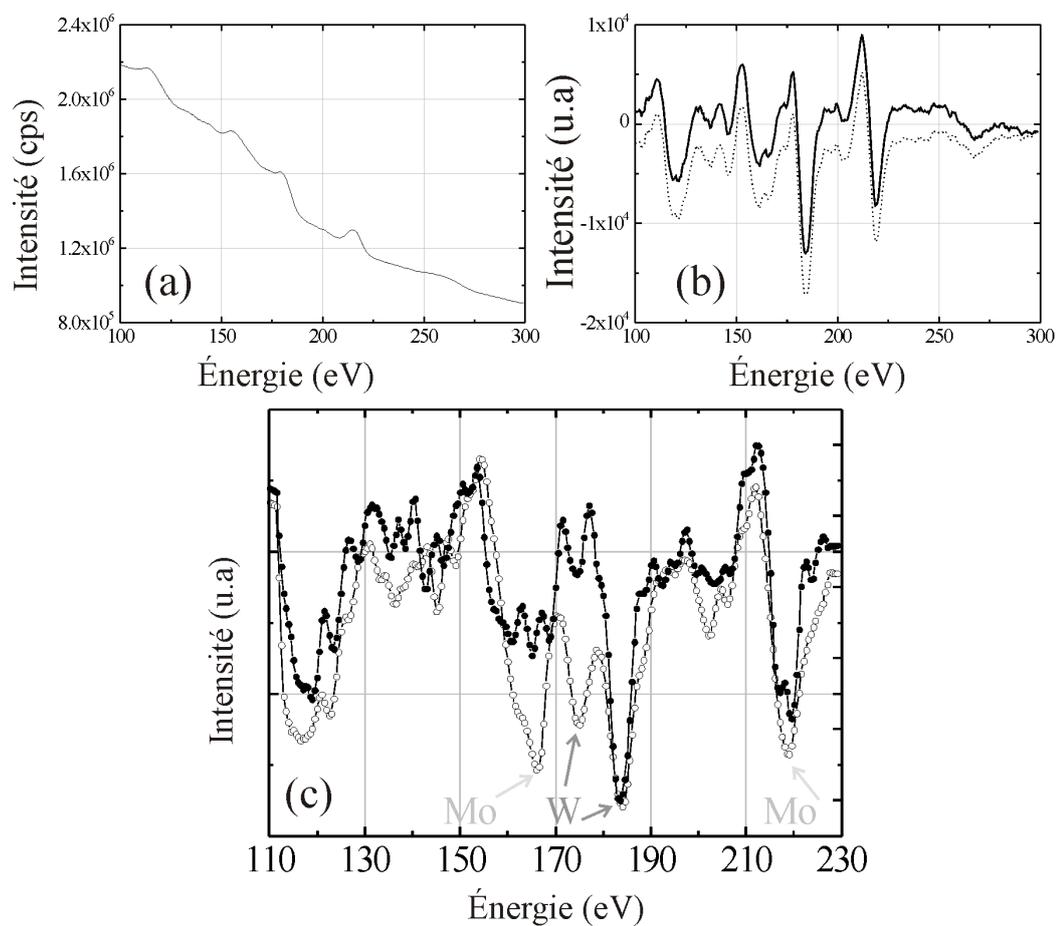


FIG. 2.8 – (a) Signal Auger brut mesuré sur une position du coin de W. (b) Le spectre Auger (courbe pointillée) obtenu par dérivation de (a) et par dérivation et soustraction d'un fond parabolique (courbe continue). (c) Un spectre Auger sur une position du coin (\bullet) présentant les pics de W et Mo, et sa reproduction (\circ) par combinaison linéaire en fonction des deux références de W et Mo (Eq. 2.7).

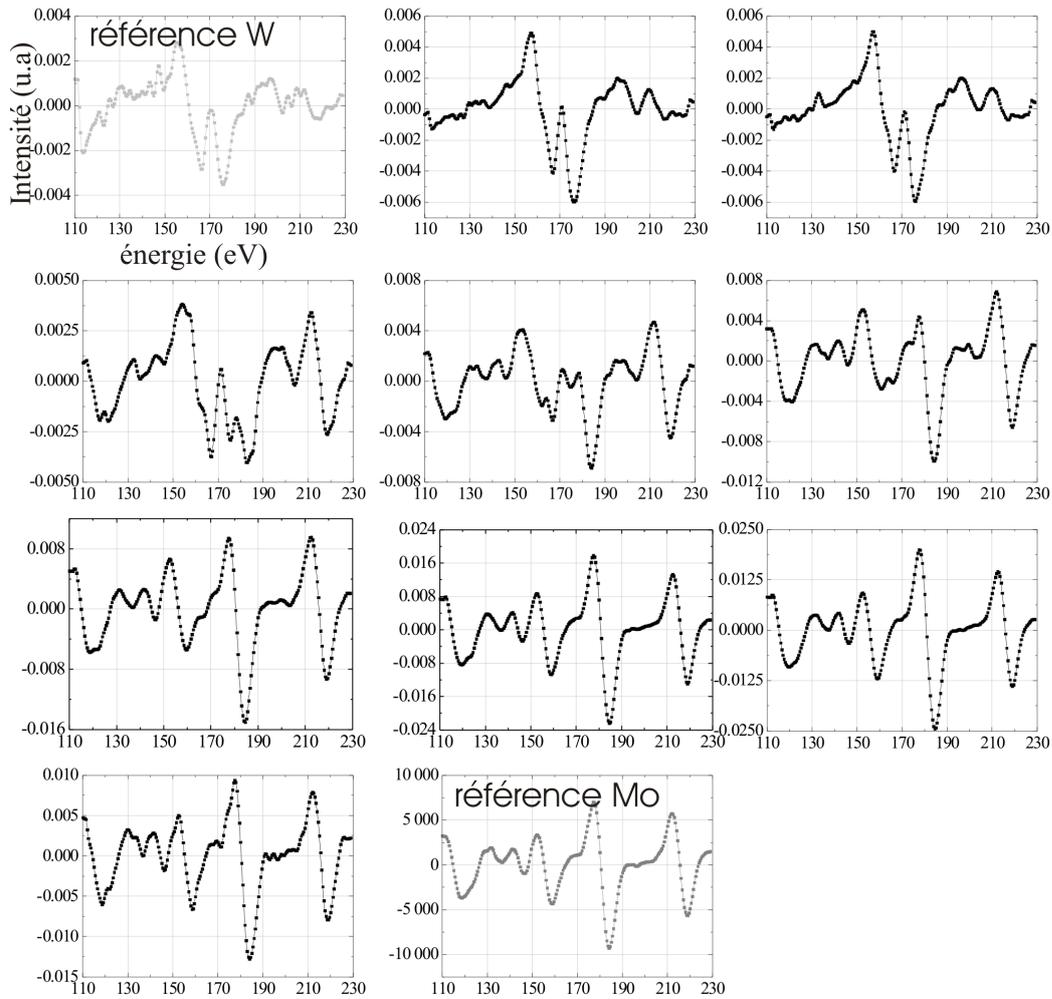


FIG. 2.9 – Spectres Auger sur différentes positions de la couche d'interface (Fig. 2.7). De haut en bas et de gauche à droite on balaie le coin de W en partant de l'épaisseur la plus grande. Remarquons comment les pics caractéristiques de W et Mo changent entre ces différents spectres.

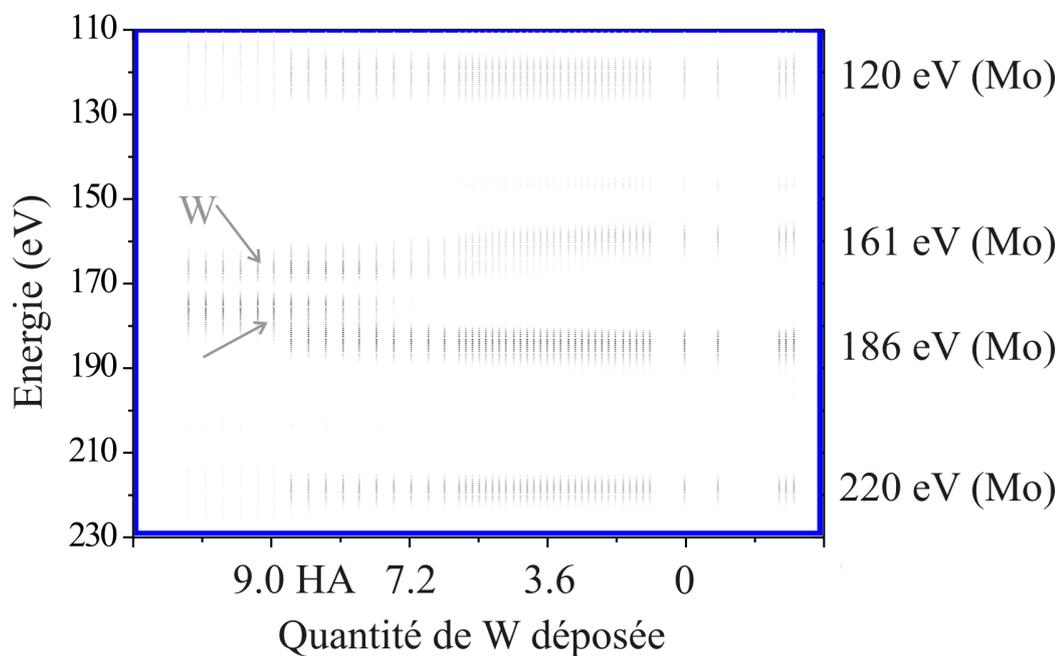


FIG. 2.10 – Schéma des différents spectres Auger. L'axe horizontal représente la position sur la couche (Fig. 2.7), tandis que l'axe des ordonnées est celui de l'énergie en (eV). Le dégradé de gris représente les intensités des spectres Auger.

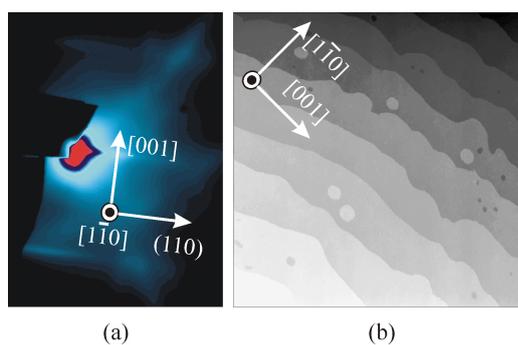


FIG. 2.11 – (a) Diagramme RHEED et (b) image STM $800 \text{ nm} \times 800 \text{ nm}$ d'une couche tampon à paramètre variable, avec interface de Mo.

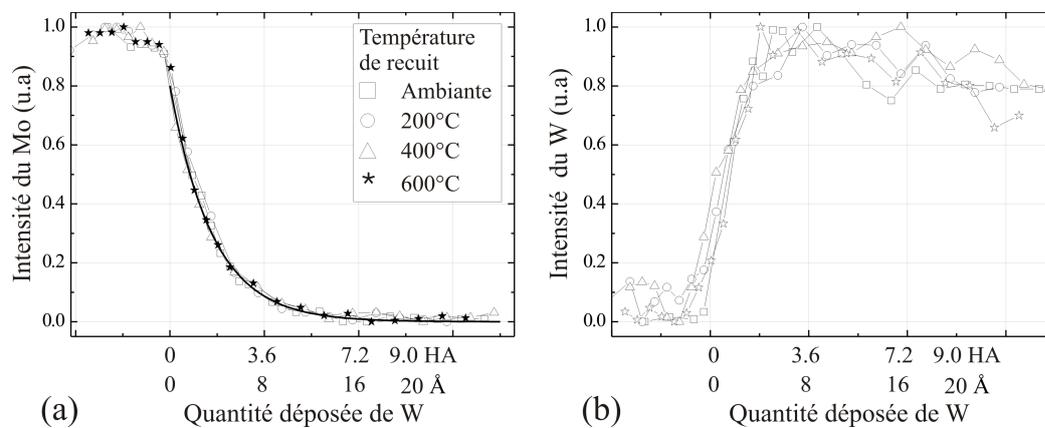


FIG. 2.12 – (a) Intensité du signal Auger due au Mo en fonction de la quantité de W déposée (mesurée en HA et en Å). (b). Intensité Auger due au W.

et pseudomorphe. Ceci nous permet un contrôle indépendant des deux paramètres : le paramètre de maille et l'interface.

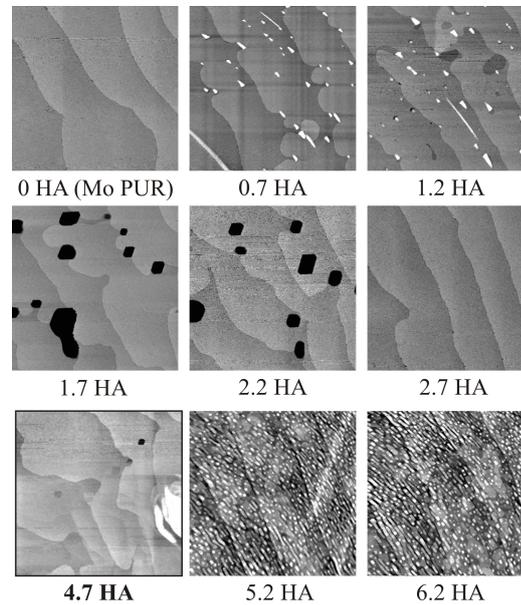


FIG. 2.13 – Images STM ($600 \text{ nm} \times 600 \text{ nm}$), après recuit à 600°C , d'une couche d'interface W déposée à température ambiante, en coin sur Mo(110). Les images sont prises sur différents points du coin de W. Les régions noires représentent des trous de profondeur 2 à 7 nm.

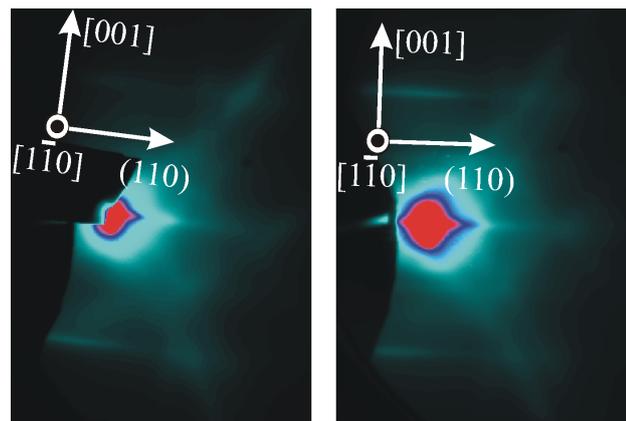


FIG. 2.14 – Diagramme RHEED sur une couche à paramètre variable (a) avec et (b) sans interface de Mo.

Chapitre 3

Croissance de bandes auto-organisées de Fe (110)

Nous avons pu utiliser le réseau régulier de marches atomiques naturellement présent à la surface de nos couches tampon pour nucléer par recuit des structures auto-organisées en bandes épaisses exclusivement en bord de marche. Dans ce chapitre nous étudions la croissance et la morphologie de ces bandes. Nous cherchons à comprendre le mécanisme de cette croissance, et à étudier, séparément, les effets du désaccord paramétrique et de l'interface chimique sur la morphologie de ces structures.

3.1 Bandes auto-organisées de Fe/W(110) dans la littérature

Nous avons montré dans le chapitre 1 (§1.2) comment les atomes arrivent à s'ordonner sur une surface de façon à former des nanostructures artificielles auto-organisées. En particulier des bandes relativement ordonnées peuvent être élaborées par *décoration de marches* sur des surfaces vicinales de certains métaux et semiconducteurs [Wagner 1979, Hanzler et Rank 1993]. Afin d'obtenir les marches les plus droites possibles, on doit sélectionner l'orientation azimutale la plus stable, consistant généralement en des rangées les plus compactes d'atomes. L'auto-organisation sur de telles surfaces a permis, plus précisément, de fabriquer des chaînes unidimensionnelles artificielles de matériaux magnétiques, comme le Fe/Cu(111) [Shen et *coll.* 1997] et le Co/Pt(997) [Gambardella et *coll.* 2000]. Ces chaînes artificielles permettent d'étudier expérimentalement le magnétisme à une dimension. En effet les propriétés magnétiques à faible dimension dépendent de la taille et la forme des structures étudiées [Gradmann 1993]. Cette dépendance a été mis en

évidence par des recherches sur le système Fe/W, menées par H. J. Elmers et *coll.* [Elmers et *coll.* 1994]. Les relations entre magnétisme et morphologie sont étudiées dans le système Fe(110)/W(110) en employant la diffraction d'électrons de faible énergie polarisés en spin (SPLEED) et le STM. L'équipe a trouvé qu'à 600 K se forment des bandes le long des marches atomiques de W. Ces bandes sont ferromagnétiques avec T_C décroissante de 225 K près de $\Theta = 1$ MC à 180 K près $\Theta = 0.1$ MC. Des nanobandes auto-organisées de Fe/W(110) ont été également étudiées par J. Hauschild, U. Gradmann et H. J. Elmers [Hauschild et *coll.* 1998]. Ils ont utilisé un substrat vicinal de W(110) présentant des marches atomiques selon [001] et de largeur de terrasse 9 nm. Cette largeur a été choisie pour éviter la formation de dislocations de rattrapage dans la seconde monocouche de Fe, puisque la largeur critique de cette formation est justement de 9 nm [Jensen et Reshöft 1996]. Ils ont obtenu des nanobandes pseudomorphes de hauteur 2 MC et exempte de dislocations de rattrapage, d'après investigation par STM, alternées avec la monocouche pseudomorphe de Fe. Ces bandes sont ensuite étudiées *in situ* par magnétométrie à effet Kerr. Un ordre ferromagnétique est observé à 165 K. Pour un taux de couverture entre 1.4 HA et 1.8 HA, où les bandes à 2 HA sont dominantes. Ils ont trouvé une anisotropie magnétique perpendiculaire dans les bandes à 2 MC avec une interaction antiferromagnétique entre bandes d'origine magnétostatique. Cet ordre antiferromagnétique peut être basculé en un ordre ferromagnétique en appliquant un champ magnétique faible. Dans une étude expérimentales précédente [Hauschild et *coll.* 1998a] ces mêmes auteurs ont étudié un réseau de bandes de Fe, de hauteur 1 HA, obtenues par décoration de marches parallèles à [001] sur W(110). Les mesures magnétiques par effet Kerr ont montré que d'une part l'axe de facile aimantation est planaire et perpendiculaire aux bandes, du fait de la forte anisotropie d'interface, et d'autre part que ces bandes ont une température de Curie $T_c = 180$ K.

Dans tous les cas la température de Curie est donc inférieure à la température ambiante, ce qui s'explique par la faible dimensionnalité des systèmes en bandes présentés ci-dessus.

Motivés par les propriétés magnétiques de ces bandes, nous cherchons à augmenter leur volume afin vaincre l'absence de ferromagnétisme, ou le superparamagnétisme déjà observé sur les bandes Fe/Mo(110) [Jubert 2001] et sur celles de Fe/W(110) [Hauschild et *coll.* 1998a]. Les bandes de hauteur 1.2 nm obtenues par P.O. Jubert [Jubert 2001] (voir §1.4.3 page 27) ne présentait pas de rémanence à 300 K, probablement du fait de l'épaisseur insuffisante, combinée à la dimensionnalité 1D de bandes. Pour tenter de modifier l'épaisseur des bandes nous avons utilisé les diverses couches tampon que nous avons développées, ce que nous rapportons dans ce chapitre.

3.2 Le système Fe/W(110)

3.2.1 Bandes auto-organisées épaisses de Fe/W(110)

Une couche tampon de W(110) est tout d'abord élaborée sur un substrat vicinal de Saphir $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ selon le procédé expliqué au chapitre précédent. Rappelons que l'épaisseur de cette couche de W(110) est $\simeq 9$ nm, qu'elle est caractérisée par le paramètre de maille du W massif, et qu'elle est, elle aussi, vicinale et présente des marches atomiques à cause de la désorientation de l'angle de coupe du substrat de saphir. Le substrat utilisé ici est du même type employé pour la couche de la figure 2.11 (page 46) ; par conséquent la largeur moyenne de terrasses présentes à la surface de la couche tampon de W(110) ici est $\simeq 100 \pm 14$ nm. Le Fe est déposé ensuite à 500 K suivi d'un recuit à 725 K, et enfin couvert par une couche de 9 nm de Mo afin de contrôler l'anisotropie magnétique de la couche de Fe et de la protéger contre l'oxydation. En fait dans les couches minces magnétiques la symétrie est brisée à l'interface ce qui influence l'anisotropie magnétique et en particulier une interface Mo/Fe(110) favorise un axe de facile aimantation planaire selon la direction [001] (voir plus loin §4.2 page 80 et la figure 4.5 page 82). Par imagerie AFM (Fig. 3.1) nous constatons que le Fe est auto-organisé en bandes régulièrement espacées, à peu près continues.

L'analyse de ces images nous montre que les bandes de Fe/W(110) sont de hauteur moyenne 5.5 nm, de largeur 110 ± 12 nm, et de distance entre bandes (bord à bord) 80 ± 25 nm. Pour tous les échantillons à bandes fabriqués, cette période est identique à celle des marches observées sur le même substrat sur la couche tampon sans dépôt de Fer. L'orientation est également identique. Ceci laisse penser que chaque marche atomique de la couche tampon permet de nucléer une et une seule bande de Fer. Cette indication est confrontée par l'observation de sillons à la surface de la couche de Fer avant recuit [Fruchart et *coll.* 2004a], avec les mêmes période orientation. La hauteur de ces bandes ne dépend pas de la quantité de Fe déposée ; une quantité de Fe déposé plus grande implique la formation de bandes plus larges (voir Fig. 3.6 plus loin en page 60). Ceci fait penser à une épaisseur magique [Luca et *coll.* 1999, R.Otero et *coll.* 2002], dont nous discuterons les possibles origines physiques dans la suite.

3.2.2 Estimation des déformations

Afin de caractériser précisément les déformations élastiques dans ces bandes nous avons effectué des mesures *ex situ* par diffraction de rayons X. Ces expériences ont été réalisées au laboratoire de Cristallographie de

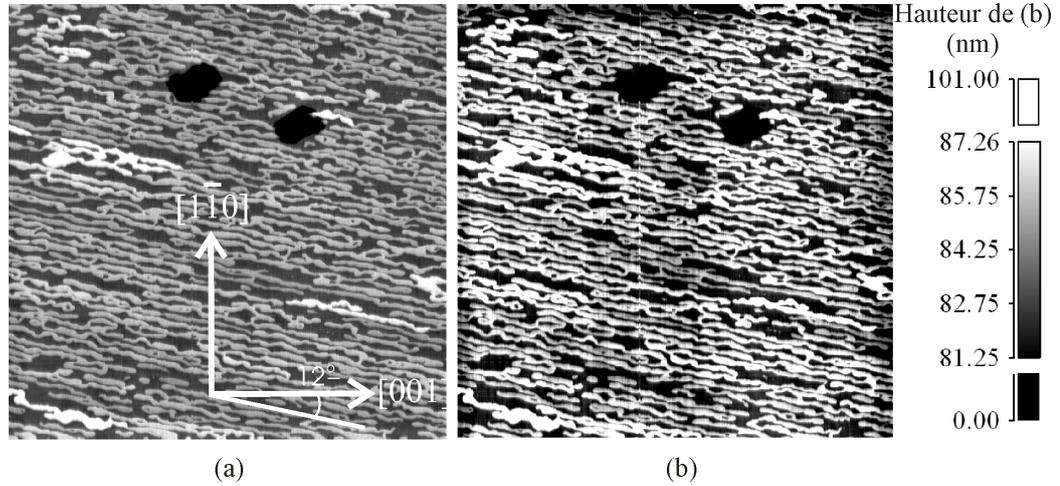


FIG. 3.1 – Image AFM ($10\ \mu\text{m} \times 10\ \mu\text{m}$) montrant la croissance en bandes auto-organisées de Fe/W(110) de hauteur moyenne 5.5 nm. Ici une quantité de 2.5 nm de Fe est déposé à 500 K et recuit à 725 K pendant 30 min. La surface de l'échantillon est recouverte par 9 nm de Mo afin de contrôler son anisotropie magnétique et de la protéger contre l'oxydation. Les trous observés ici (en noir) ont une profondeur moyenne 58 nm et une taille latérale $\simeq 1.200\ \mu\text{m} \times 0.700\ \mu\text{m}$. (b) La même image avec contraste ajusté afin de montrer la hauteur de ces bandes. L'échelle en teint gris à droite représente les hauteurs entre 81.25 nm et 87.26 nm.

Grenoble (CNRS) en collaboration avec Luc Ortega et Annick Liénard, sur un diffractomètre quatre cercles dédié à l'analyse de texture. La source de rayons X est une anode en Fe. Le diffractomètre est muni d'un monochromateur en graphite permettant de sélectionner les deux longueurs d'onde du Fe $\lambda(\text{Fe})_{\text{K}\alpha 1} = 1.93600\ \text{\AA}$ et $\lambda(\text{Fe})_{\text{K}\alpha 2} = 1.93998\ \text{\AA}$ dont la valeur moyenne, employée, plus loin, dans l'analyse des raies mesurés est $\bar{\lambda} = 1.93799\ \text{\AA}$. La figure 3.2 présente un schéma de la géométrie du diffractomètre, montrant les axes de rotation possibles et la nomenclature des angles importants. Ce diffractomètre nous permet de travailler en deux géométries : $\theta/2\theta$ et en incidence rasante où l'angle des rayons X incident avec le plan de diffraction est noté φ et l'angle de de diffraction est noté $\chi = 2\varphi$.

Les rayons X incidents se trouvent dans un plan horizontal. L'échantillon est monté, de sorte que sa surface soit dans un plan vertical, sur un porte-échantillon muni de deux vis spéciales permettant de le faire tourner autour de deux axes planaires orthogonaux. Le réglage de ces vis permet d'ajuster la verticalité de la surface en regardant une tache lumineuse envoyée horizontalement et réfléchiée sur la surface de l'échantillon.

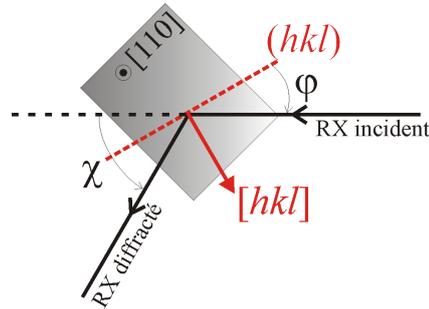


FIG. 3.2 – Diffraction de rayons X en incidence rasante sur la surface (110) d'un échantillon. φ est l'angle d'incidence sur un plan (hkl) , et $\chi = 2\varphi$ est l'angle de diffraction.

La référence de l'angle d'incidence rasante φ (Fig. 3.2) est ajustée dans un premier temps en positionnant le photodétecteur en face des rayons X incidents (l'échantillon étant préalablement reculé) et mesurant l'intensité en fonction de l'angle d'incidence φ (ou $\chi = 2\varphi$). Le maximum de cette intensité nous indique la référence $\varphi = 0$. Dans un second temps, nous avons fixé φ à cette valeur de référence et nous avons cherché la raie $(11\bar{2}0)$ du saphir afin de repérer la référence de l'angle θ . Cette raie est présentée sur la figure 3.3. Dans cette figure on distingue deux pics correspondant aux deux longueurs d'onde de rayons X employés, et on constate en particulier la position exacte du pic $K_{\alpha 1}$ qui vaut $(\theta = 24.006 \pm 0.001^\circ)$. Les largeurs des pics sont dûes aux fentes utilisées à la sortie de l'anode de rayons X et devant le photodétecteur.

Nous montrons sur la figure 3.4, les raies de Fe (002), $(\bar{1}10)$, $(\bar{1}12)$ obtenues en incidence rasante, et la raie Fe (110) mesurée en configuration $(\theta/2\theta)$. L'analyse de ces raies nous a permis de déduire les distances interréticulaires des plans cristallographiques $(\bar{1}10)$, (002) et $(\bar{1}12)$. Les angles de diffraction sont déduits des raies en incidence rasante en assimilant ces raies à des fonctions gaussiennes. Pratiquement nous avons utilisé un diaphragme devant le photodétecteur. Il s'agit de fentes dites de Sollers d'ouverture 0.40° . En regardant les largeurs à mi-hauteur des raies mesurées (Fig. 3.4) on constate qu'elles sont exactement imputables à l'ouverture de cette fente [0.40° pour la raie Fe(002), 0.32° pour la raie Fe $(\bar{1}10)$ et de 0.43° pour la raie Fe $(\bar{1}12)$]. L'élargissement des raies expérimentales lié à la cohérence cristalline finie est donc négligeable et ne peut être déterminée. La borne supérieur de cet élargissement supplémentaire est $\simeq 0.13^\circ$. Concernant la raie Fe(110) la largeur du pic est au contraire directement imputable à la cohérence cristalline, que l'on estime à 5.5 nm, en très bon accord avec l'épaisseur des bandes me-

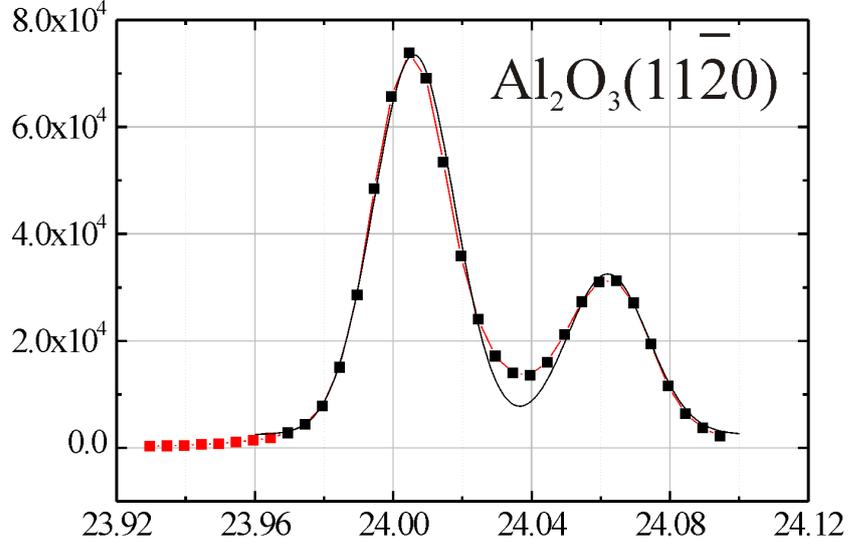


FIG. 3.3 – Raie de saphir ($11\bar{2}0$) recherché afin d’ajuster le réglage de la référence de l’angle d’incidence θ .

surée sur les images AFM. L’analyse de ces raies nous a permis de trouver les positions des différents pics à $\Delta\theta = 0.005^\circ$ près. D’autre part nous avons $\Delta\lambda/\lambda = 0.002/1.93799 \simeq 1.0 \times 10^{-3}$, ce qui permet finalement de donner $\frac{\Delta d}{d} = \frac{\Delta\lambda}{\lambda} + \frac{\Delta\theta(\text{rad})}{\tan\theta} = 1.0 \times 10^{-3} + 8.7 \times 10^{-5}/\tan\theta$. Nous résumons ces résultats dans le tableau 3.1. Cette étude nous confirme que les bandes sont constituées de Fe cubique centré et que leur hauteur est effectivement de 27 plans atomiques (ce qui correspond à 5.5 nm).

Plan	$\theta(^{\circ})$	d (Å)	$(d_{exp} - d_{massif})/d_{massif}(\%)$
($\bar{1}10$)	28.437 ± 0.005	2.035 ± 0.002	+0.40%
(002)	42.384 ± 0.005	1.437 ± 0.002	+0.28%
($\bar{1}12$)	55.619 ± 0.005	1.174 ± 0.002	+0.34%
(110)	28.395 ± 0.005	2.037 ± 0.002	+0.50%

TAB. 3.1 – Angle de diffraction pour différents plans de Fe/W(110), et déduction de distances interréticulaires. Les rayons X utilisés sont générés par une cible de Fe de longueur d’onde moyenne $\bar{\lambda} = 1.93799$ Å.

3.2.3 Analyse et discussion

Comparé au système Fe/Mo(110) déjà étudié, sous les mêmes conditions dans notre laboratoire et présentant des bandes régulières de Fe de hauteur

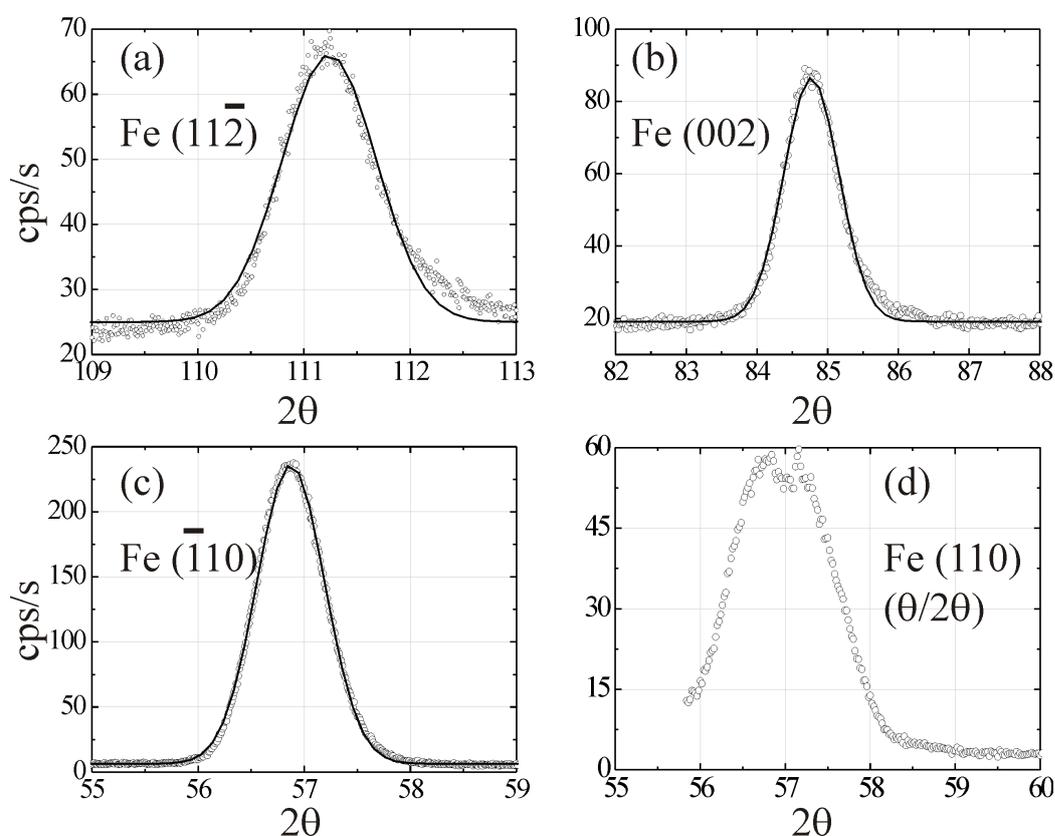


FIG. 3.4 – (a), (b) et (c) Diffraction de rayons X en incidence rasante sur les bandes de Fe. (d) Diffraction de rayons X sur le plan (110) en géométrie $(\theta/2\theta)$.

critique de 1.2 nm [Jubert 2001], les bandes de Fe/W(110) obtenues ici ont une hauteur moyenne 5.5 nm.

Dans les deux cas, les rayons X confirment que le Fe déposé et présent à la surface de l'échantillon présente quasiment la structure massive. Dans le cas Fe/Mo(110) seuls les vecteurs de diffusion dans le plan de la couche avaient pu être sondés, du fait de la largeur intrinsèque importante du pic en géométrie perpendiculaire. Dans le cas Fe/W(110) nous montrons que le paramètre de maille hors du plan est également proche de sa valeur massive, et surtout que la cohérence cristalline est exactement égale à l'épaisseur des bandes observées par AFM. Ceci prouve que les bandes sont exclusivement constituées de Fe massif. Il est donc possible d'exclure l'hypothèse d'alliage ou l'interdiffusion Fe/W comme origine de la formation des bandes et de leur hauteur. Pour tenter de comprendre l'origine de l'épaisseur "magique" des bandes il faut sans doute plus de données expérimentales, qui sont montrées

dans la suite.

Les mesures de déformations confirment la relation d'épitéxie du Fer sur la surface W(110). Les bandes croissent avec leurs faces (110) sur la surface (110) de W. À partir de la raie (110) nous déduisons que la hauteur de la couche mesurée est de 27 HA ce qui correspond à la hauteur des bandes déduite d'après les image AFM et qui vaut 5.5 nm.

Nous constatons en particulier une expansion de la maille de Fe dans toutes les directions de l'espace. Cette expansion est environ isotrope dans le plan (110) et vaut $\epsilon_1 = \epsilon_{[001]} = \epsilon_2 = \epsilon_{[\bar{1}10]} = +0.35 \pm 0.05 \%$, alors que hors du plan, selon la direction [110], elle vaut $\epsilon_3 = \epsilon_{[110]} = +0.50 \pm 0.05 \%$. Ces déformations correspondent à une expansion dans le volume de $\Delta V/V = \epsilon_1 + \epsilon_2 + \epsilon_3 = 1.2 \%$. Par contre la théorie continue de l'élasticité prévoit une déformation négative hors du plan. En fait la densité d'énergie élastique d'un élément cubique centré d'orientation (110) s'écrit [Sander 1999] $f_{\text{élast.}}^{(110)} = 1/4c_{11}(\epsilon_1'^2 + 2\epsilon_2'^2 + 2\epsilon_1'\epsilon_3' + \epsilon_3'^2) + 1/4c_{12}(\epsilon_1'^2 + 4\epsilon_1'\epsilon_2' + 2\epsilon_1'\epsilon_3' + 4\epsilon_2'\epsilon_3' + \epsilon_3'^2) + 1/2c_{44}(\epsilon_3' - \epsilon_1')^2$. La minimisation de cette densité d'énergie par rapport à la déformation hors du plan ϵ_3' , c'est à dire en supposant une contrainte nulle hors du plan $\tau_3' = \partial f_{\text{élast.}}/\partial \epsilon_3' = 0$, implique une déformation $\epsilon_3' = -(c_{11} + c_{12} - 2c_{44})\epsilon_1' + 2c_{12}\epsilon_2' / (c_{11} + c_{12} + 2c_{44})$ (Voir Fig.3.5). Avec nos mesures de déformations dans le plan, $\epsilon_1' = \epsilon_2' = +0.0035$ on s'attend alors à une contraction du Fe hors du plan (110) de -0.0024 contrairement à la valeur déterminée expérimentalement de +0.0050. Ceci correspond à un changement dans le volume de $\Delta V/V = 0.46 \%$.

D'autre part (voir Fig.3.5), ces mesures sont en accord qualitatif avec d'autres mesures de déformation effectués sur 13 HA de Fe/W(110) par R. Popescu et *coll.* [Popescu et *coll.* 2003]. Ils ont également trouvé une expansion de la maille de Fe dans toutes les directions de l'espace. La déformation planaire est isotrope $\epsilon_1' = \epsilon_2' = 0.0122$ et la déformation hors du plan est de $\epsilon_3' = 0.0022$. Nos mesures permettent de déduire les contraintes $\tau_i = \partial f_{\text{élast.}}/\partial \epsilon_i'$ suivantes : $\tau_1' = 1.8$ GPa selon [001] (Popescu et *coll.* : 5.3 GPa), $\tau_2' = 1.9$ GPa selon $[\bar{1}10]$ (Popescu et *coll.* : 4.7 GPa) et $\tau_3' = 2.2$ GPa selon [110] (Popescu et *coll.* : 3.1 GPa contre 13 GPa mesuré par flexion de substrat). Nous constatons donc que les bandes de Fe/W(110) faisant 27 HA sont plus relaxées que les 13 HA étudiés par Popescu et *coll.* . Ce résultat est attendu puisque nos bandes sont deux fois plus épaisses.

Ces déformations ont une conséquence directe sur les propriétés magnétiques des bandes, plus particulièrement sur l'anisotropie magnétique, du fait du couplage magnéto-élastique [Elmers et Gradmann 1990]. En effet, l'anisotropie magnétique trouve ses origines dans le couplage spin-orbite, et dépend donc de la symétrie du cristal. Or les contraintes provoquent un changement de cette symétrie. Le couplage magnéto-élastique contri-

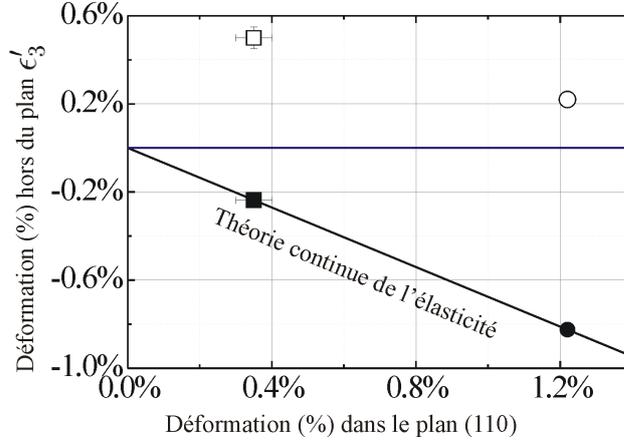


FIG. 3.5 – Déformations hors du plan, ϵ'_3 , en fonction d'une déformation planaire isotrope dans le plan (110). Les carrés représentent le cas de nos bandes et les cercles correspondent au résultats de R.Popescu et *coll.* [Popescu et *coll.* 2003]. Les symboles vides correspondent aux valeurs trouvées expérimentalement et les pleins correspondent aux déformations prévues par la théorie continue de l'élasticité. La ligne continue représente la déformation prévue par la théorie continue de l'élasticité (voir D. Sander [Sander 1999] page 820).

bue à l'anisotropie magnétique de la couche de Fe par une densité d'anisotropie magnéto-élastique planaire $[\bar{1}10]$ par rapport à $[001]$ de la forme $f_{\text{magn.}}^{\text{plan.}} = 1/2(B_2 - B_1)(\epsilon'_0 - \epsilon'_3)$ (ϵ'_0 est la déformation planaire. Une valeur négative de ce terme indique alors un axe planaire de facile aimantation selon $[\bar{1}10]$) [Elmers et Gradmann 1990, Popescu et *coll.* 2003]. B_1 et B_2 sont les coefficients de couplage magnéto-élastiques. Ces coefficients ont des valeurs élevées, $B_1^{\text{massif}} = -3.43 \text{ MJ.m}^{-3}$ et $B_2^{\text{massif}} = 7.83 \text{ MJ.m}^{-3}$, ce qui implique une contribution importante de ce couplage magnéto-élastique dans l'anisotropie des couches contraintes. En fait, ces coefficients dépendent des déformations de la couche (voir [Sander 1999] pages 850-851 et Fig.4 dans [Wedler et *coll.* 1999]). D'après (Fig.19 dans [Sander 1999]) nous trouvons, avec $\epsilon'_0 = 0.0035$, que $B_1 \simeq -0.6 \text{ MJ.m}^{-3}$ et d'après (Fig. 4 dans [Wedler et *coll.* 1999] donnant B_2 en fonction de la contrainte moyenne dans le plan) on déduit, avec $\tau'_1 = 1.8 \text{ GPa}$, $B_2 \simeq 4.3 \text{ MJ.m}^{-3}$. Par conséquent $f_{\text{magn.}}^{\text{plan.}} \simeq -3.7 \times 10^{-3} \text{ MJ.m}^{-3}$ (Popescu et *coll.* . $-76 \times 10^{-3} \text{ MJ.m}^{-3}$). Cette valeur étant négative, on prévoit alors un axe planaire de facile aimantation selon la direction $[\bar{1}10]$ dans le plan de la couche contrairement à ce que nous avons trouvé (voir Fig. 4.1 page 72). Notons qu'un axe planaire de facile aimantation est également prévu par les mesures de Popescu

et *coll.* Ces auteurs ont en fait utilisé dans leur détermination de B_2 une valeur de 13 GPa pour la contrainte planaire, une valeur qu'ils ont mesurée par mesure de déflexion du substrat. Ces auteurs concluent dans leur article l'insuffisance de la théorie continue de l'élasticité pour l'explication de contraintes mesurées dans les couches de Fe/W(110) contrairement aux autres systèmes comme Co ou Ni sur Cu(100) et Ag/Fe(001) où l'application de cette théorie dans la détermination de contrainte est en bon accord avec des mesures expérimentales de contraintes. Nous confirmons cette idée puisque les contraintes déduites dans les bandes impliquent une prédiction de l'axe de facile aimantation en contradiction avec l'expérience.

3.3 Effet de l'interface

Nous avons montré au chapitre 2 comment contrôler une interface pseudomorphe de W (ou de Mo) sur une couche tampon de Mo(110) [ou W(110)]. Nous mettons ici à profit cette interface afin d'étudier son effet sur la forme de bandes de Fe auto-organisées. Nous présentons ici quatre systèmes :

- Fe/W/Mo(110) et Fe/Mo(110) dans lesquels le paramètre de maille de la couche tampon est alors celui du Mo, mais l'interface avec le Fe est différente,
- Fe/Mo/W(110) et Fe/W(110) caractérisés par une couche tampon à paramètre de maille de W, et deux interfaces distinctes avec le Fe.

3.3.1 Réalisation expérimentale

Expérimentalement nous préparons les couches tampon par DLP selon la méthode décrite au chapitre 2. Ensuite une fine couche d'interface de hauteur 5 HA ($\simeq 1$ nm) est déposée à température ambiante et recuite à 850-900 K afin de lisser sa surface.

► Fe/Mo/W(110) et Fe/W(110)

Une couche tampon en W(110) est élaborée, puis la moitié de sa surface est couverte par Mo(110) à température ambiante. Le Fe est déposé ensuite, à 500 K, en coin avec un taux de couverture Θ tel que $0 \leq \Theta \leq 3.0$ nm. L'échantillon est finalement recuit à 725 K. Les structures obtenues sont présentées en images AFM dans la figure 3.6.

On voit immédiatement une différence entre le système Fe/W, déjà présenté, et Fe/Mo/W. Dans le second cas on n'observe pas de bandes, ce qui est probablement lié à un état de surface du système Mo/W qui ne présente

pas un réseau de marches atomiques parallèles. La procédure de recuit de la couche ultramince, optimisée pour le cas W/Mo, ne semble pas convenir pour Mo/W (la température de fusion du Mo est près de 800 °C inférieure à celle de W on s'attend donc à une mobilité plus importante du Mo en surface). Cependant il est intéressant de noter que les structures Fe/Mo/W, même non organisées, présentent à nouveau une hauteur très faiblement dépendante de la quantité de Fe déposée, $e \simeq 4.3$ à 5.5 nm.

► Fe/W/Mo(110) et Fe/Mo(110)

Une couche tampon en Mo(110) est élaborée, puis la moitié de sa surface est couverte par 5 HA ($\simeq 1$ nm) de W(110) à température ambiante, et puis recuit à 850-900 K pendant 30 min environ. Le Fe est déposé ensuite, à 500 K, en coin avec un taux de couverture Θ tel que $0 \leq \Theta \leq 3.0$ nm. L'échantillon est finalement recuit à 725 K. En dernière étape d'élaboration cet échantillon a été recouvert par 1 nm de Mo afin de contrôler son anisotropie magnétique et ensuite par 4 nm d'Al afin de le protéger contre l'oxydation. Cet échantillon sera étudié également en X-PEEM plus loin dans le chapitre 4 (§4.3 page 83).

La figure 3.7 (page 61) montre des images AFM des structures de Fe obtenues. On observe ici une organisation en bandes pour les deux systèmes. Pour le système Fe/Mo(110) on observe bien la hauteur $\simeq 1.2$ nm, mais également des structures de hauteur $\simeq 2.2$ nm, qui deviennent prépondérantes aux forts taux de couverture. Cette bimodalité, qui était passé inaperçue jusqu'ici, montre que certains aspects du système Fe/Mo(110) doivent être étudiés.

Concernant le système Fe/W/Mo(110) on observe une hauteur "magique" d'environ $e = 4.3 \pm 0.5$ nm, et ce système est formé de bandes lorsque la quantité de matériau déposé est suffisante.

3.3.2 Analyse et discussion

À l'issue de l'étude des quatre systèmes, nous constatons que l'existence d'une épaisseur magique n'est pas un cas particulier. Cependant la valeur de l'épaisseur magique semble dépendre à la fois du paramètre de maille et de la nature chimique de l'interface (Tab. 3.2). Ceci nous a incité à franchir une étape supplémentaire en étudiant, plus généralement, la dépendance continûment vis-à-vis du paramètre de maille, ce qui est reflété dans la section suivante.

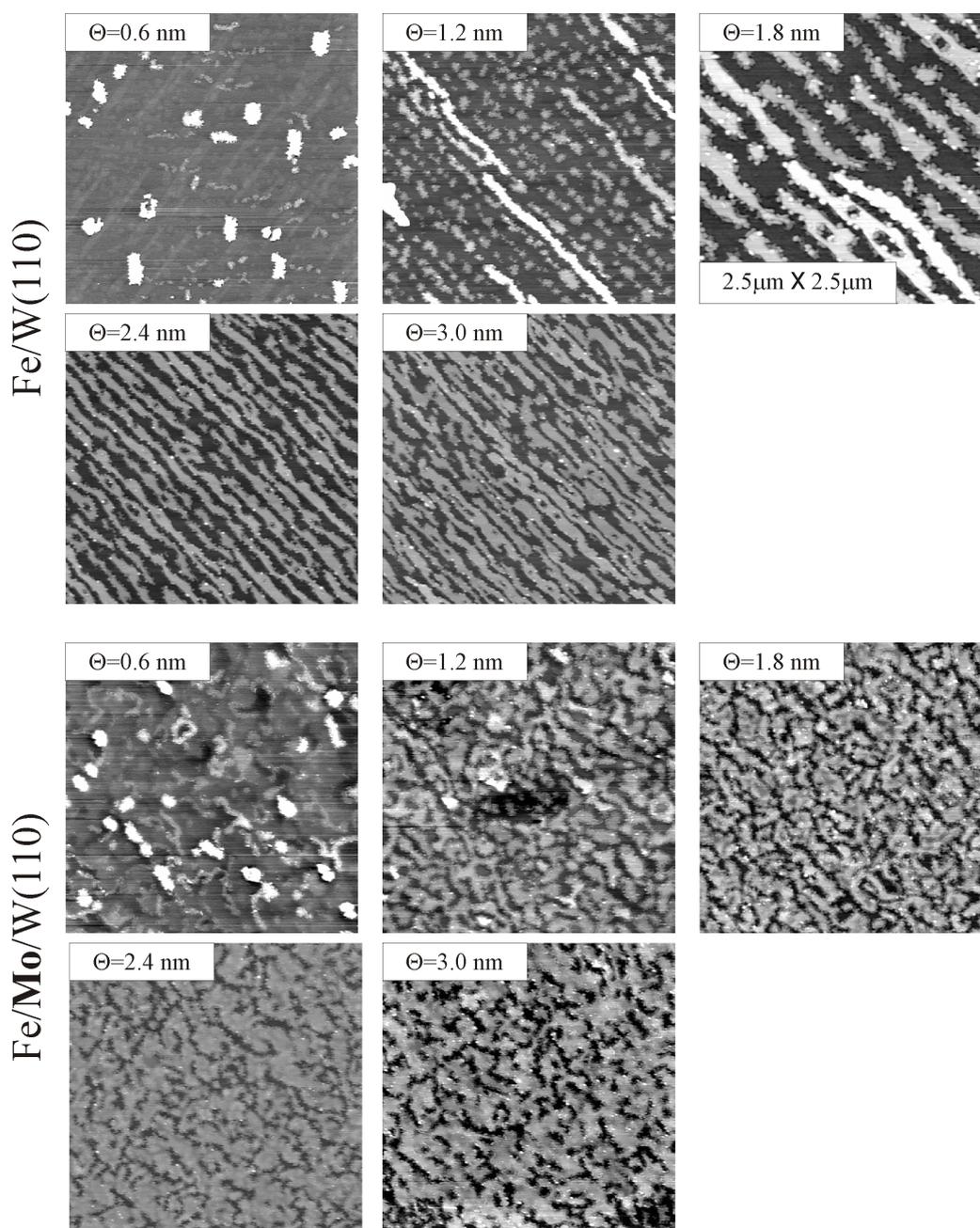


FIG. 3.6 – Images AFM ($5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$, sauf contre-indication) présentant la forme de structures de Fe déposé à 500 K et recuit à 725 K. Le Fe est déposé sur W(110) avec/ou sans interface de Mo(110). Θ indique le taux de couverture de Fe mesuré en nm. Dans les deux cas le Fer est recouvert par 1 nm de Mo puis par 4 nm d'Al, pour les besoins de mesures en X-PEEM (voir §4.2 page 80) ce qui explique les irrégularités observées en bord bandes (image de taille $2.5 \mu\text{m} \times 2.5 \mu\text{m}$).

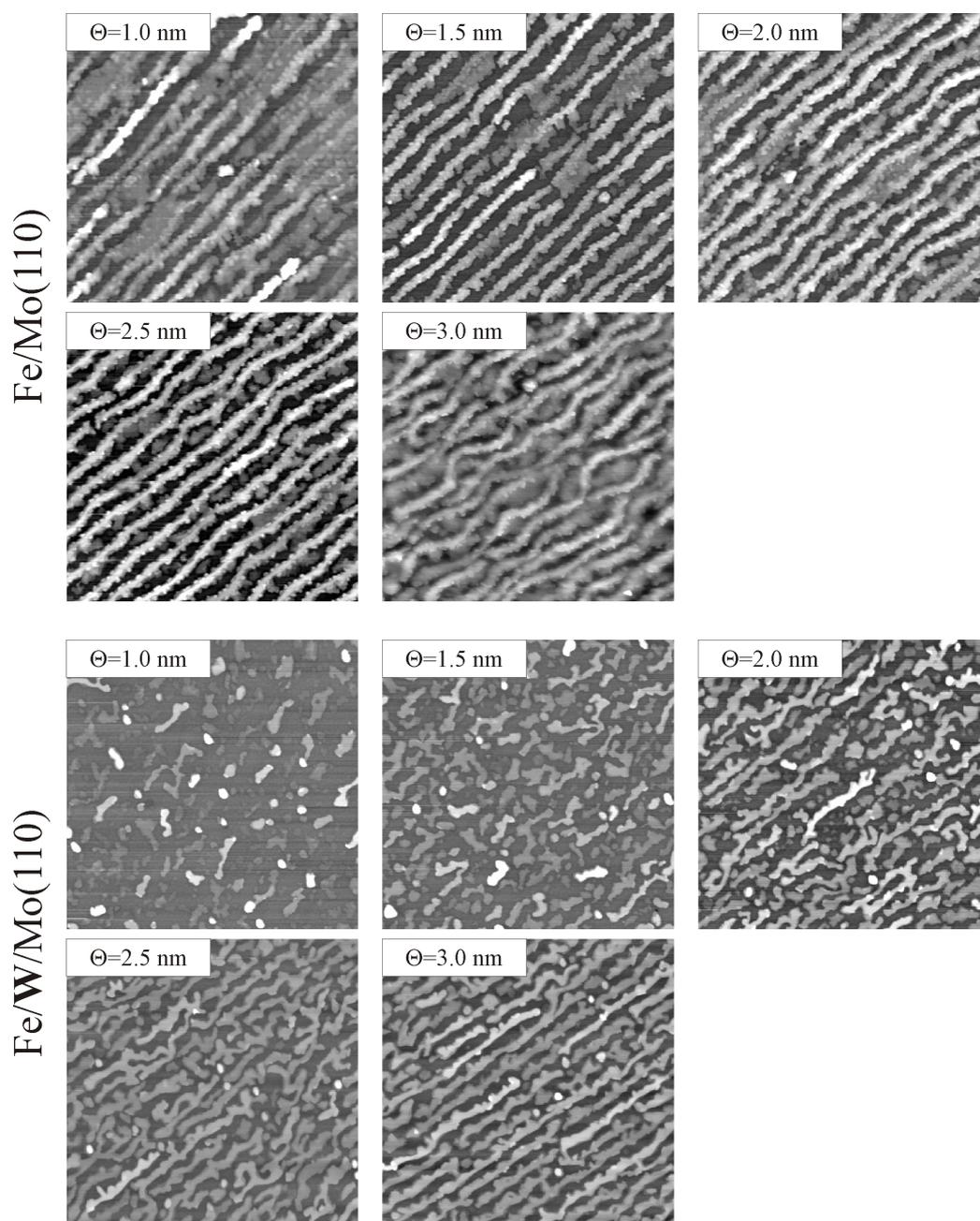


FIG. 3.7 – Images AFM ($5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$) présentant la forme de bandes et structures de Fe déposé à 500 K et recuit à 725 K. Le Fe est déposé sur Mo(110) avec/ou sans interface de W(110). Θ indique le taux de couverture de Fe mesuré en nm.

Système →	Fe/Mo	Fe/W/Mo	Fe/W	Fe/Mo/W
Voir →	(Fig. 3.7) ✓	(Fig.3.7) ✓	(Fig. 3.1 et Fig.3.6) ✓	(Fig.3.6) ⊗
Θ (nm)	h (nm)	h (nm)	h (nm)	h (nm)
1.0	1.2			
1.2			1.8 et 5.5	2.0
1.5	2.2 et 4.0	1.5 et 2.5		
1.8			3.8	3.9
2.0	1.5 et 3.5	4.0		
2.5	2 et 4.5	4.5	5.5	4.3
3.0	4.5	4.3	5.5	5.5

TAB. 3.2 – Hauteurs *magiques* h (nm) dans les quatre systèmes étudiés en fonction du taux de couverture de Fe, Θ (nm). En tête le symbole ✓ indique la croissance du Fe en bandes auto-organisées, et le symbole ⊗ indique l'absence d'organisation en bandes des nanostructures observées (pour le système Fe/Mo/W seulement). Dans ces quatre systèmes le Fe est déposé à 500 K et recuit à 725 K pendant 30 min environ.

3.4 Effet du paramètre cristallin

3.4.1 Réalisation expérimentale : Fe/W/W_xMo_{1-x}

Dans l'étude présentée ci-dessus, le paramètre de maille de la couche tampon utilisée est celui du W pur ou du Mo pur. Ici nous allons étudier la croissance du Fe sur une couche tampon d'interface W mais de paramètre de maille variable entre celui de Mo et celui de W.

Nous avons employé la même procédure de dépôt pour le Fe (le Fe est déposé à 500 K puis recuit à 725 K). La figure 3.8 montre la morphologie de structures de Fe obtenues en fonction du pourcentage de W dans la couche tampon (c-à-d en fonction du paramètre de maille croissant de 3.147 Å coté Mo pur à 3.165 Å coté W pur). Alors que le Fe épitaxié sur W(110) pur est auto-organisé en bandes régulières de hauteur moyenne 5.5 nm, on constate que ces bandes régulières n'apparaissent qu'à un pourcentage $x \gtrsim 0.5$ en W de la couche tampon (l'interface est une couche fine pseudomorphe de W pour tous les pourcentages x). La hauteur des structures formées a été analysée, et est résumée sur la figure 3.9.

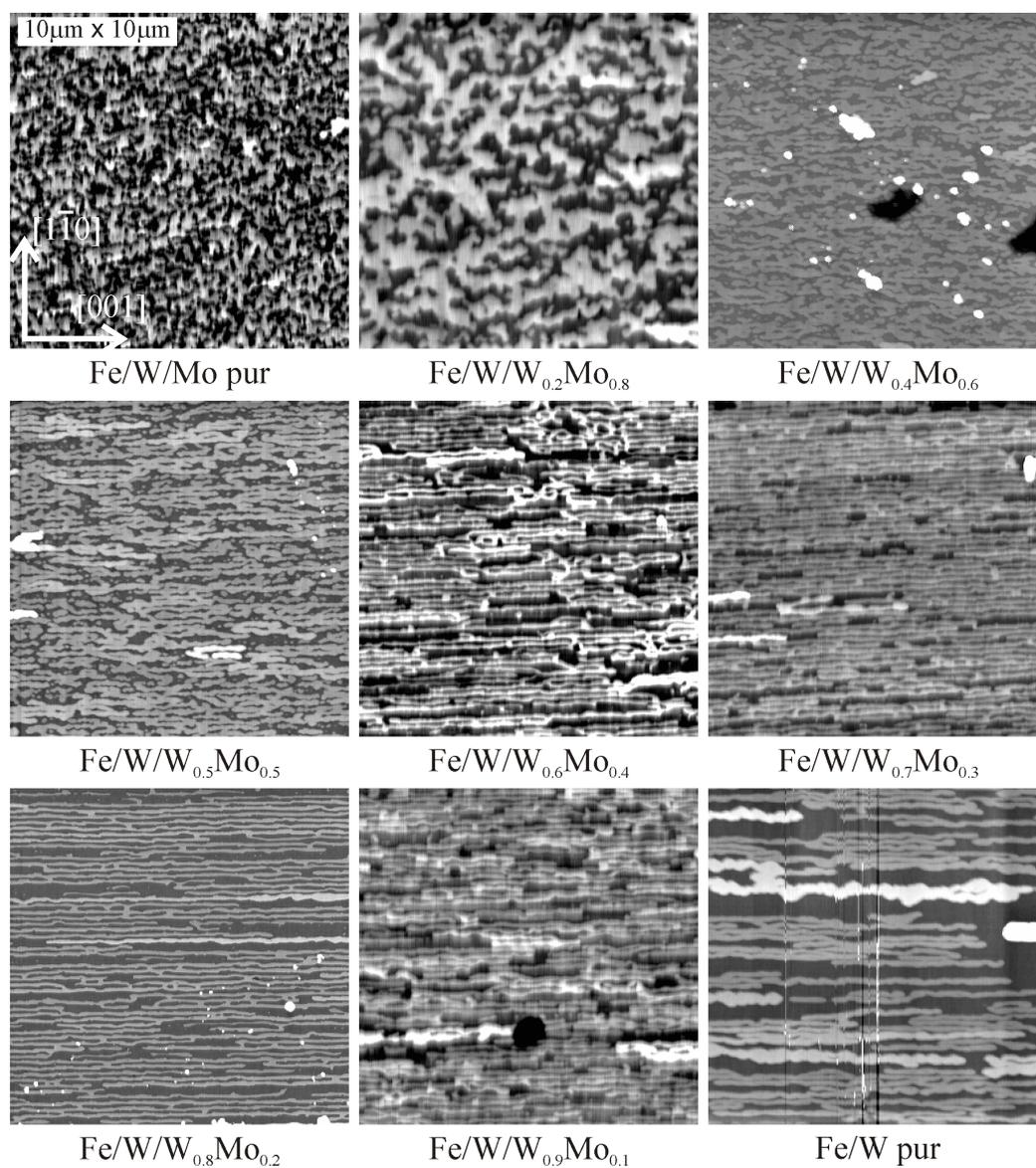


FIG. 3.8 – Images ($10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$) obtenues par microscopie AFM de Fe épitaxié sur une fine couche de W pseudomorphe sur une couche tampon $\text{W}_x\text{Mo}_{1-x}$ à paramètre de maille variable. $\Theta = 2.5\text{ nm}$ de Fe est déposé à 500 K et recuit à 725 K pendant 30 min environ.

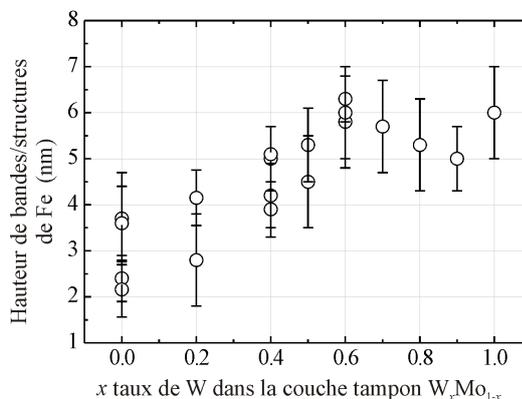


FIG. 3.9 – Hauteurs moyennes de bandes et structures formées par épitaxie de Fe sur une couche à paramètre cristallin variable (W_xMo_{1-x}) avec interface de W. $\Theta = 2.5$ nm de Fe est déposé à 500 K et recuit à 725 K pendant 30 min environ.

3.4.2 Analyse et discussion

Rappelons tout d'abord que des structures plates de Fe/Mo(110) présentant une épaisseur magique de $\simeq 1.2$ nm ont été précédemment obtenues dans notre laboratoire par dépôt directement à haute température $\simeq 700$ K (Fig. 3.10-a) [Jubert 2001]. Nous avons montré également que la croissance de Fe/W(110) dans ces mêmes conditions mène aussi à la formation de ce même type d'îlots biseautés (Fig. 3.10-b), de hauteur mono-disperse mais autour de 5.5 nm indépendant de la quantité de Fe déposée. La croissance à haute température dans les deux cas Fe/Mo(110) et Fe/W(110) ces structures croissent à hauteur constante par expansion latérale. Ce phénomène renforce l'hypothèse de "hauteur magique", ou hauteur métastable.

D'autre part, seules ces "galettes" sont obtenues par dépôt à très haute température ($\simeq 1070$ K). Ceci nous a amené à étudier des couches similaires, par dépôt direct à très haute température, de Fe/Mo/ W_xMo_{1-x} . Les hauteurs de galettes formées à cette température sont reportées dans la figure 3.11. Cette étude nous confirme exactement le même comportement observé sur les bandes de Fe/W/ W_xMo_{1-x} présenté dans la figure 3.9. Plus particulièrement on constate que la hauteur de galettes, sur les zones riches en W, est également mono-disperse autour de 5.5 nm qui ne dépend donc pas du procédé de croissance, faisant penser à un effet de minimisation énergétique. Cette constatation renforce alors l'hypothèse d'une "hauteur magique".

Dans les expériences de 3.4.1 seul le paramètre de maille planaire est modifié, et ceci dans une très faible plage ($< 1\%$). On observe un effet spectaculaire sur la hauteur des bandes. Il nous faut donc imaginer quels sont les

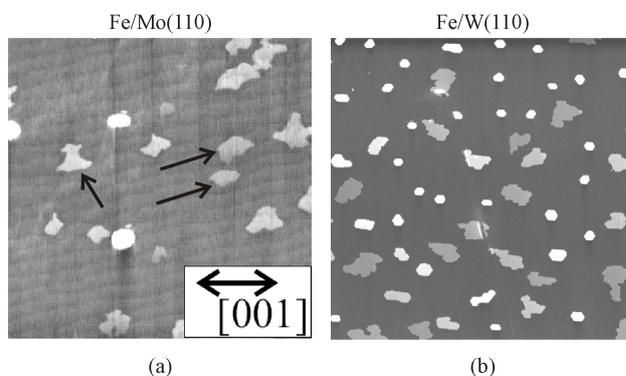


FIG. 3.10 – (a) Image AFM ($4\ \mu\text{m} \times 4\ \mu\text{m}$) de Fe/Mo(110) : des îlots biseautés de hauteur $\simeq 1.2\ \text{nm}$ sont formés lorsqu’une quantité, $\Theta = 0.35\ \text{nm}$, de Fe est déposée directement à haute température ($\simeq 700\ \text{K}$). Ces îlots sont présents sur Mo(110) quelque soit le taux de couverture Θ [Jubert 2001]. (b) Image AFM ($5\ \mu\text{m} \times 5\ \mu\text{m}$) de Fe/W(110) : des îlots biseautés, de hauteur $\simeq 5.5\ \text{nm}$, sont également formés lorsqu’une quantité, $\Theta = 2\ \text{nm}$, de Fe est déposée directement à la même haute température.

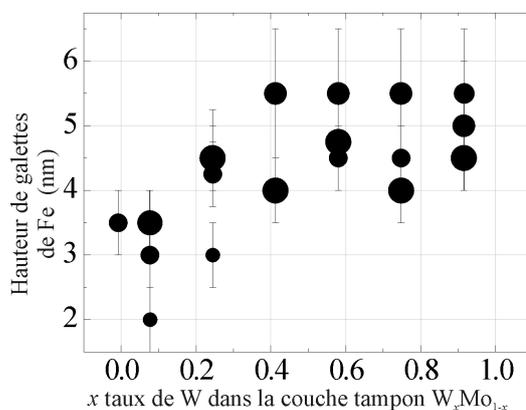


FIG. 3.11 – Hauteurs moyennes de galettes de Fe formées par épitaxie de Fe à $1070\ \text{K}$ sur une couche à paramètre cristallin variable ($\text{W}_x\text{Mo}_{1-x}$) avec interface de Mo. Constatons la similarité de comportement avec la hauteur des bandes de la figure 3.9 page 64. Le diamètre des disques est proportionnel à la quantité de Fer déposé.

mécanismes qui peuvent conduire à cette extrême variabilité.

À la vue de nos résultats de diffraction de rayons X sur les bandes Fe/W(110) (§3.2.3) nous avons rejeté l'hypothèse proposant que les galettes et bandes seraient formées d'un alliage. Ce rejet est encore appuyé par le fait que les interfaces Fe/W(110) et Fe/Mo(110) sont complètement inertes [Tikhov et Bauer 1990].

Deux hypothèses restent en fait envisageables :

► **Commensurabilité/incommensurabilité** : aux faibles épaisseurs, tous les atomes sont proches des dislocations. La plus forte contribution à l'énergie vient du cœur des dislocations. L'arrangement des dislocations est donc déterminé par leurs interactions, de type essentiellement plus proche voisins. On peut donc s'attendre à une répartition régulière (c.à.d. périodique) de ces dislocations. Aux fortes épaisseurs, l'énergie contenue à l'interface et liée au cœur des dislocations et à leur interaction à courte distance de type plus proches voisins devient négligeable. L'essentiel de l'énergie du système vient de la déformation résiduelle dans le reste du plot, induisant une densité d'énergie élastique faible car il s'agit d'une déformation résiduelle, mais qui doit être sommée dans un grand volume. Pour des systèmes épais, on peut donc s'attendre à ce que ce soit ce terme d'énergie qui devienne prépondérant, et donc qui dicte l'agencement des dislocations. Or, les paramètres de maille du substrat et de la couche étant *a priori* non commensurables (c.à.d. formant un rapport non rationnel), un agencement périodique des dislocations induit une déformation résiduelle, de l'ordre de 0-0.5%. Afin de diminuer cette déformation, il devient plus avantageux d'avoir un réseau de dislocations présentant un agencement non périodique. Sur la base de ces arguments, on peut donc s'attendre à une transition du réseau de dislocations d'interface d'un agencement commensurable à incommensurable, pour une épaisseur critique qui sera d'autant plus élevée que la déformation résiduelle est faible.

La croissance de Fe/W/W_xMo_{1-x}, présentée ci-dessus, nous montre qu'une fine variation du paramètre de maille influe la croissance de Fe. Ceci est encourageant. Il reste cependant à expliquer pourquoi la nature de la couche d'interface influence la hauteur magique. Les différences de propriétés élastiques de Mo et W, rentrant en jeu dans l'énergie des dislocations, devraient être prise en compte pour analyser cette question.

► La seconde hypothèse est liée aux effets de taille quantique, rapportés récemment et qui favorisent certaines hauteurs magiques [Gavioli et *coll.* 1999, R.Otero et *coll.* 2002, Luh et *coll.* 2001, Luca et *coll.* 1999]. Par exemple, L. Gavioli et *coll.* [Gavioli et *coll.* 1999] ont étudié la croissance et les propriétés de transport de couches minces d'Ag/Si(111). Ils ont trouvé qu'à faible taux de couverture (1 - 2 HA) les atomes d'Ag forment des îlots isolés caractérisés par une épaisseur favorisée ($\simeq 5.4 \text{ \AA}$). Ce mode de croissance

ne peut pas être expliqué par le modèle thermodynamique de croissance Stranski-Krastanov (SK) dans lequel les contraintes dominant et favorisent une croissance en îlots larges et de hauteurs variées. Ces auteurs ont expliqué qualitativement ce mode de croissance en utilisant un nouveau modèle de croissance simple développé par Zhang et *coll.* [Zhang et *coll.* 1998]. Le modèle considère une compétition entre deux contributions à l'énergie totale de la couche : le confinement quantique des électrons dans la couche métallique implique une augmentation de cette énergie totale ; par contre le transfert de charge du métal vers le substrat fait diminuer cette énergie. La compétition entre ces deux effets détermine la variation de l'énergie totale en fonction de l'épaisseur de la couche et permet de définir une épaisseur critique en-dessous de laquelle la couche est instable. Afin de surmonter la dominance des effets de contraintes à température ambiante, et par conséquent éviter le mode de croissance SK, la couche doit être déposée dans des conditions de faible mobilité pour les adatoms. Après un recuit (et dû à une plus forte mobilité d'adatoms) la couche s'éloigne de sa configuration cinétiquement limitée en éliminant les îlots instable, ce qui entraîne formation d'îlots d'Ag présentés par ces auteurs. De telles effets ont été trouvés sur le système Pb/Cu(111) par R. Otero et *coll.* [R.Otero et *coll.* 2002]. Les observations par STM de nanocristaux de Pb sur Cu(111) a mis en évidence que certaines hauteurs apparaissent plus fréquemment que d'autres. Ceci a été attribué au confinement quantique des électrons dans les îlots, et la hauteur "magique" favorisée correspond aux îlots ayant un état quantique (Quantum Well State, QWS) très éloigné de l'énergie de Fermi. Les autres hauteurs sont attribuées aux îlots ayant un état proche du niveau de Fermi. Dans l'état actuel il faut maintenant faire intervenir des collaborations avec des théoriciens pour trancher.

3.5 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons rappelé tout d'abord que des bandes auto-organisées en bord de marches atomique sont obtenues dans la littérature avec une hauteur 1 à 2 HA. Nous avons vu également que des recherches effectuées au LLN, précédentes à cette thèse, ont mené à l'élaboration de bandes auto-organisées de Fe en bord de marches de Mo(110), mais avec une hauteur plus élevée de $\simeq 1.5$ nm. Dans les deux cas ces bandes ne présente aucune rémanence à température ambiante. Nous avons présenté la croissance de bandes auto-organisées sur W(110) et sur des couches à paramètre de maille spatialement variable avec une interface contrôlée indépendamment du paramètre de maille. Nous avons montré une grande variété de hauteur, jusqu'à

5.5 nm ce qui est une avancée significative pour l'auto-organisation. Nous avons mis en évidence l'apparition d'une hauteur magique. Reste, dans l'avenir, à expliquer l'origine physique de cette hauteur magique ce qui nécessite modélisation et alliages à plus forte variation de paramètre de maille que MoW, comme CrV(2.89 à 3.00 Å), VMo (3.00 à 3.15 Å) et TaMo(3.15 à 3.30 Å) ce qui n'est pas encore réalisé.

Deuxième partie

MAGNÉTISME

Chapitre 4

Propriétés magnétiques de bandes auto-organisées épaisses de Fe

Au cours de nos études magnétiques des bandes auto-organisées de Fe, nous avons trouvé qu'elles ont une coercitivité non nulle à température ambiante. Également, l'étude par Microscopie X-PEEM nous a montré que les bandes, à température ambiante, présentent des domaines magnétiques stables après désaimantation. Au cours de ce chapitre nous illustrons ces propriétés magnétiques, les comparons à la littérature et essayons de les interpréter.

4.1 Renversement d'aimantation - Exemple du système Mo/Fe/W(110)

Notons que les propriétés magnétiques macroscopiques présentées ci-dessous ont été mesurées au laboratoire Louis Néel sur le magnétomètre à SQUID-QD (voir chap. 1 page 3).

Nous nous intéressons tout d'abord au système Mo/Fe/W(110), dont la croissance est présentée dans le chapitre précédent. Comme nous l'avons constaté (chap. 3-§ 3.2 page 51), ce système présente des bandes de Fe auto-organisées de hauteur moyenne 5.5 nm. La figure 4.1-a montre une image AFM rappelant la forme de ces bandes.

Nous présentons dans les figures 4.1-b et 4.1-c les cycles d'hystérésis mesurés sur ce système aux températures 100 K, 200 K et 300 K, avec un champ magnétique appliqué selon $[001]$ et $[\bar{1}10]$ respectivement.

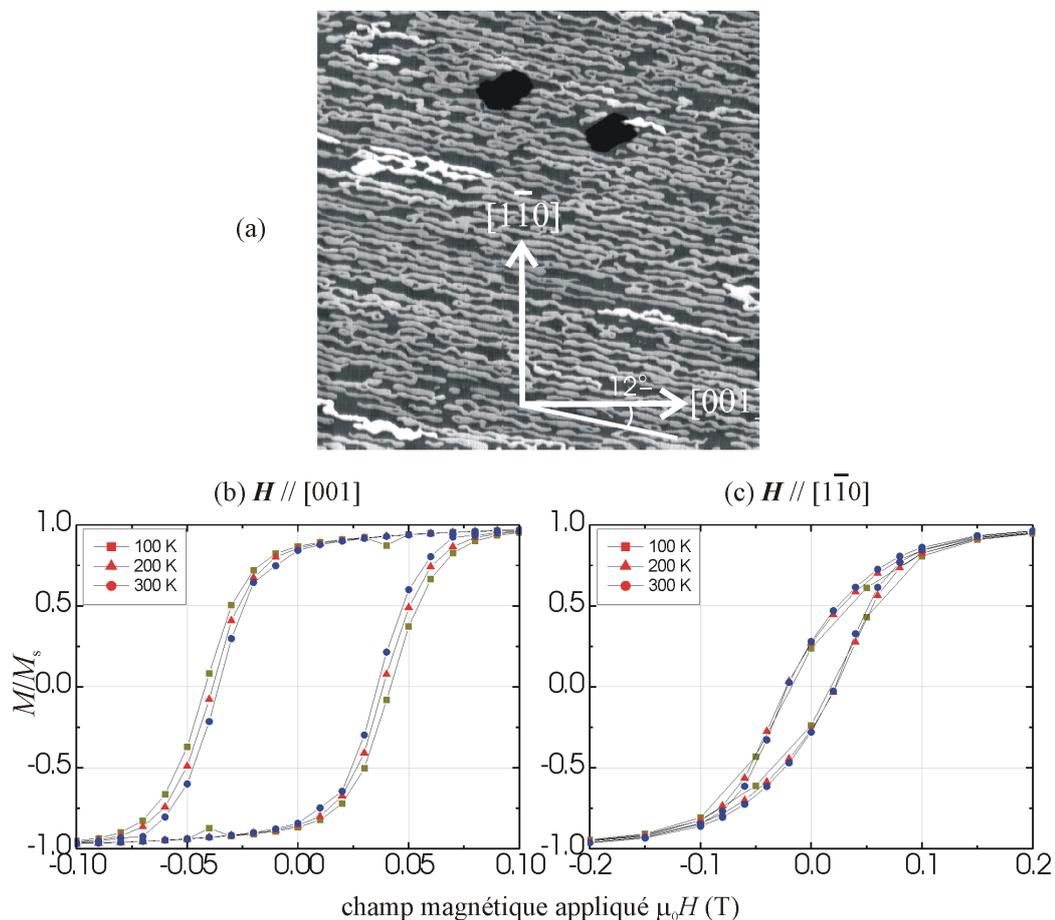


FIG. 4.1 – (a) Image AFM (10 $\mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$) montrant la croissance en bandes auto-organisées de Fe/W(110) de hauteur moyenne 5.5 nm. Ici une quantité de 2.5 nm de Fe est déposée à 500 K et recuite à 720 K pendant 30 min. La surface de l'échantillon est recouverte par 9 nm de Mo afin de contrôler son anisotropie magnétique et de la protéger contre l'oxydation. (b) et (c) Cycles d'hystérésis mesurés sur ce système avec un champ magnétique appliqué $H // [001]$ et $H // [1\bar{1}0]$ respectivement.

4.1.1 Bandes magnétiques à température ambiante

Nous constatons immédiatement que ces bandes de Fe/W(110) sont magnétiques à température ambiante, contrairement aux bandes de Fe/Mo(110) déjà étudiées dans notre laboratoire [Fruchart et *coll.* 2002, Jubert et *coll.* 2002, Jubert 2001]. Rappelons que l'étude de la croissance et des propriétés magnétiques du système Fe/Mo(110) au LLN avaient mis en évidence la croissance de Fe sous forme de bandes auto-organisées de hauteur 1.2 nm. Les mesures magnétiques effectuées sur ces bandes ont montré qu'elle sont superparamagnétiques à température ambiante. Le système Mo/Fe/W(110) contraste également avec les mesures effectuées sur d'autres bandes auto-organisées de Fe/W(110) rencontrées dans la littérature et dont certains exemples ont été déjà rappelés dans le chapitre 3 (§ 3.1 page 49). En fait on remarque que les bandes de Fe décrites dans la littérature [Hauschild et *coll.* 1998a, Shen et Kirschner 2002], limitées à un ou deux plans atomiques seulement, sont superparamagnétiques ou même non-ferromagnétiques à température ambiante. En fait la barrière d'énergie s'opposant au renversement spontané d'aimantation est de l'ordre de KV [Néel 1947]. K est la constante d'anisotropie du système et V le volume dit de *nucléation*, dans lequel est initié le renversement. Ainsi, malgré une diminution de K par rapport au cas ultramince, l'augmentation considérée de V par l'intermédiaire de l'épaisseur du système, permet d'éviter les fluctuations thermiques de l'aimantation à 300 K. On observe alors une coercitivité et une rémanence non nulles. Plus généralement que le système Fe/W(110), tous les systèmes épitaxiaux auto-organisés rapportés dans la littérature sont obtenus dans le régime de croissance proche de la MC, sont de très faible volume et ne présentent aucune coercitivité à 300 K. Le procédé de croissance que nous avons mis au point est donc une avancée significative dans le domaine des systèmes auto-organisés magnétiques.

Les cycles d'hystérésis nous montrent que ces bandes sont caractérisées par

- un axe de plus facile aimantation parallèle aux bandes selon la direction planaire $[001]$,
- un axe difficile selon $[1\bar{1}0]$,
- une rémanence significative de l'ordre de 85 %
- un champ coercitif décroissant avec la température de 41.9 mT pour $T = 100$ K à 35.9 mT pour $T = 300$ K (voir Fig.4.4 page 80).

4.1.2 Anisotropie et coercitivité

L'ouverture observée dans les cycles obtenus avec H parallèle à l'axe difficile $[1\bar{1}0]$ pourrait être due au moins en partie à une légère désorientation de l'échantillon lors de sa mesure. L'anisotropie de forme, plus une certaine anisotropie induite de marches, comme celle reportée par Usov et *coll.* [Usov et *coll.* 2004], favorise que l'axe facile et/ou l'aimantation rémanente soit parallèle aux marches (faisant 12° avec la direction $[001]$), et donc non exactement perpendiculaire à $[1\bar{1}0]$. L'anisotropie induite de marche nous semble avoir peu d'influence du fait de la forte épaisseur de nos bandes comparées aux épaisseurs de bandes étudiées par Usov et *coll.*. Une autre contribution à la rémanence selon l'axe $[1\bar{1}0]$ doit provenir du cœur de parois séparant domaines d'aimantations opposées dans les bandes, selon $[001]$ et $[00\bar{1}]$. En effet, une division en domaines de petite taille doit être favorisée par les irrégularités de forme des bandes. On s'attend donc à une densité de parois importantes, dont la contribution serait notable ici.

Par contre l'ouverture presque carrée des cycles obtenus avec $H \parallel [001]$, associée au fait que le champ coercitif est proche du champ d'anisotropie observé selon la direction $[1\bar{1}0]$, nous laisse penser à un processus de renversement d'aimantation proche de la rotation uniforme, dans les volumes de nucléation, selon le modèle de Stoner-Wohlfarth et Néel [Néel 1947, Stoner et Wohlfarth 1948].

4.1.3 Champ d'anisotropie et énergie dipolaire dans les bandes de Fe/W(110)

Estimation de l'énergie dipolaire

Considérons un réseau de N bandes, parallèles entre elles, séparées par une distance d (bord à bord), perpendiculaires à une direction Oz (voir Fig.4.2-a) et aimantées uniformément selon Oz . Chaque bande est assimilée à un parallélépipède de dimensions $2a$ selon Ox (correspondant à la longueur d'une bande), $2b$ selon Oy (correspondant à la hauteur) et $2c$ selon Oz (correspondant à la largeur). Ce système est équivalent à un réseau de distribution rectangulaire de charges surfaciques perpendiculaires à l'axe Oz . Nous nous intéressons alors tout d'abord à l'énergie d'interaction d'une telle distribution, notée Σ' (Fig.4.2-b), perpendiculaire à l'axe Oz en z' et de densité de charges σ' , avec une autre distribution placée en z et de densité de charges σ . Cette énergie est égale à ([Hubert et Schäfer 1998])

$$E(\sigma \rightarrow \sigma') = \mu_0 \int_{\Sigma'} \sigma' \varphi_d(M) dS' \quad (4.1)$$

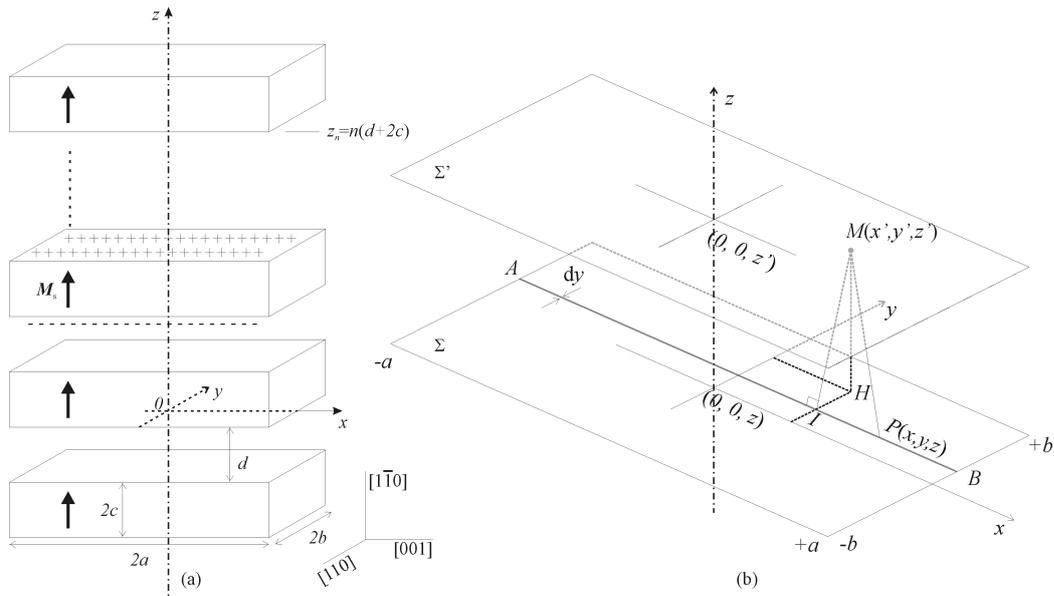


FIG. 4.2 – (a) Réseau de N bandes identiques aimantées uniformément selon l'axe Oz (correspondant à la direction $\text{Fe}[1\bar{1}0]$). Ces bandes sont allongées selon Ox (correspondant à la direction $\text{Fe}[001]$). Les dimensions d'une bande sont $2a$ selon l'axe Ox , $2b$ selon Oy et $2c$ selon Oz . (b) Représentation de deux distributions surfaciques rectangulaires, Σ et Σ' , de densité de charges magnétiques σ ($= +M_s$ ou $-M_s$ dans notre cas) et σ' et placées perpendiculairement à Oz en z et z' respectivement. La distribution Σ crée au point $M(x', y', z')$ un champ démagnétisant $H_d(M)$ dérivant du potentiel scalaire $\varphi_d(M)$. L'expression de ce potentiel, dans l'approche coulombienne, est donnée par $\varphi_d(M) = 1/4\pi \int_{\Sigma} \sigma dS/PM$.

où $\varphi_d(M)$ est le potentiel créé, au point $M(x', y', z')$, par la distribution Σ et il est donnée par (voir Fig.4.2-b)

$$\varphi_d(M) = \frac{1}{4\pi} \int_{-a}^{+a} \int_{-b}^{+b} \frac{\sigma}{PM} dx dy \quad (4.2)$$

$$= \frac{\sigma}{4\pi} \int_{-a}^{+a} \int_{-b}^{+b} \frac{1}{\sqrt{(x-x')^2 + (y-y')^2 + (z-z')^2}} dx dy \quad (4.3)$$

Ce potentiel peut être exprimé analytiquement [Buda 2004; 2001] de manière semblable à l'évaluation d'interaction entre deux blocs chargés en volume tel que présentée en détails dans ([Hubert et Schäfer 1998] page 122-124¹). En effet on trouve que

$$\varphi_d(M) = \frac{\sigma}{4\pi} \int_{-b}^{+b} [F_{100}(x-x', y-y', z-z')]_{x=-a}^{x=+a} dy$$

$$\begin{aligned} \varphi_d(M) = \frac{\sigma}{4\pi} [& F_{110}(a-x, b-y, z-z') - F_{110}(-a-x, b-y, z-z') \\ & - F_{110}(a-x, -b-y, z-z') + F_{110}(-a-x, -b-y, z-z')] \end{aligned} \quad (4.4)$$

avec $F_{100} = \int 1/r dx = L_x = 1/2 \ln[(r+x)/(r-x)]$, $F_{110} = \int F_{100} dy = yL_x + xL_y - P_z$, $P_z = z \arctan(yx/zr)$ et $r = \sqrt{x^2 + y^2 + z^2}$ [Hubert et Schäfer 1998]. Remarquons au passage que la fonction F_{110} est une fonction paire par rapport à z , ce qui est normal du fait physique que le potentiel $\varphi_d(M)$ est symétrique par rapport à la distribution surfacique. Ce potentiel nous permet d'exprimer l'énergie d'interaction donnée dans 4.1 de Σ' avec Σ dont l'évaluation se fait en utilisant les expressions présentées dans ([Hubert et Schäfer 1998] page 122) et nous trouvons enfin que

$$E(\sigma \rightarrow \sigma') = \mu_0 \frac{\sigma \sigma'}{\pi} \times I(z-z') \quad (4.5)$$

avec

$$\begin{aligned} I(z) = & [F_{220}(2a, 2b, z) - F_{220}(0, 2b, z) \\ & - F_{220}(2a, 0, z) + F_{220}(0, 0, z)] \end{aligned} \quad (4.6)$$

où

$$F_{220} = \frac{1}{2} [x(y^2 - z^2)L_x + y(x^2 - z^2)L_y] - xyP_z + \frac{1}{6}r(3z^2 - r^2) \quad (4.7)$$

¹Il faut remarquer que dans [Hubert et Schäfer 1998] F_{100} (page 122) est égale à L_x et non pas $xL_x - r$ et que $F_{200} = xL_x - r$.
(voir <http://www6.wv.uni-erlangen.de/~hubert/magnetic-domains.html>)

À partir de cette énergie (Eq. 4.5), qui ne dépend que de la distance entre les deux distributions surfaciques, on déduit l'énergie d'interaction $E_{\text{int}}(i, j)$ d'une bande d'indice j placée dans le champ d'une bande d'indice i . Les deux bandes sont placées comme dans la figure 4.2-a en $z_j = j(d + 2c)$ et $z_i = i(d + 2c)$ respectivement :

$$E_{\text{int}}(i, j) = [E(\sigma_i^- \rightarrow \sigma_j^-) + E(\sigma_i^+ \rightarrow \sigma_j^+) + E(\sigma_i^- \rightarrow \sigma_j^+) + E(\sigma_i^+ \rightarrow \sigma_j^-)]$$

où $\sigma_{i,j}^\pm = \pm M_s$. On trouve alors

$$E_{\text{int}}(i, j) = \frac{\mu_0 M_s^2}{\pi} [2I(z_i - z_j) - I(z_i - z_j - 2c) - I(z_i + 2c - z_j)] \quad (4.8)$$

Finalement l'énergie d'interaction dipolaire de notre réseau de N bandes est

$$E_{\text{int}} = \frac{1}{2} \sum_i \sum_{j \neq i} E_{\text{int}}(i, j) \quad (4.9)$$

$$= \frac{1}{2\pi} \mu_0 M_s^2 \sum_i \sum_{j \neq i} [2I(z_i - z_j) - I(z_i - z_j - 2c) - I(z_i + 2c - z_j)]. \quad (4.10)$$

La densité d'énergie dipolaire totale par unité de volume est alors

$$E_d = \frac{1}{NV} E_{\text{int}} + E_{\text{dém}} = \frac{1}{8Nabc} E_{\text{int}} + \frac{1}{2} \mu_0 M_s^2 N_z \quad (4.11)$$

où N_z est le facteur démagnétisant d'une bande isolée et il est exprimé analytiquement dans [Aharoni 1998] et peut être déduit de l'équation 4.8 en prenant $i = j$: $E(i, i) = 1/2 \mu_0 M_s^2 N_z$ (self-énergie).

Application aux bandes de Fe/W(110)

Le réseau de bandes de Fe/W(110) présentées dans 3.2.1 page 51, sont très allongées le long des marches atomiques et on constate d'après l'image AFM de taille $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$ (voir figure 3.1 page 52) que $2a \simeq 5000 \text{ nm}$. Ces bandes sont caractérisées également par une largeur de $2c \simeq 110 \text{ nm}$, de hauteur $2b \simeq 5.5 \text{ nm}$ et séparées par une distance (bord à bord) moyenne de $d \simeq 80 \text{ nm}$. Avec $M_s = 1735 \times 10^3 \text{ A.m}^{-1}$ (et un nombre de bandes de $N = 1000$) nous trouvons que $N_z \simeq 7.12 \times 10^{-2}$, $E_{\text{dém}} \simeq 1.347 \times 10^5 \text{ J.m}^{-3}$ et $E_{\text{int}} \simeq -1.721 \times 10^4 \text{ J.m}^{-3}$ et par conséquent une densité d'énergie dipolaire totale $E_d \simeq 1.175 \times 10^5 \text{ J.m}^{-3}$. Cette densité d'énergie totale est équivalente à un champ d'anisotropie $\mu_0 H_a^d = 2E_d/M_s \simeq 135 \text{ mT}$. Le champ d'anisotropie d'un système comporte deux contributions magnétocristalline et dipolaire : $H_a = H_a^{\text{mc}} + H_a^d$. Expérimentalement, à partir du cycle d'hystérésis selon l'axe

Oz (correspondant à la direction $[1\bar{1}0]$) nous déduisons une courbe moyenne $m(H) = M(H)/M_s$ comme dans la figure Fig.4.3 (Voir également Fig.4.1-c page 68) puis on peut estimer le champ d'anisotropie total par $H_a M_s = 2 \int H(M) dM$ ou $H_a = 2 \int H(m) dm$. Ainsi nous trouvons $\mu_0 H_a \simeq 140$ mT, alors qu'à partir de la pente à l'origine nous déduisons $\mu_0 H_a \simeq 90$ mT. Nous estimons alors que $\mu_0 H_a \simeq 115 \pm 25$ mT. Cette valeur expérimentale est plus importante que la valeur attendue dans le cas du fer massif. La contribution dipolaire à ce champ, calculée plus haut, est dominante. Cependant cette contribution est certainement surestimée car la détermination de l'énergie dipolaire a été effectuée pour des bandes à bords parfaitement rectilignes ce qui n'est pas tout à fait le cas des bandes de Fe/W(110), qui présentent des irrégularités sur les bords. Cela suggère une énergie dipolaire moins importante que celle trouvée ci-dessus. En conclusion la contribution dipolaire (magnétostatique) à l'anisotropie reste prédominante et on peut affirmer que l'anisotropie dans ces bandes est essentiellement d'origine magnétostatique.

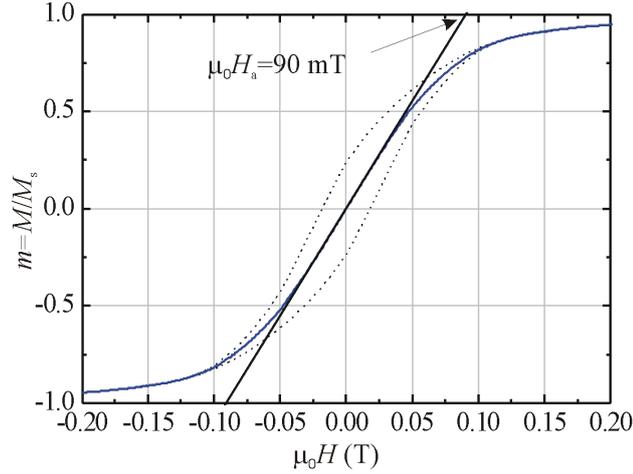


FIG. 4.3 – Même figure que Fig.4.1.c (page 68). Cycle d'hystérésis mesuré sur des bandes de Fe/W(110) avec $H//[1\bar{1}0]$ (en pointillé) et courbe d'aimantation déduite par valeur moyenne (courbe continue) afin de pouvoir estimer le champ d'anisotropie du réseau de bandes de Fe/W(110) par $2 \int H(m) dm = H_a$, et à partir de la pente à l'origine (qui donne $\mu_0 H_a \simeq 90$ mT).

4.1.4 Activation thermique et coercitivité

Intéressons nous à l'activation thermique du renversement d'aimantation dans les volumes de nucléation. Posons $H_c(T = 0) = H_0$ le champ coer-

citif extrapolé à température nulle. Pour $T > 0$ la barrière d'énergie peut être franchie prématurément grâce à l'activation thermique. Cette barrière d'énergie peut s'exprimer de manière approchée sous la forme

$$\Delta E = KV \left(1 - \frac{H}{H_0}\right)^\alpha \quad (4.12)$$

où $V = e \times S$ est le volume (e l'épaisseur de la couche, S la surface de la zone de nucléation), H le champ magnétique extérieur, K est la constante d'anisotropie et en première approximation $\alpha = 2$ qui est la valeur déduit dans le modèle de retournement cohérent avec un champ appliqué parallèlement à l'axe facile [Stoner et Wohlfarth 1948]. Dans la plupart des processus cet exposant est différent de 2 mais nous n'avons pas de moyen de le mesurer ici. Notons qu'en toute rigueur cette expression ne s'applique que dans les cas d'une anisotropie purement uniaxiale, ce qui n'est sans doute pas le cas ici. Il faut donc voir cette relation comme une approximation, qui nous permettra de déterminer l'ordre de grandeur du volume de nucléation. Le temps τ au bout duquel la barrière d'énergie est spontanément franchie à la température T peut être estimé par loi Néel-Brown

$$\tau = \tau_0 e^{\frac{\Delta E}{k_B T}} \quad (4.13)$$

La coercitivité à la température T est donc le champ H_c auquel le renversement s'effectue dans la durée τ :

$$\Delta E = k_B T \ln \frac{\tau}{\tau_0}$$

où $\tau_0 \simeq 10^{-10}$ s. Si la mesure de l'aimantation dans le laboratoire s'effectue dans la durée $\tau = 1$ s alors

$$KeS \left[1 - \frac{H_c(T)}{H_0}\right]^2 \simeq 25k_B T$$

d'où

$$H_c(T) \simeq H_0 \left(1 - \sqrt{\frac{25k_B T}{KeS}}\right) \quad (4.14)$$

Ainsi on s'attend à ce que le champ coercitif varie linéairement en fonction de \sqrt{T} . Sur la figure 4.4 nous représentons le champ coercitif, déduit des cycles d'hystérésis de la figure 4.1, en fonction de $\sqrt{25k_B T}$. Même si la variation semble linéaire avec une très bonne approximation, le nombre de points présentés étant faible nous ne pouvons en déduire que des grandeurs approximatives. H_c dépend effectivement linéairement de $\sqrt{25k_B T}$. L'ordonnée

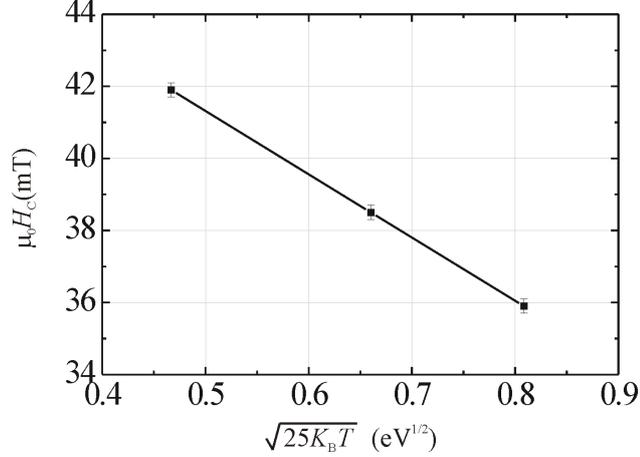


FIG. 4.4 – Champ coercitif, déduit des cycles d’hystérésis présentés dans la figure 4.1, en fonction de la $\sqrt{(25k_B T)}$, où T est la température. La variation est linéaire selon la loi calculée (avec les unités de la figure) $\mu_0 H_c = 50 (1 - 0.35\sqrt{25K_B T})$.

à l’origine dans cette figure nous donne $\mu_0 H_0 \simeq 50$ mT alors que la pente nous permet de déduire une valeur approchée du volume de nucléation $V = eS$ et de la surface associée $S \simeq 5.7 \times 10^3$ nm² (avec $K \simeq 4 \times 10^4$ J.m⁻³), soit environ 75 nm × 75 nm. Cette valeur est conforme à l’intuition car d’une part elle est comparable à la largeur de paroi, estimée justement à environ 75 nm, et d’autre part comparable à la largeur des bandes ($\simeq 80 \pm 25$ nm ; voir §3.2.1 page 51).

4.2 Effet de l’interface

Nous mettons maintenant à profit la couche d’interface étudiée dans le chapitre 2 afin de pouvoir influencer les propriétés magnétiques des bandes. Nous étudions ici deux échantillons constituant deux parties différentes d’une même couche de Mo(110)/Al₂O₃(11 $\bar{2}$ 0), mais avant le dépôt de Fe, une partie de la surface de l’échantillon est couverte par 1 nm de W. Ensuite le Fe est déposé sur l’intégralité de l’échantillon, puis couvert par 1 nm de Mo afin de contrôler son anisotropie, et enfin par 4 nm de Al comme protection contre l’oxydation. Le choix de cette dernière couverture, ainsi que son épaisseur, sont motivés par l’utilisation de cet échantillon pour l’imagerie X-PEEM (voir §4.3 plus loin dans ce chapitre) : d’une part la profondeur d’échappement d’électrons est de l’ordre de quelques nanomètres, et d’autre part l’élément Al étant *léger* le libre parcours moyen d’électrons dans cet

élément est plus grand que celui dans Mo.

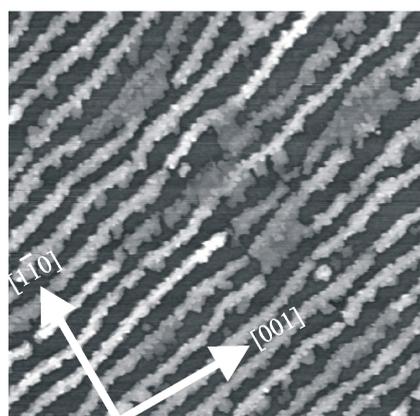
Nous obtenons ainsi deux systèmes Mo/Fe/Mo(110) et Mo/Fe/W/Mo(110) différant par l'interface avec le Fe. Ces deux systèmes (Fig. 4.5-a et 4.5-c) présentent des bandes de Fe auto-organisées allongées approximativement le long de la direction [001]. La hauteur moyenne de ces bandes est de 2.2 nm et 4.0 nm pour le système Mo/Fe/Mo, qui présente une croissance bimodale, et 4.3 nm pour le système Mo/Fe/W/Mo.

La figure 4.5-b montre deux cycles d'hystérésis mesurés à température ambiante sur le système Mo/Fe/Mo selon les deux directions [001] et $[1\bar{1}0]$. La direction $[1\bar{1}0]$ est l'axe magnétique le plus difficile et [001] est l'axe de plus facile d'aimantation, avec une rémanence importante et un champ coercitif de 43 mT. La coercitivité augmente jusqu'à 49 mT à 10 K, confirmant un faible effet de la température comme pour le système Mo/Fe/W présenté précédemment. Ceci résulte du grand volume de nucléation ($\simeq 10^4 \text{ nm}^3$) prévu dans ces bandes épaisses contrairement aux bandes auto-organisées rapportées dans la littérature.

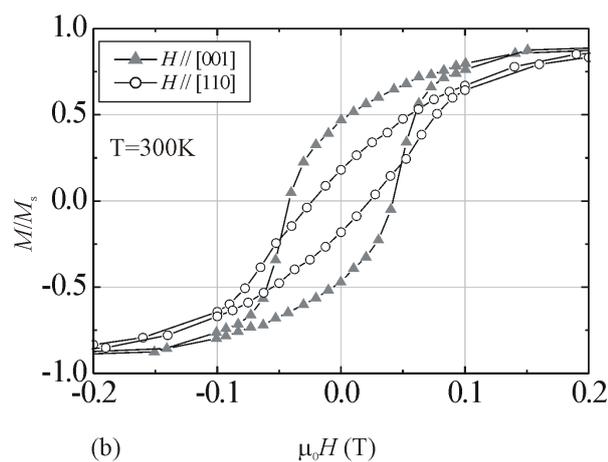
Dans la figure 4.5-d nous présentons deux cycles d'hystérésis du système Mo/Fe/W/Mo. Ce système diffère de celui vu ci-dessus par l'interface Fe/W. Dans ce cas les deux axes planaires [001] et $[1\bar{1}0]$ sont magnétiquement similaires, avec une rémanence notable et un champ coercitif de 36 mT. L'anisotropie magnétique dans notre cas est assez compliquée car elle résulte d'un compromis entre anisotropie magnétocristalline, magnétoélastique du fait des déformations de Fe dans et hors du plan (voir §3.2.2 51), d'interface et de forme. L'anisotropie dans les couches minces, d'après Gradmann et *coll.* [Gradmann 1993], est caractérisée par une constante d'anisotropie K décrite par $K = K_s/e + K_V$, e étant l'épaisseur, K_V la constante d'anisotropie du massif, et K_s une constante d'anisotropie d'interface [Bruno et Renard 1989]. Il a été montré que les interfaces Fe/W(110) tendent à aligner l'aimantation selon $[1\bar{1}0]$. On observe donc une transition de réorientation de l'aimantation entre les fortes épaisseurs, où l'anisotropie magnétocristalline du massif K_V domine et aligne l'aimantation selon [001], et les faibles épaisseurs où K_s domine et aligne l'aimantation selon $[1\bar{1}0]$. Cette réorientation se déroule vers $e \simeq 8 \text{ nm}$ pour W/Fe/W. Par contre les interfaces Fe/Mo(110) favorisent [001] comme axe de facile aimantation. L'anisotropie selon [001] est donc *renforcée* aux fortes épaisseurs, et il n'y a pas de transition de réorientation de l'aimantation.

Pour revenir aux bandes, il est donc attendu que le remplacement d'une interface Fe/Mo(110) par Fe/W(110) favorise plus l'axe $[1\bar{1}0]$, et c'est ce que l'on constate sur la figure 4.5. De plus l'anisotropie d'interface Fe/W(110) est en valeur absolue plus forte que celle de Fe/Mo(110). Pour un système Mo/Fe/W/Mo, on s'attend donc à une transition de réorientation de l'ai-

Mo/Fe(2.2 et 4nm)/Mo(110)

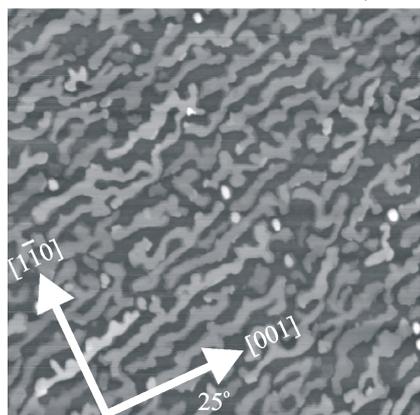


(a)

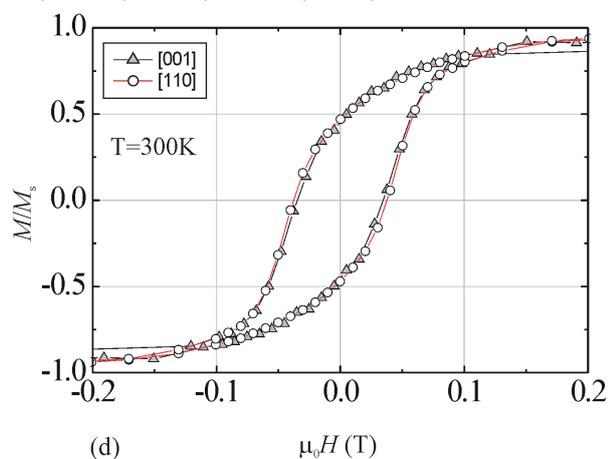


(b)

Mo/Fe(4.3nm)/W(1nm)/Mo(110)



(c)



(d)

FIG. 4.5 – Images AFM ($5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$) des deux systèmes (a) Mo/Fe/Mo et (c) Mo/Fe/W/Mo. (b) et (d) Cycles d'hystérésis correspondant mesurés à 300 K avec un champ magnétique appliqué $H \parallel [001]$ (\blacktriangle) et $H \parallel [1\bar{1}0]$ (\circ). Pour avoir un ordre de grandeur l'aimantation à saturation du système Mo/Fe/W/Mo est de $1.67 \times 10^{-8} \text{ A.m}^2$.

mantation, à une épaisseur plus faible que le cas W/Fe/W ($K_s(\text{W/Fe/W}) \simeq -2.90 \times 10^5 \text{ J.m}^{-2}$ et $K_s(\text{Mo/Fe/Mo}) \simeq 4.27 \times 10^5 \text{ J.m}^{-2}$ [Fruchart et *coll.* 1999a]). On constate sur la figure 4.5-d que cette transition se passe autour de l'épaisseur $\simeq 4 \text{ nm}$.

4.3 Mesure en X-PEEM : Domaines magnétiques stables

Dans le paragraphe précédent, nous avons montré que des systèmes en bandes épaisses présentent une forte rémanence et une coercitivité significative à 300 K, lorsqu'un axe de facile aimantation est sélectionné par les interfaces convenables. Ces deux propriétés sont à la base de l'utilisation des matériaux magnétiques durs. Dans le paragraphe présent nous allons démontrer que des bandes peuvent présenter à 300 K une autre fonction essentielle des matériaux magnétiques, cette fois de la classe des matériaux doux. Cette fonction essentielle est de pouvoir se diviser en domaines magnétiques. Cette propriété est obtenue lorsque les interfaces des bandes sont choisies de manière à abaisser l'anisotropie et obtenir un système presque magnétiquement isotrope.

Nous avons effectué des images magnétiques et chimiques à champ magnétique extérieur nul utilisant la microscopie en électrons photoémis (X-PEEM, voir Chap. 1 page 21) et microscopie en électrons de faible énergie (LEEM), sur la ligne *Nanospectroscopy* au synchrotron Elettra à Trieste en Italie [Locatelli et *coll.* 2003]. Les échantillons ont été désaimantés *ex situ* avec un champ magnétique planaire perpendiculaire aux bandes avant de les imager. Un contraste magnétique sélectif de l'élément est obtenu en combinant la microscopie en électrons photoémis (PEEM) avec le dichroïsme magnétique circulaire de rayons X (XMCD). Le faisceau de rayons X polarisé circulairement est envoyé dans le plan $[1\bar{1}0]$ sous un angle d'incidence rasante de 16° . La direction $[1\bar{1}0]$ est approximativement perpendiculaire aux bandes de Fe imagées. L'énergie des photons X a été fixée au seuil d'absorption Fe L_3 . Le contraste magnétique, ou signal XMCD $(I^+ - I^-)/(I^+ + I^-)$, est proportionnel à la projection de l'aimantation selon la direction du faisceau X incident [Schönhense 1999], I^+ et I^- sont les intensités mesurées lorsque le faisceau est polarisé circulairement droit et gauche respectivement. Le contraste chimique est constitué par $(I^+ + I^-)/2$.

La figure 4.6 montre des images X-PEEM prises sur un système Mo/Fe/W/Mo avec un taux de couverture légèrement inférieur à celui du système présenté dans la figure 4.5-c, et présentant des bandes moins larges

et moins ordonnées comme on le voit sur le contraste chimique [Fig. 4.6-(a)]. Dans la figure 4.6-(b) les régions blanches et noires correspondent respectivement aux domaines magnétiques alignés selon les directions $[1\bar{1}0]$ et $[\bar{1}10]$ qui sont presque perpendiculaires aux bandes. Les régions grises correspondent aux domaines alignés selon $[001]$ ou $[00\bar{1}]$ qui sont approximativement parallèles aux bandes, ou à la matière non ferromagnétique entre ces bandes. Ces domaines sont similaires à ceux observés à une échelle mésoscopique et peuvent être compris par des arguments simples [Hubert et Schäfer 1998]. Ces domaines se forment pour satisfaire à la fois à la fermeture de flux du champ dipolaire et pour former des parois des domaines dépourvues de charge. Selon l'orientation locale des bandes par rapport aux directions cristallographiques on observe des parois de domaines à 180° et à 90° schématisées respectivement en encart des figures 4.6-(c) et 4.6-(d). En choisissant sur l'image XMCD 4.6-(b) un profil perpendiculaire à la frontière entre deux domaines, la largeur λ de la paroi de domaine est déduite comme étant la distance horizontale entre les deux points d'intersection entre les bords de parois et la tangente, au milieu de la paroi, à ce profil. Nous trouvons alors [Fig. 4.6-(c) et 4.6-(d)] $\lambda_{180^\circ} \simeq 110 \text{ nm}$ et $\lambda_{90^\circ} \simeq 50 \text{ nm}$ vérifiant $\lambda_{180^\circ} \sim 2\lambda_{90^\circ}$ comme prévu. Notons enfin que la valeur déduite pour λ_{90° est proche de la résolution latérale attendue du microscope qui est de quelques dizaines de nm en mode PEEM.

4.4 Conclusion

En conclusion, nous avons mis en évidence que les bandes auto-organisées de Fe/W(110) sont ferromagnétiques à température ambiante, surmontant ainsi le superparamagnétisme rapporté dans la littérature pour les systèmes épitaxiés auto-organisées d'épaisseur bien plus faible. Le caractère ferromagnétique a été illustré démontrant, dans des systèmes similaires mais d'anisotropie différente, deux propriétés essentielles dans les applications de matériaux magnétiques :

- Pour un système possédant un axe de facile aimantation clairement défini, nous avons mis en évidence une forte rémanence (85 %) ainsi qu'une coercitivité significative et peu dépendante de la température entre 0 K et 300 K. Ces propriétés sont à la base de des applications utilisant des matériaux ferromagnétiques durs,
- Sur un système de plus faible anisotropie nous avons démontré la possibilité à 300 K d'obtenir une subdivision en domaines, un comportement caractéristique des matériaux doux dans les applications.

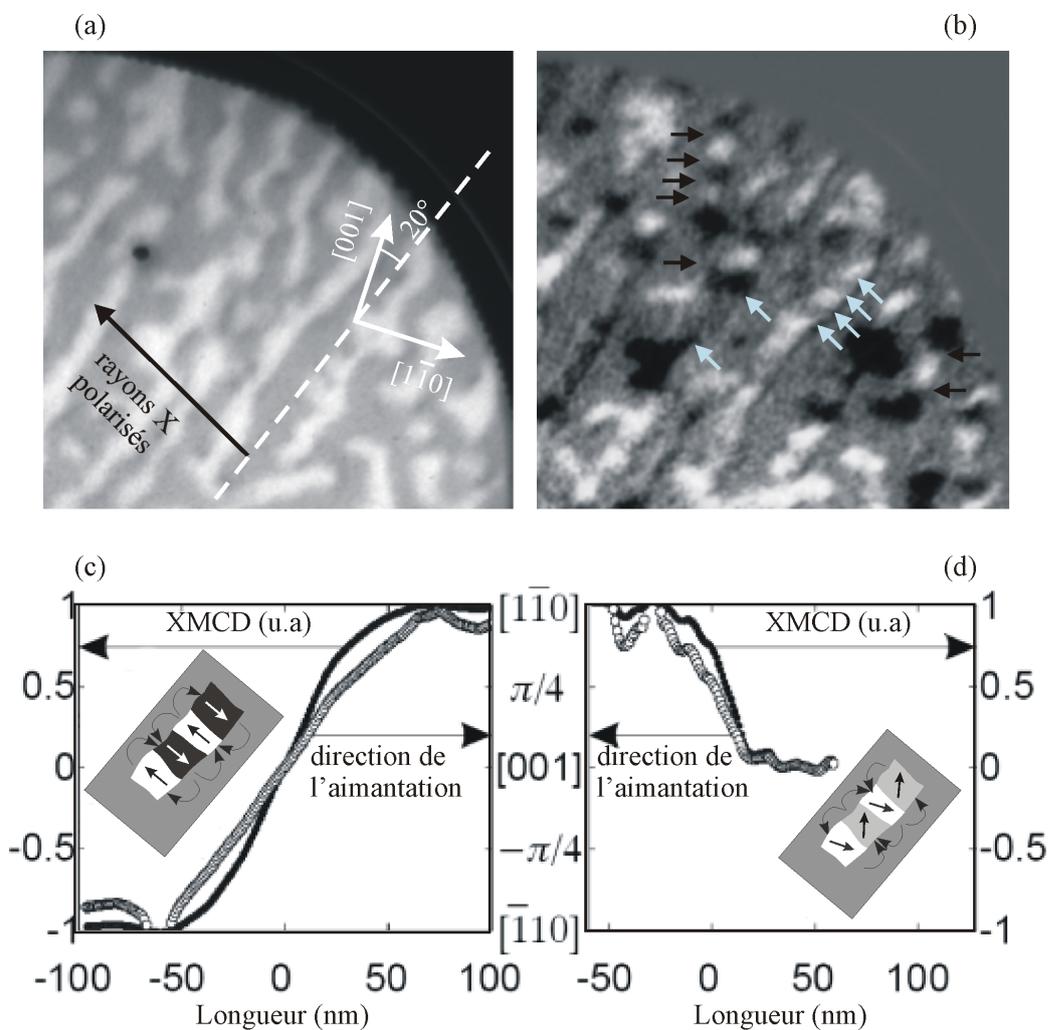


FIG. 4.6 – Images PEEM $2.25\mu\text{m} \times 2.25\mu\text{m}$ sur une même zone d'un échantillon Fe/W/Mo : contrastes (a) chimique et (b) magnétique. Dans (b) les couleurs blanc, gris et noir représentent des domaines magnétiques à aimantation parallèle, antiparallèle et perpendiculaire au faisceau de rayon X (respectivement), et les flèches pointant vers la droite (gauche) indique quelques parois de domaines à 180° (90°). (c-d) profils de parois à 180° (c) et à 90° (d). La direction de l'aimantation est calculée comme $\arccos(\text{XMCD})$. Encart : schéma de domaines à fermeture de flux indiqués par un ensemble de flèches dans (b). La ligne pointillée schématise la fermeture ou le champ de fuite.

Chapitre 5

Modélisation : modèle micromagnétique analytique du retournement d'aimantation dans une nanostructure ultramince

Ce chapitre présente une amélioration et une extension d'un modèle analytique de renversement d'aimantation dans des îlots et bandes plats ultraminces avec une anisotropie uniaxiale planaire, avec pour objectif de mieux comprendre le renversement d'aimantation de certaines structures de Fe(110) réalisées durant la thèse, notamment les bandes, et plus généralement d'autres structures épitaxiées auto-assemblées fabriquées au LLN. Le modèle est basé sur le concept du couple de bord : tous les effets du champ démagnétisant sont appliqués sous forme d'un couple ponctuel appliqué au bord de la structure. Le modèle prédit l'état d'aimantation et le champ de renversement h_r en fonction de l'aimantation, de l'épaisseur du plot et de l'orientation du bord dans le plan. Ce modèle est en excellent accord avec des simulations numériques. Nous proposons à la fin de ce chapitre une loi d'échelle approximative mais fiable permettant une estimation rapide et simple de h_r . Le modèle est valide pour des îlots d'épaisseur plus faible que la longueur d'échange et la largeur de paroi de domaine, et de taille latérale largement plus grande que chacune de ces deux longueurs.

5.1 Introduction

Ce modèle analytique a été développé dans l'idée de mieux comprendre le renversement d'aimantation de nanostructures auto-assemblées monodomaines, notamment de nouvelles structures optimisées dans la thèse : bandes de quelques nanomètres d'épaisseur (par exemple Fe(5.5 nm)/W(110), voir page 51), plots facettés d'épaisseur modérée (par exemple Fe/W(110) déposé à haute température, que nous avons démontré être bien plus fins que les plots déjà connus de Fe/Mo(110), et donc susceptibles de présenter un état monodomaine, voir également [Bode et *coll.* 2001]). Un modèle similaire avait déjà été développé au LLN avant le début de la thèse [Fruchart et *coll.* 2001]. Cependant la seule géométrie que considérait ce dernier était le cas d'un bord strictement perpendiculaire à la direction de facile aimantation, alors que les nouvelles structures que nous avons optimisées présentent des extrémités rondes (bandes) ou biseautées (plots compacts). Nous avons donc généralisé le modèle à une orientation de bord quelconque. Une amélioration de la précision des calculs a également été faite.

En pratique, nous avons mené ces calculs et leur résolution au tout début de cette thèse. Ceci a été imposé par un retard de plusieurs mois de réception des chambres ultra-vide de dépôt laser pulsé, suite à des modifications importantes. Le domaine d'application du modèle, c.à.d. structures ultraminces et à bords inclinés, a ainsi dû être défini avant tout nouveau résultat de croissance, en fonction des structures déjà connues pour le cas Fe/Mo(110), et des résultats que nous pensions pouvoir obtenir sur les nouvelles couches tampon. C'est pour cette raison qu'il n'y a pas un recouvrement parfait entre les nouvelles structures obtenues et le modèle. Néanmoins, nous montrerons à la fin du chapitre que la valeur de champ de renversement d'aimantation dans les bandes auto-organisées est correctement reproduite. D'autres structures a priori adaptées au modèle ont été démontrées durant la thèse, mais faute de temps n'ont pu être caractérisées magnétiquement. C'est le cas notamment des îlots plats de Fe/Mo(110) et Fe/W(110). Ces structures seront étudiées dans l'avenir au LLN, et le modèle pourra alors aider à leur compréhension.

Le modèle initial avait été motivé par des résultats expérimentaux [Fruchart et *coll.* 1998b, Wegrowe et *coll.* 1999, Fruchart et *coll.* 1999b] qui avaient mis en évidence une corrélation entre la décroissance de l'épaisseur d'un îlot et l'augmentation du rapport du champ coercitif sur le champ d'anisotropie pour tendre vers un *comportement* de type rotation cohérente pour les plus faibles épaisseurs. À la vue de ces expériences un modèle analytique de renversement d'aimantation a été proposé au laboratoire Louis Néel [Fruchart et *coll.* 2001] afin d'expliquer cette corrélation. Le modèle est adapté au domaine ultramine (≤ 5 nm), pouvant par conséquent prédire l'impact de la

réduction de taille dans les composants futurs.

Plus généralement, le modèle développé répond à un besoin dans la littérature. Durant les dix dernières années de nombreuses études expérimentales se sont intéressées aux processus de retournement d'aimantation dans des îlots microniques ou sub-microniques plats [Martin et *coll.* 2003]. Ces études sont motivées par le développement de dispositifs utilisant de tels plots, comme les capteurs de champ magnétique et les mémoires magnétiques à accès aléatoire (MRAMs) [Hirota et *coll.* 2002]. Ainsi a été cherché l'effet de paramètres tels que la taille et la forme des îlots [Cowburn 2000, Kirk et *coll.* 1999], la rugosité du bord [Endoa et *coll.* 2003, Deak et Koch 2000], l'anisotropie magnéto-cristalline [New et *coll.* 1995, Fernandez et *coll.* 1998] et l'épaisseur du plot [Cowburn 2000, Schneider et Hoffmann 2003].

Du fait de la puissance des ordinateurs, la simulation numérique a pris une grande importance dans l'étude du micromagnétisme. Il semble néanmoins important de ne pas abandonner le micromagnétisme analytique qui reste intéressant du fait de sa capacité à prédire rapidement des comportements généraux, sous la forme de lois d'échelle par exemple.

Nous nous intéressons ici à un système magnétique de dimensions latérales réduites, et plus précisément au renversement d'aimantation dans des îlots et bandes plats, ultraminces, et à anisotropie uniaxiale planaire. Étant en liaison avec les recherches expérimentales de la rotation uniforme durant les cinquante dernières années, ce travail présente un intérêt fondamental. D'un autre coté cette étude concerne les applications comme les vannes de spin [Lu et *coll.* 1997] et les médias d'enregistrement de données qui utiliseraient de tels composants minces [White 1997, Chou et *coll.* 1994].

Les nanostructures magnétiques sont à une échelle intermédiaire entre un matériau massif et un macrospin. Dans le premier cas le renversement d'aimantation peut être décrit par des modèles phénoménologiques de nucléation et propagation de parois ; dans le second cas on peut lui appliquer le modèle de Stoner-Wohlfarth et Néel de rotation uniforme de l'aimantation [Néel 1947, Stoner et Wohlfarth 1948]. Dans le domaine de taille intermédiaire des modèles analytiques peuvent être développés dans les situations les plus simples et les plus symétriques. Ces modèles ont cependant le plus souvent recours à des approximations, et s'intéressent aux nanostructures de matériaux doux [Bryant et Suhl 1989, Grimsditch et *coll.* 2001, Cowburn 2000]

Nous proposons ici une version améliorée de ce modèle, et ma contribution se résume en deux volets [Eleoui et *coll.* 2004]. La première concerne une meilleure évaluation du champ dipolaire réduisant ainsi de 30% la différence de ces résultats par rapport aux simulations numériques considérées comme une référence d'une situation exacte, car sans approxi-

mation. La seconde consiste à généraliser le modèle à des plots de bords orientés selon un angle quelconque par rapport à l'axe de facile aimantation et au champ magnétique extérieur, qui reste appliqué parallèlement à cet axe.

5.2 Préliminaires

Afin de rendre la description plus claire, nous rappelons ici les idées fondamentales du modèle, expliquées en détail dans la version originale [Fruchart et *coll.* 2001].

5.2.1 Principe et approximations du modèle

Nous étudions un îlot de taille latérale beaucoup plus grande que les longueurs caractéristiques du magnétisme, et doté d'une énergie d'anisotropie magnétique non négligeable d'origine microscopique, comme l'énergie magnétocristalline ou d'interface. Par conséquent il est attendu que le renversement de l'aimantation ne soit pas uniforme, qu'il ne suive pas le modèle de Stoner-Wohlfarth [Néel 1947, Stoner et Wohlfarth 1948], et qu'il ne soit pas collectif (faisant participer tous les spins de concert, comme c'est le cas par exemple dans le mode curling [Frei et *coll.* 1957, Aharoni 1996]). Le renversement doit procéder alors par nucléation et propagation d'une paroi de domaine, comme dans les matériaux magnétiques durs. En négligeant les défauts, on s'attend à ce que les volumes de nucléation soient localisés aux bords de l'îlot, où le champ dipolaire démagnétisant est le plus intense. Dans la suite nous introduisons des approximations physiques nous permettant de décrire ces volumes de nucléation analytiquement, et prédire ainsi les caractéristiques du renversement de l'aimantation. Trois approximations sont introduites :

1. L'aimantation reste dans le plan et ne varie pas le long de la normale à la surface, même au bord du plot. Ceci doit être vrai pour des épaisseurs plus petites que les longueurs caractéristiques magnétiques, présentées ci-dessous (§ 5.2.2).
2. Comme les volumes de nucléation grandissent tout près des bords, seule la description des bords est nécessaire pour déterminer la valeur du champ de retournement. Nous supposons en plus une symétrie de translation parallèlement au bord de l'îlot traduisant une variation lente le long de cette direction. Ainsi la géométrie est simplifiée à un îlot semi-infini avec un seul degré de liberté unidimensionnel : la direction, $\omega(z)$ pour $z \leq 0$, de l'aimantation dans le plan par rapport à l'axe d'anisotropie (Fig. 5.1 et Fig. 5.4-page

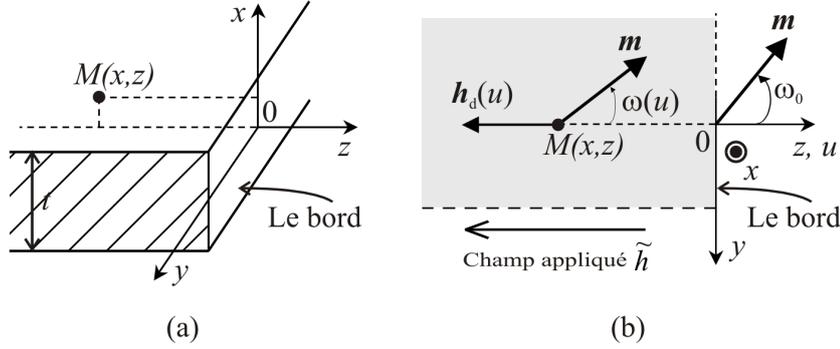


FIG. 5.1 – (a) Géométrie du modèle. Le plot semi-infini correspond à $z < 0$, (b) Vue de dessus du plot. u est la variable réduite sans dimension de z .

98).

3. Dans la résolution de problèmes micromagnétiques, l'énergie dipolaire pose de sérieux problèmes car elle n'est ni locale ni linéaire. C'est ce terme qui empêche la plupart du temps l'établissement de solutions analytiques. C'est donc lui qui fait le plus souvent l'objet d'approximations. Dans notre cas l'effet du champ auto-dipolaire est pris en compte sous forme d'un couple Γ_d appliqué exactement au bord du plot ($z = 0$). Ceci est valide car les champs dipolaires sont à courte portée à deux dimensions, avec une portée comparable à l'épaisseur de la structure considérée. Enfin seules les charges de surface, $\mathbf{M}_s \cdot \mathbf{n}$, localisées au bord, sont prises en compte (les charges de volumes, $-\text{div}\mathbf{M}_s$, sont négligées, \mathbf{n} est le vecteur planaire normal sortant du bord de l'îlot).

Ces approximations nous permettront d'intégrer les équations micromagnétiques et prédire la valeur du champ de nucléation h_n (première déviation d'un état d'aimantation strictement uniforme), puis le profil du volume de nucléation (du bord vers le centre du plot), et finalement le champ de retournement h_r (saut irréversible de l'aimantation). À la vue de ces approximations, le domaine de validité du modèle sera discuté selon l'épaisseur et l'énergie d'anisotropie dans la section 5.7.3.

5.2.2 Grandeurs réduites ou sans dimensions

La plupart des grandeurs figurant dans ce chapitre sont exprimées en unités réduites sans dimension [Fruchart et *coll.* 2001]. En règle générale les lettres majuscules et minuscules représentent des grandeurs dimensionnelles et sans dimension, respectivement. Notant A la constante d'échange ($\text{J}\cdot\text{m}^{-1}$), K la constante d'ordre deux d'anisotropie planaire du matériau du plot

grandeur	expression de l'unité	représentation
longueur	$\sqrt{A/K}$	$L = l\sqrt{A/K}$
aimantation	$\sqrt{K/\mu_0}$	$M_s = m\sqrt{K/\mu_0}$
champ magnétique	$\sqrt{K/\mu_0}$ ou $2K/\mu_0 M_s$	$H = h\sqrt{K/\mu_0}$ $H = \tilde{h} (2K/\mu_0 M_s)$

TAB. 5.1 – Unités servant à définir des grandeurs réduites non dimensionnées dans ce modèle.

(J.m^{-3}), M_s l'aimantation volumique (A.m^{-1}) et H le champ magnétique appliqué (A.m^{-1}), nous employons alors les unités rappelées dans le tableau 5.1. Notons que nous utilisons deux méthodes afin d'obtenir une valeur réduite du champ magnétique, h et \tilde{h} . La première, h , est plus pratique lorsqu'on veut exprimer le champ auto-dipolaire, car alors l'aimantation réduite m et le champ réduit h jouent des rôles symétriques (par exemple, Eq. 5.8). La seconde, \tilde{h} , est plus pratique pour discuter le renversement de l'aimantation car $\tilde{h}_r = -1$ est la valeur pour le modèle de Stoner-Wohlfarth. Nous appelons largeur de paroi de Bloch et longueur d'échange les quantités $\Lambda_{\text{Bl.}} = \pi\sqrt{A/K}$ et $\Lambda_{\text{éch.}} = \sqrt{2A/\mu_0 M_s^2}$. En unités réduites elles valent $\lambda_{\text{Bl.}} = \pi$ et $\lambda_{\text{éch.}} = \sqrt{2}/m$. Étant donné les faibles épaisseurs considérées ici, les parois magnétiques sont de type Néel. Cependant dans le cas de plot ultraminces l'énergie auto-dipolaire devient négligeable du fait de la réduction de l'épaisseur. Ceci explique que $\lambda_{\text{Bl.}}$ reste adéquate pour décrire la paroi de Néel au moins dans le cas de forte anisotropie. Dans le cas d'une anisotropie uniaxiale dans le plan (*c-à-d* entre deux axes du plan), l'énergie magnétique du plot s'écrit (l'énergie dipolaire est prise en compte dans le couple démagnétisant Γ_d , voir section ci-dessus) :

$$E_V = K \sin^2(\omega) + A (\nabla\omega)^2 - \mu_0 M_s H \cos \omega \quad (5.1)$$

ou, en unités réduites :

$$e_V = \sin^2 \omega + (\nabla\omega)^2 - mh \cos \omega \quad (5.2)$$

$$= \sin^2 \omega + (\nabla\omega)^2 - 2\tilde{h} \cos \omega. \quad (5.3)$$

Finalement la variable réduite pour z est noté u . Des évaluations numériques seront souvent effectuées pour $m = 2.81$ pour laquelle des mesures expérimentales sont disponibles [Fruchart et *coll.* 1999c]. Pour $A = 2.0 \times 10^{-11} \text{ J.m}^{-1}$, $K = 4.76 \times 10^5 \text{ J.m}^{-3}$ et $M_s = 1.73 \times 10^6 \text{ A.m}^{-1}$ on a alors $\Lambda_{\text{Bl.}} \simeq 20.4 \text{ nm}$ et $\Lambda_{\text{éch.}} = 3.26 \text{ nm}$.

5.2.3 Procédure de calcul

En pratique nous procédons en trois étapes :

1. La configuration micromagnétique de l'îlot $\omega(u)$ est déterminée par la minimisation locale de l'énergie volumique (Eq. 5.3) (équation d'Euler). Cette configuration peut être décrite analytiquement en supposant connue la rotation de l'aimantation au bord, fixée *a priori* à une certaine valeur $\omega_0 = \omega(u = 0)$.
2. La densité surfacique de charges magnétiques sur le bord est alors $\sigma = m \cos \omega_0$, ce qui permet d'évaluer l'expression du champ dipolaire $h_d(u)$ en tout point et donc le couple démagnétisant microscopique $\gamma_d(u) = \mathbf{m} \wedge \mathbf{h}_d(u)$ appliqué à l'aimantation. Ceci nous permet d'évaluer le couple démagnétisant intégré, appliqué au bord : $\Gamma_d = \int_{-\infty}^0 \gamma_d(u) du$. Finalement on applique l'équation d'Euler sur le bord (condition de Brown à l'équilibre) où les couples d'échange, $\Gamma_{\text{éch.}} = -2(d\omega/du)_{u=0}$, et du champ démagnétisant doivent se compenser mutuellement :

$$\Gamma_{\text{éch.}} + \Gamma_d = 0 \quad (5.4)$$

3. Les valeurs possibles d'équilibre de ω_0 , outre la solution triviale $\omega_0 = 0$, sont alors déterminées de façon auto-cohérente, en résolvant l'équation 5.4. Un développement de l'équation 5.4 jusqu'au cinquième ordre en ω_0 réduit le problème à l'équation simple de second ordre suivante :

$$A \left(\frac{\omega_0}{2} \right)^4 + B \left(\frac{\omega_0}{2} \right)^2 + C = 0. \quad (5.5)$$

Les expressions de A , B et C sont données dans [Fruchart et *coll.* 2001]. Les prédictions du modèle précédent sont reproduites sur la figure 5.2. \tilde{h}_r croît, en valeur absolue, lorsque l'épaisseur diminue, jusqu'à la prédiction de Stoner-Wohlfarth $|\tilde{h}_r| = 1$ dans la limite mathématique d'une épaisseur nulle, *c-à-d* dans le cas d'un champ dipolaire évanescent. Noter que le modèle ne tient pas compte de l'activation thermique.

5.3 Amélioration de la précision du modèle existant

Dans les deux versions du modèle \mathbf{m} est considéré uniforme le long de l'épaisseur de l'îlot, et le champ démagnétisant \mathbf{h}_d est évalué en tenant compte

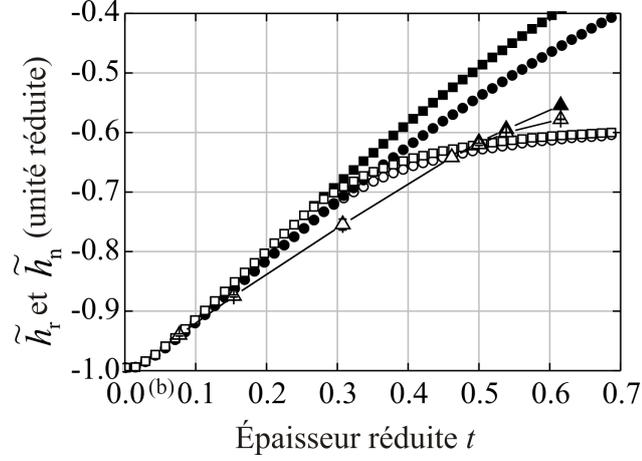


FIG. 5.2 – Champs de nucléation (symboles pleins) et de renversement (symboles blancs), prédits par [Fruchart et *coll.* 2001](carrés), le modèle présent (cercles), et les simulations numériques (triangles) [Fruchart et *coll.* 2001].

des charges magnétiques de surface seulement, données par la densité surfacique $\sigma = \mathbf{m} \cdot \mathbf{n} = m \cos \omega_0$ négligeant ainsi les charges de volume. La géométrie du problème (Fig. 5.1) impose qu'en tout point $M(x, y, u)$ du plot, le champ dipolaire ne dépend que des deux coordonnées perpendiculaire x et horizontale u . Pour simplifier les calculs, la valeur du champ dipolaire $\mathbf{h}_d(x, u)$ dans le modèle précédent était prise égale à sa valeur à mi-hauteur du plot ($x = 0$). Ceci induit une surestimation de la moyenne selon x de \mathbf{h}_d , en particulier tout près du bord qui porte les pôles magnétiques. Ma première contribution consiste à calculer la valeur moyenne exacte selon x du champ dipolaire agissant sur \mathbf{m} . Pour chaque $u < 0$ à l'intérieur de l'îlot, la composante sur x de \mathbf{h}_d a une valeur moyenne nulle. La composante sur u de \mathbf{h}_d est (voir Annexe A) :

$$h_d(x, u) = \frac{\sigma}{2\pi} \left[\arctan \left(\frac{2x + t}{2u} \right) - \arctan \left(\frac{2x - t}{2u} \right) \right] \quad (5.6)$$

et sa valeur moyennée sur x est :

$$h_d(u) = \langle h_d(x, u) \rangle = \frac{1}{t} \int_{-t/2}^{t/2} h_d(x, u) dx. \quad (5.7)$$

ceci donne finalement :

$$h_d(u) = \frac{\sigma}{\pi} f(u). \quad (5.8)$$

Dans la version précédente du modèle on a $f(u) = \arctan(t/2u)$, alors qu'ici :

$$f(u) = \left[\arctan\left(\frac{t}{u}\right) - \frac{u}{2t} \ln\left(1 + \frac{t^2}{u^2}\right) \right]. \quad (5.9)$$

Les calculs se complètent de la même façon que celle reportée en détail dans [Fruchart et coll. 2001]. Le couple démagnétisant total est donné par

$$\Gamma_d = \int_{-\infty}^0 \gamma_d(u) du \quad (5.10)$$

avec

$$\gamma_d(u) = -\frac{m^2 \cos \omega_0}{\pi} \sin[\omega(u)] f(u) \quad (5.11)$$

Après un développement de $\gamma_d(u)$ jusqu'au cinquième ordre en fonction de ω_0 , et intégration, on trouve une formule du même type que celle dans [Fruchart et coll. 2001] :

$$\begin{aligned} \Gamma_d = & \frac{4m^2}{\pi} \left\{ \frac{J_1}{2} \left(\frac{\omega_0}{2}\right) \right. \\ & + \left[-\frac{1}{6}(5J_1 + 3J_3) + \frac{\alpha^2}{8}(J_1 - J_3) \right] \left(\frac{\omega_0}{2}\right)^3 \\ & + \left[\frac{1}{30}(2J_1 + 15J_3 + 15J_5) + \frac{\alpha^2}{8}(-J_1 - 2J_3 + 3J_5) \right. \\ & \left. + \frac{\alpha^4}{32}(2J_1 - 3J_3 + J_5) \right] \left(\frac{\omega_0}{2}\right)^5 \\ & \left. + O(\omega_0)^7 \right\} \quad (5.12) \end{aligned}$$

où $\alpha = \sqrt{-\tilde{h}/(1 + \tilde{h})}$ et

$$J_k = - \int_{-\infty}^0 e^{\mu_k u} f(u) du \quad (5.13)$$

avec $\mu_k = k\sqrt{1 + \tilde{h}}$. Les intégrales J_k diffèrent des I_k de [Fruchart et coll. 2001], à cause de la nouvelle expression de $f(u)$. Après intégration on trouve

$$J_k = \frac{1}{\mu_k} \left\{ \frac{\pi}{2} + \frac{1}{t\mu_k} [\text{ci}(t\mu_k) \cos(t\mu_k) + \text{si}(t\mu_k) \sin(t\mu_k) - C - \ln(t\mu_k)] \right\} \quad (5.14)$$

où C est la constante d'Euler, ci et si sont les fonctions cosinus et sinus intégral respectivement [Gradshteyn et Ryzhik 1994, Fruchart et coll. 2001].

Les états d'équilibre sont trouvés en cherchant les positions d'équilibre du spin du bord et ils sont (outre la solution triviale $\omega_0 = 0$) solution de l'Eq. 5.5 où A , B , et C ont exactement les mêmes expressions que celles de [Fruchart et coll. 2001], en remplaçant les intégrales I_k par les nouvelles J_k . L'équation 5.5 a deux racines :

$$\Omega_0^\pm = \left(\frac{\omega_0^\pm}{2} \right)^2 = \frac{-B \pm \sqrt{\Delta}}{2A}. \quad (5.15)$$

ω_0 a une valeur choisie arbitrairement positive. Il n'y a donc au plus que trois états d'équilibre possibles :

- Pour $\Delta > 0$ et $\Omega_0^- > 0$. Il y a trois solutions d'équilibre : 0 , ω_0^- et ω_0^+ avec $\omega_0^+ > \omega_0^- > 0$. ω_0^+ a la valeur la plus élevée et représente le sommet de la barrière d'énergie qui empêche le retournement. La solution stable est ω_0^- et la configuration est non uniforme (NU) près du bord.
- Pour $\Delta > 0$, $\Omega_0^- < 0$, $\Omega_0^+ > 0$ il y a deux solutions d'équilibre : $\omega_0 = 0$ et $\omega_0^+ > 0$. $\omega_0^+ > 0$ est à nouveau une position d'équilibre instable. L'état stable est mono-domaine (MD) : $\omega^{\text{stable}}(u) = \omega_0 = 0 \forall u$.
- Pour $\Delta < 0$, ou ($\Delta > 0$ et $\Omega_0^\pm < 0$) il y a une seule solution d'équilibre $\omega_0 = 0$, qui est instable, ce qui veut dire que l'aimantation est déjà renversée.

Remarquons qu'il y a au plus un état d'équilibre stable. Nous définissons le champ de retournement \tilde{h}_r comme le champ à appliquer pour que l'état stable disparaisse, provoquant un saut irréversible de l'aimantation. \tilde{h}_r est déterminé par $\omega_0^-(\text{stable}) = \omega_0^+(\text{instable})$ dans le cas NU, et par $\omega_0^+(\text{instable}) = 0$ (stable) dans le cas MD. Dans le cas NU nous déterminons le champ de nucléation \tilde{h}_n lorsque $\omega_0^- = 0$ (première déviation à l'état strictement uniforme).

La figure 5.3 montre les états d'équilibre stable et instable en fonction du champ appliqué, pour différentes épaisseurs t , prédits par le modèle présent. Les résultats sont qualitativement identiques dans les deux versions du modèle. En dessous d'une certaine épaisseur ($t_c \simeq 0.273$) l'aimantation est strictement uniforme sous tout champ appliqué, et le renversement de l'aimantation est abrupt allant directement de l'état MD, anti-parallèle au champ appliqué, à l'état MD parallèle à ce champ. Pour des plots plus épais ($t > t_c$) l'aimantation, tout d'abord strictement MD à fort champ, se trouve dans un état stable NU, avant le renversement brutal. La transition d'un état MD anti-parallèle vers l'état NU est de second ordre : ω_0 change continûment et réversiblement de zéro à une valeur positive lorsque $\tilde{h} = \tilde{h}_n$. Des résultats similaires sont obtenus pour des valeurs différentes de m .

La figure 5.2 montre les valeurs de \tilde{h}_r et \tilde{h}_n prédites par des calculs numériques effectués sur un plot semi-infini sans approximations, et

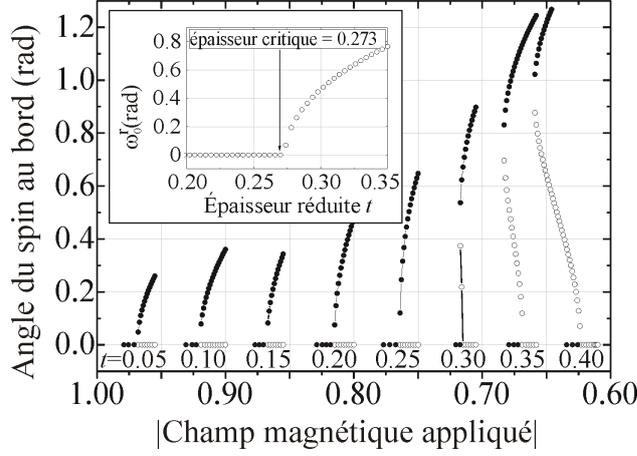


FIG. 5.3 – États d'équilibre stable (\circ) et instable (\bullet) prédits par le modèle amélioré pour un îlot de bord perpendiculaire à l'axe d'anisotropie et d'épaisseur allant de 0.05 à 0.40. Encart : ω_0^r (ω_0 juste avant le retournement), en fonction de l'épaisseur. La transition de l'état MD vers l'état NU, juste avant le renversement, se produit à $t_c = 0.273$.

considérés alors comme référence. En réalité ces calculs numériques sur une bande très large fournit une loi d'échelle en fonction de la largeur de la bande permettant d'extrapoler les résultats pour une largeur infinie (voir §5.7.1). Comme prévu, le modèle de départ surestime le champ dipolaire ; par conséquent \tilde{h}_r et \tilde{h}_n ont des valeurs plus faibles en valeur absolue. Le nouveau modèle permet de réduire la différence par rapport aux simulations micromagnétiques par 30 %.

5.4 Extension du modèle à un bord incliné

Ma seconde contribution consiste à étendre le modèle au cas où le bord du plot semi-infini est incliné dans le plan d'un angle β par rapport à l'axe de facile aimantation (Fig. 5.4) ($\beta = 90^\circ$ précédemment). Le champ est toujours appliqué parallèlement à l'axe d'anisotropie et le champ dipolaire est exprimé en utilisant la formule décrite auparavant (Eq. 5.8 et 5.9). La densité de pôles magnétiques au bord, dans ce cas, devient : $\sigma = m \sin(\beta - \omega_0)$, d'où

$$\Gamma_d = \frac{m^2 \sin(\beta - \omega_0)}{\pi} \times \left\{ - \int_{-\infty}^0 f(u) \cos[\beta - \omega(u)] du \right\} \quad (5.16)$$

où f est définie par la même équation (Eq. 5.9). Le développement de l'Eq. 5.16 donne :

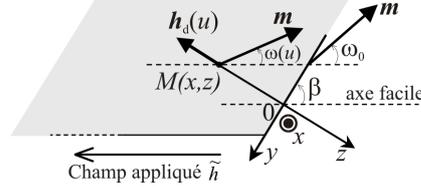


FIG. 5.4 – Vue de dessus de la nouvelle géométrie dans le modèle généralisé : le bord est incliné d'un angle arbitraire β ($\beta \neq 90^\circ$) par rapport à l'axe de facile aimantation.

$$\begin{aligned}
\Gamma_d = & \frac{m^2}{\pi} \left\{ \frac{1}{2} J_0 \sin(2\beta) \right. \\
& + \left(\frac{\omega_0}{2} \right) [2(J_1 \sin^2 \beta - J_0 \cos^2 \beta)] \\
& - \left(\frac{\omega_0}{2} \right)^2 \sin(2\beta) [J_2 + 2J_1 + J_0] \\
& + \left(\frac{\omega_0}{2} \right)^3 \left[2 \left(\frac{1}{3} + \frac{\alpha^2}{4} \right) (J_1 \sin^2 \beta - J_0 \cos^2 \beta) \right. \\
& \quad \left. + \frac{\alpha^2}{2} \left(1 + \frac{4}{\alpha^2} \right) (-J_3 \sin^2 \beta + J_0 \cos^2 \beta) + 4(J_2 \cos^2 \beta - J_1 \sin^2 \beta) \right] \\
& + \left(\frac{\omega_0}{2} \right)^4 \sin(2\beta) \left[-2 \left(\frac{1}{3} + \frac{\alpha^2}{4} \right) (J_2 + 2J_1 + J_0) + \right. \\
& \quad \left. + \left(\frac{\alpha^2}{2} + 1 \right) (J_4 + J_0) + \left(\frac{\alpha^2}{2} + 2 \right) (J_3 + J_1) + 2J_2 \right] \\
& + \left(\frac{\omega_0}{2} \right)^5 \left[4 \left(\frac{1}{15} + \frac{\alpha^2}{8} + \frac{\alpha^4}{16} \right) (J_1 \sin^2 \beta - J_0 \cos^2 \beta) + \right. \\
& \quad + \frac{\alpha^2}{2} \left(1 + \frac{3\alpha^2}{4} \right) \left(1 + \frac{4}{\alpha^2} \right) (-J_3 \sin^2 \beta + J_0 \cos^2 \beta) + \\
& \quad + 4 \left(1 + \frac{3\alpha^2}{4} \right) (J_2 \cos^2 \beta - J_1 \sin^2 \beta) \\
& \quad + \left(\frac{\alpha^2}{8} + \frac{3\alpha^2}{2} + 2 \right) (J_5 \sin^2 \beta - J_0 \cos^2 \beta) + \\
& \quad + 2\alpha^2 \left(1 + \frac{2}{\alpha^2} \right) (-J_4 \cos^2 \beta + J_1 \sin^2 \beta) \\
& \quad \left. \left. + \alpha^2 \left(1 + \frac{4}{\alpha^2} \right) (J_3 \sin^2 \beta - J_2 \cos^2 \beta) \right] \right\} \tag{5.17}
\end{aligned}$$

Les états d'équilibre sont alors les racines du polynôme de cinquième degré suivant

$$A_0 + A_1 \left(\frac{\omega_0}{2}\right) + A_2 \left(\frac{\omega_0}{2}\right)^2 + A_3 \left(\frac{\omega_0}{2}\right)^3 + A_4 \left(\frac{\omega_0}{2}\right)^4 + A_5 \left(\frac{\omega_0}{2}\right)^5 = 0. \quad (5.18)$$

Les coefficients A_i sont fonction de m , \tilde{h} et des intégrales J_k définies précédemment par les équations 5.13 et 5.14. Pour $\beta \neq 90^\circ$ \mathbf{h}_d n'est plus parallèle à l'axe de facile aimantation, même très loin du bord, et \mathbf{h}_d n'est pas anti-parallèle à \mathbf{m} . Par conséquent le couple démagnétisant local $\gamma_d(u) = \mathbf{m} \wedge \mathbf{h}_d(u)$ décroît comme $1/u$ loin du bord. Il en résulte que le couple démagnétisant total défini mathématiquement par l'Eq 5.16 diverge logarithmiquement. En fait, en regardant l'Eq. 5.13 on constate que tous les J_k convergent rapidement pour $k > 0$, alors que seule J_0 diverge logarithmiquement. Ce problème n'est pas physique et résulte de l'approximation du couple de bord. Afin de surmonter ce problème de divergence non physique de Γ_d on introduit une longueur de coupure u_c afin d'évaluer J_0 . La valeur de u_c doit correspondre à celle découlant des résultats physiques, et elle a été déterminée comme suit : Dans le cas où $\beta = 90^\circ$ la formule donnant Γ_d (Eq. 5.12) ne fait pas intervenir J_0 , et donc est convergente. La valeur convenable de u_c a été prise égale à la longueur pour laquelle les résultats intégrés numériquement avec une longueur de coupure u_c coïncident avec les résultats exacts [(Eq. 5.5), *c-à-d* sans aucune coupure]. Cette procédure donne approximativement $u_c = 15\lambda_{\text{éch.}}$ indépendamment de l'épaisseur considérée de l'îlot. Notons que, à cause de la divergence logarithmique lente de J_0 , l'utilisation d'une valeur légèrement surestimée de u_c donne des résultats très similaires. Par conséquent les résultats du modèle ne dépendent pas de façon critique de la valeur exacte de u_c pourvu que $u_c \gtrsim 15\lambda_{\text{éch.}}$. Notons finalement que l'intégration numérique avec des valeurs croissantes de u_c jusqu'à ce que les résultats soient stationnaires est une procédure alternative pour la détermination de u_c . Contrairement à la procédure décrite ci-dessus, cette procédure alternative peut être appliquée avec un angle arbitraire du bord β , et a montré que u_c est peu dépendant de β . Dans la suite, tous les résultats présentés sont obtenus en prenant $u_c = 15\lambda_{\text{éch.}}$ et J_0 est évalué d'après l'expression

$$J_0 = - \int_{-u_c}^0 f(u) du = t \left[\frac{3}{4} + \frac{1}{4} \ln \left(1 + \frac{u_c^2}{t^2} \right) \right]. \quad (5.19)$$

Les états d'équilibre ω_0 sont déterminés en résolvant numériquement l'équation 5.18. *L'avantage de ce développement analytique est que la résolution numérique est réduite à la résolution d'une équation de cinquième ordre, évitant ainsi l'évaluation numérique d'intégrales ou même des cal-*

culs micromagnétiques complets en utilisant les équation de Landau-Lifschitz-Gilbert.

5.5 Évaluations numériques

La figure 5.5 résume, en coordonnées cartésiennes, la variation du champ de retournement \tilde{h}_r prédit par le modèle, en fonction de l'orientation β , et pour plusieurs épaisseurs du plot t . La figure 5.6 montre une représentation en coordonnées polaires du champ de retournement, pour différentes épaisseurs, en fonction de l'orientation du bord. Rappelons que le champ magnétique extérieur est toujours appliqué parallèlement à l'axe d'anisotropie. Le champ dipolaire allant croître en faisant augmenter t , on trouve alors comme prévu, que, pour toute orientation du bord, $|\tilde{h}_r|$ décroît lorsque l'épaisseur t croît. Regardons maintenant la dépendance de $|\tilde{h}_r|$ en fonction de l'orientation du bord. Pour toute épaisseur t le champ de renversement $|\tilde{h}_r|$ est maximum (en valeur absolue) pour $\beta = 0^\circ$ et égal à 1 [la valeur du champ d'anisotropie en unités réduites (Tab. 5.1)]. Essayons de donner une image simple à ce cas. Pour $\beta = 0^\circ$ l'axe d'anisotropie est parallèle au bord du plot, alors les charges magnétiques sur ce bord sont nulles, et l'énergie dipolaire est identiquement zéro. Par conséquent il y a seulement une compétition entre l'énergie Zeeman et l'énergie d'anisotropie. C'est exactement la situation rencontrée dans le modèle du retournement uniforme, avec un champ magnétique extérieur parallèle à l'axe de facile aimantation, et pour laquelle le champ de retournement est égal à 1 [Néel 1947, Stoner et Wohlfarth 1948]. La dépendance complète de \tilde{h}_r en fonction de β est plus compliquée. Aux faibles épaisseurs on observe un maximum local de $|\tilde{h}_r|$ associé avec un point de retroussement à $\beta = 90^\circ$. Un minimum absolu est atteint à un angle intermédiaire dépendant de l'épaisseur. Fig. 5.6 présente des similarités avec l'astroïde bien connue de Stoner-Wohlfarth [Slonczewski 1956], bien que dans le cas présent seule une fraction du champ magnétique fait un angle avec la direction de l'axe facile magnétocristallin (la fraction liée champ dipolaire), alors que le champ extérieur reste parallèle à la direction de l'axe facile magnétocristallin. *La similarité avec l'astroïde de Stoner-Wohlfarth est donc seulement qualitative.* Aux épaisseurs croissantes le minimum absolu de $|\tilde{h}_r|$ est déplacé vers $\beta = 90^\circ$, pour remplacer finalement le maximum local au-delà d'une épaisseur critique autour de 0.35, légèrement plus grande que l'épaisseur critique $t_c = 0.273$ (Fig. 5.3). Il n'est pas évident si la similarité entre ces deux chiffres est une coïncidence ou pas.

Examinons à présent le détail des volumes de nucléation. La figure 5.7 montre la direction de l'aimantation au bord juste avant le renversement, ω_0^r ,

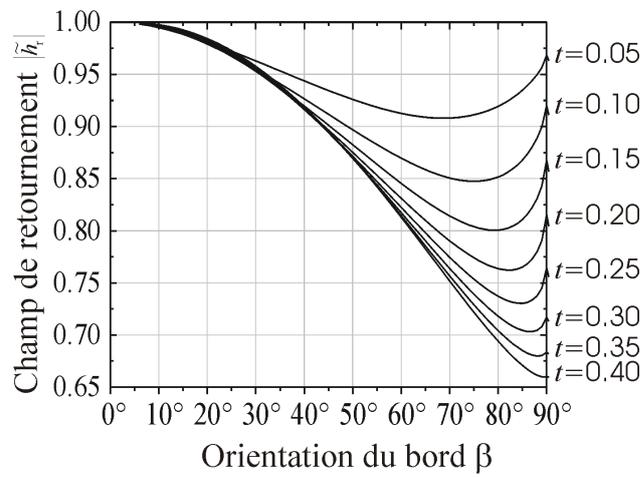


FIG. 5.5 – Champ de retournement $|\tilde{h}_r|$ prédit par le modèle analytique en fonction de l'orientation du bord β pour différentes épaisseurs.

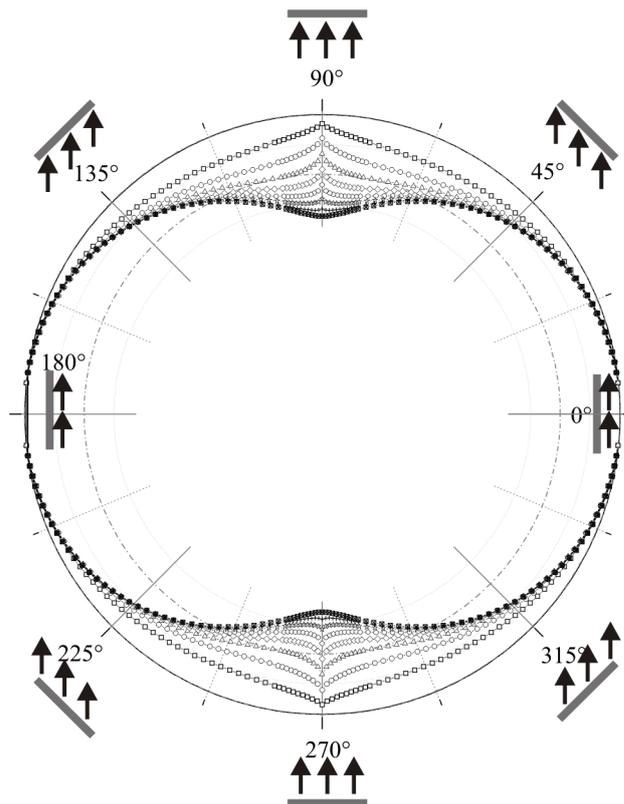


FIG. 5.6 – Représentation polaire du champ de retournement $|\tilde{h}_r|$ prédit par le modèle analytique en fonction de l'orientation du bord et pour différentes épaisseurs : l'angle est l'orientation du bord β et le rayon représente $|\tilde{h}_r|$.

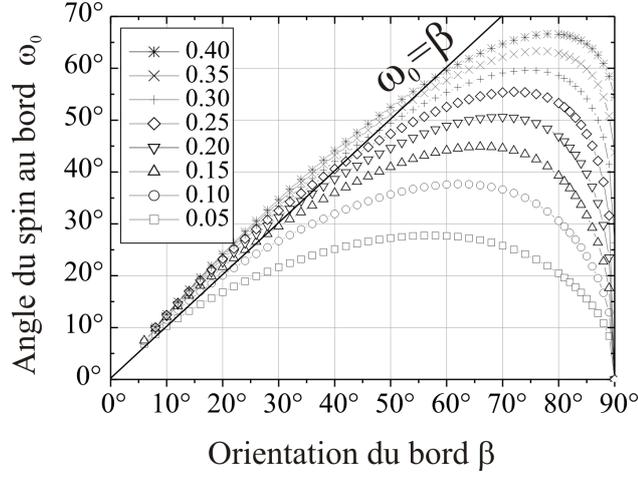


FIG. 5.7 – Angle de l'aimantation au bord juste avant le retournement ω_0^r en fonction de l'orientation du bord du plot β , pour des épaisseurs t de 0.05 à 0.40.

en fonction de la direction du bord β . Aux faibles inclinaisons β les prédictions du modèle sont proches d'une droite de pente 1 ($\omega_0^r = \beta$), ce qui veut dire que l'aimantation au bord est parallèle à ce bord juste avant le renversement. Ceci peut être compris parce que cette configuration réduit significativement Γ_d tout en n'augmentant que modérément l'énergie d'échange. Aux grands β le coût en énergie d'échange est trop élevé. Par conséquent l'aimantation ne peut jamais se tenir parallèle au bord. Finalement la figure 5.8 montre des exemples de profil d'aimantation en partant du bord vers l'intérieur du plot, pour différents champs appliqués. Ces courbes seront discutées à la lumière des résultats des simulations (§5.7)

5.6 Loi d'échelle approximative pour le champ de retournement

Bien que les calculs numériques ne requièrent pas de capacités particulières (voir annexe A) nous proposons une loi d'échelle polynomiale qui simule empiriquement la variation de $\tilde{h}_r(m, t, \beta)$:

$$\log(1 + \tilde{h}_r) = a(m, \beta) + b(m, \beta) \log(t) + c(m, \beta) \log^2(t) \quad (5.20)$$

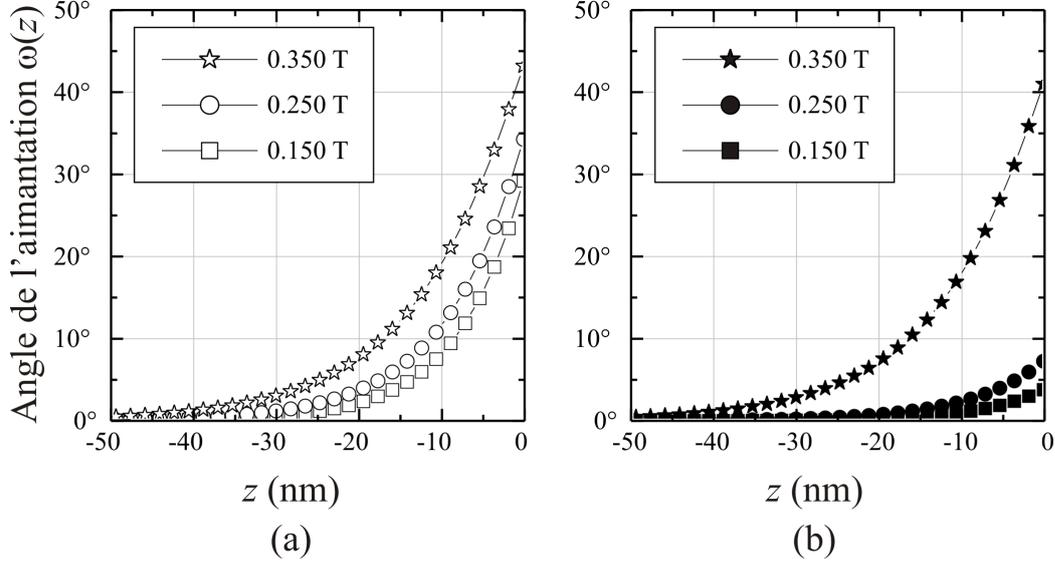


FIG. 5.8 – Profils d'aimantation $\omega(z)$ prédits par le modèle dans un îlot d'épaisseur 27 \AA pour différents champs appliqués : Dans (a) l'orientation du bord est $\beta = 70^\circ$, et dans (b) $\beta = 89^\circ$.

où $a(m, \beta)$, $b(m, \beta)$ et $c(m, \beta)$ sont fonctions polynomiales de m et β :

$$a(m, \beta) = a_0(m) + a_1(m)\beta + a_2(m)\beta^2 \quad (5.21)$$

$$b(m, \beta) = b_0(m) + b_1(m)\beta + b_2(m)\beta^2 \quad (5.22)$$

$$c(m, \beta) = c_0(m) + c_1(m)\beta + c_2(m)\beta^2 \quad (5.23)$$

avec $a_i(m)$, $b_i(m)$ et $c_i(m)$ ($i \in \{0, 1, 2\}$) des fonctions polynomiales de m :

$$a_i(m) = a_{i0} + a_{i1}m + a_{i2}m^2 \quad (5.24)$$

Les coefficients a_{ij} , b_{ij} et c_{ij} ($i, j \in \{0, 1, 2\}$) sont donnés dans les trois matrices suivantes, respectivement, avec β en degrés.

$$[a_{ij}] = \begin{pmatrix} -1.156840 & -0.886400 & 0.094000 \\ 0.019510 & 0.018440 & -0.002300 \\ -0.000027 & -0.000135 & 0.000017 \end{pmatrix} \quad (5.25)$$

$$[b_{ij}] = \begin{pmatrix} 1.161640 & -1.159410 & 0.152820 \\ -0.025000 & 0.022940 & -0.003410 \\ 0.000561 & -0.000298 & 0.000036 \end{pmatrix} \quad (5.26)$$

$$[c_{ij}] = \begin{pmatrix} 0.005700 & -0.270650 & 0.046350 \\ -0.008360 & 0.007290 & -0.001180 \\ 0.000190 & -0.000114 & 0.000014 \end{pmatrix} \quad (5.27)$$

Cette loi constitue la meilleure simulation des résultats du modèle dans les limites suivantes $2.4 \leq m \leq 6.0$, $t < 0.4$ et n'importe-quelle inclinaison β . La précision de cette loi d'échelle est dans tous les cas meilleure que 1%, sauf pour les valeurs de β les plus proches de 90° où l'erreur atteint 4% au maximum.

5.7 Comparaison avec des simulations numériques et discussion

Dans la suite nous utilisons les résultats de simulations numériques comme référence afin de tester la validité du modèle. Ces simulations sont effectués en collaboration avec J.-C. Toussaint au laboratoire Louis Néel, avec qui les discussions ont beaucoup apporté au modèle. Une première comparaison est déjà présentée à la fin de la section 5.3 dans le cas d'un bord strictement perpendiculaire à l'axe d'anisotropie.

5.7.1 Procédé de calcul numérique

Les calculs numériques sont effectués par intégration des équations de Landau-Lifschitz-Gilbert en employant la méthode des différences finies [Toussaint et *coll.* 2002], sous des conditions quasi-statiques d'une saturation positive jusqu'aux champs négatifs. Des conditions périodiques sont utilisées le long de la direction y , parallèle au bord, afin de simuler l'infinité latérale du plot. La taille de maillage est de 5 \AA . Comme il n'est pas possible de considérer un plot semi-infini en différences finies (maillage uniforme), nous avons considéré des bandes de largeur w . La largeur w de la bande (c -à- d le long de u) varie de 100 nm à 500 nm. Nous avons trouvé ensuite qu'une loi en $1/w^2$ est convenable pour extrapoler les résultats à un plot de largeur w infinie, afin de les comparer avec le modèle décrivant un plot semi-infini. Finalement les valeurs de \tilde{h}_r et la direction, ω_0^r , de l'aimantation au bord à \tilde{h}_r^+ , ont été affinées en employant une loi en carrée de l'inverse de susceptibilité : $\chi \sim 1/\sqrt{\tilde{h} - \tilde{h}_r}$ [Hubert et Rave 1999, Fruchart et *coll.* 2001]. Ceci nous permet de réduire les effets dus au pas du champ utilisé dans la simulation.

5.7.2 Comparaison des valeurs du champ de retournement

Pour toutes les inclinaisons β on trouve un bon accord entre les valeurs $|\tilde{h}_r|$ prédites par le modèle et les simulations (Fig. 5.9). L'accord est meilleur

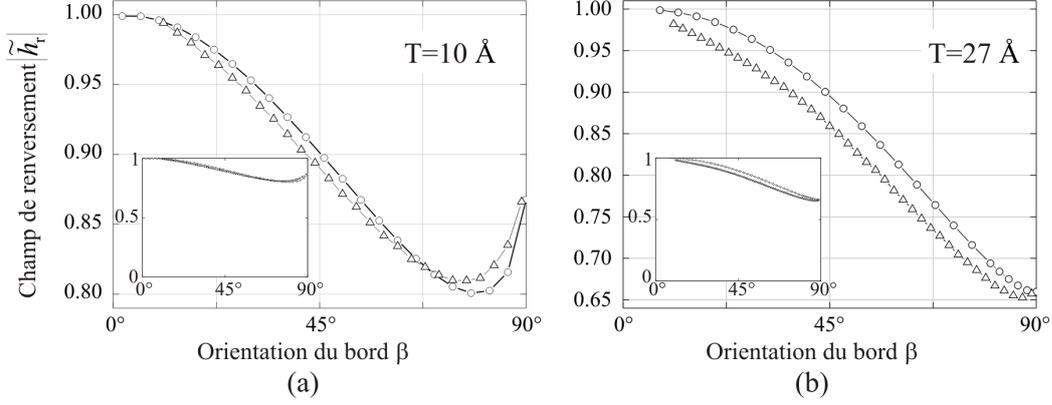


FIG. 5.9 – Champ de retournement $|\tilde{h}_r|$ prédit par le modèle (\circ) et les simulations numériques (\triangle) pour deux épaisseurs 10 \AA (a) et 27 \AA (b). Encarts : Mêmes courbes mais avec une échelle complète.

aux faibles épaisseurs. Puisque la géométrie du modèle (approximation 2) est identique à celle des simulations, ce bon accord prouve que les approximations 1 et 3 utilisées dans le modèle sont physiquement justifiées. En particulier, cela montre que le fait de concentrer tous les effets démagnétisants au bord du plot (couple du bord, approximation 3) est physiquement pertinent dans le cas de plots plats et minces constitués de matériau magnétique dur, quelle que soit l'orientation du bord. Cela étend la conclusion de [Fruchart et *coll.* 2001], et confirme en plus la justification du concept du couple au bord discuté pour la première fois dans [Hubert et Rave 1999].

5.7.3 Domaine de validité du modèle

Nous avons noté ci-dessus que l'accord du modèle avec la simulation est meilleur pour les structures les plus fines. Ceci est attendu d'après les trois approximations du modèle, proposées dans la section (§ 5.2.1), qui sont justifiées par de faibles épaisseurs. Dans cette section nous proposons des arguments afin de déterminer le domaine de validité quantitatif de ces trois approximations, en termes d'épaisseur et de valeur d'anisotropie.

Pour satisfaire l'approximation 1 l'aimantation ne doit pas être libre de varier sur une distance t le long de la normale à la surface du plot. t doit alors être raisonnablement plus petit que Λ_{Bl} et $\pi\Lambda_{\text{ex}}$. Par conséquent deux conditions sont nécessaires : $t \lesssim \sqrt{A/K}$ et $t \lesssim \sqrt{2A/\mu_0 M_s^2}$.

Afin de satisfaire l'approximation 2 la longueur du bord considéré doit être significativement plus grande que Λ_{Bl} et $\pi\Lambda_{\text{ex}}$.

L'approximation 3 comporte deux aspects. Le premier est que les volumes

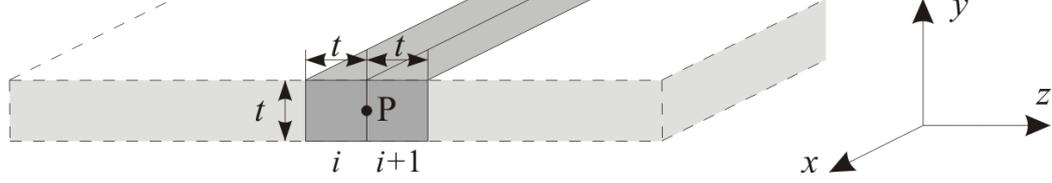


FIG. 5.10 – Illustration schématique des deux cylindres i et $i+1$ dans le plan, de section $t \times t$, pris en compte afin d'estimer l'intensité du champ dipolaire résultant des charges magnétiques de volume.

de nucléation doivent être étendus par rapport à la région toute proche du bord où les champs démagnétisants ne sont pas négligeables. Puisque les volumes de nucléation sont assimilés à une portion de paroi, cette condition s'exprime sous la forme $\sqrt{A/K} \gtrsim t$ une condition déjà exprimée ci-dessus. Le second aspect est de négliger les charges de volumes. Négliger l'influence du champ magnétique appliqué sur la rigidité intérieure de la paroi, est équivalent à dire que le champ d'anisotropie $2K/\mu_0 M_s$ est plus intense que les champs démagnétisants H_d dus aux charges de volumes. La portée latérale des champs dipolaires est t , ainsi H_d en un point P est de l'ordre de grandeur des champs dipolaires $H_{d,i}$ et $H_{d,i+1}$ créés par deux cylindres horizontaux de sections carrées $t \times t$ positionnés de part et d'autre du point P , libellés i et $i+1$ dans la figure 5.10. La densité de charges de volume varie comme $\text{div}(\mathbf{M}_s) \sim M_s \frac{\partial \omega}{\partial z} \sim M_s \sqrt{K/A}$, par conséquent $H_{d,i} \sim M_s t \sqrt{K/A}$. À cause des signes opposés de $H_{d,i}$ et $H_{d,i+1}$, pour leur somme on ne doit pas considérer un champ $\text{div}(\mathbf{M}_s)$ mais à la place sa variation sur la distance t , c-à-d $t \frac{\partial}{\partial z} (M_s \frac{\partial \omega}{\partial z}) \sim M_s \frac{\partial^2 \omega}{\partial z^2} t \sim M_s t (K/A)$. D'où, $H_{d,\text{tot}} \sim M_s t^2 (K/A)$. Comparé au champ d'anisotropie, ceci donne, encore une fois, le critère $t \lesssim \Lambda_{\text{ex}}$.

En conclusion, les conditions de validité du modèle se ramènent à deux critères :

1. La taille du plot ou de la bande et celle de ses bords doivent être beaucoup plus larges qu'à la fois $\Lambda_{\text{Bl}} = \pi \sqrt{A/K}$ et de $\pi \Lambda_{\text{ex}} = \pi \sqrt{2A/\mu_0 M_s^2}$.
2. L'épaisseur t du plot ou de la bande doit être égale ou inférieure à $\sqrt{A/K}$ et à $\sqrt{2A/\mu_0 M_s^2}$.

Notons enfin que le modèle ne serait pas applicable aux matériaux très doux. Ce point n'apparaît pas explicitement dans les critères mentionnés plus haut parce que nous ne considérons pas de queue logarithmique des parois de Néel, qui sont importantes dans le cas de matériaux doux.

5.7.4 Conséquences de l'approximation du couple au bord

On vient de voir que l'approximation du couple de bord est physiquement justifiée afin de prédire les quantités globales comme la valeur de champ de retournement. Maintenant nous allons montrer que les détails microscopiques de l'état d'aimantation peuvent différer, mais n'empêchent cependant pas la prédiction correcte des quantités globales. Ce point confirme les suggestions de Rave *et al.* concernant le concept de couple au bord [Rave *et coll.* 1998]. La figure 5.11 montre des courbes calculées et simulées pour $\omega_0^r(\beta)$, ainsi que des profils d'aimantation $\omega(u)$, juste avant le retournement d'aimantation. En regardant la variation angulaire de $\omega_0^r(\beta)$, on constate un accord qualitatif satisfaisant entre le modèle et les simulations. Cependant, $\omega_0^r(\beta)$ prédit par le modèle est toujours plus grand que le résultat de la simulation (voir Fig. 5.11). Ce résultat provient de l'approximation du couple qui concentre tous les effets démagnétisants au bord, c'est à dire agissant de manière exagérée sur ω_0 . Une autre conséquence de cette approximation est révélée en examinant les profils d'aimantation $\omega(u)$. On constate à nouveau un accord raisonnable entre le modèle et les simulations. Cependant la longueur caractéristique (comme la mi-largeur de la région non uniforme) est légèrement plus grande dans les simulations. Ce point est relié aux charges de volume, négligées dans le modèle (volume dilaté dans les simulations), et aux effets démagnétisants rejetés au bord (ω_0 exagéré dans les calculs). Cela confirme qu'il n'est pas nécessaire pour le micromagnétisme de décrire les détails de l'état d'aimantation très proche de bords et de coins sur une échelle de longueur beaucoup plus petite que $\pi\Lambda_{\text{ex}}$ et Λ_{Bl} afin de pouvoir trouver de valeurs correctes pour les champs de renversement [Rave *et coll.* 1998].

5.7.5 Implications pour les expériences en général

Le modèle est adapté pour décrire des plots et bandes d'orientations diverses de leurs bords. De la figure 5.5 on conclut que si un plot a des bords d'orientations différentes, chacun ayant une longueur suffisante (voir la section 5.7.3), alors le renversement de l'aimantation se produit en s'initiant le long du bord dont le champ de renversement associé est le plus faible parmi tous les bords présents. Tandis que cela signifie les bords perpendiculaires à l'axe d'anisotropie magnétocristalline pour des épaisseurs significatives $t \gtrsim 0.35$, dans le cas de faibles épaisseurs $t \lesssim 0.35$, le renversement n'est pas nécessairement déclenché au bord perpendiculaire à l'axe de facile aimantation, mais peut se produire le long de bords légèrement inclinés.

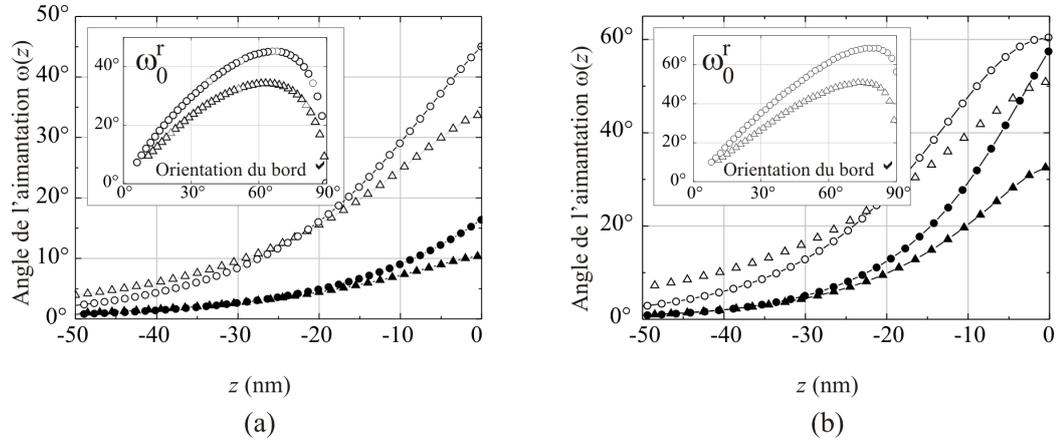


FIG. 5.11 – Profil d'aimantation $\omega(u)$ au bord, juste avant le renversement de l'aimantation, prédit par le modèle (disques) et la simulation (triangles) pour deux épaisseurs 10 Å (a) et 27 Å (b) et deux orientations du bord : 70° (symboles vides) et 89° (symboles pleins). Encart : angle du spin au bord ω_0^r juste avant le retournement en fonction de l'orientation du bord.

Ceci résulte du fait que ce qui pilote le renversement n'est pas directement l'intensité du champ magnétique (extérieur plus démagnétisant), mais son couple avec l'aimantation, ce qui implique un compromis sur l'angle, plus précisément entre l'amplitude de champ dipolaire qui varie légèrement avec $\sin(\beta - \omega_0)$, et $\cos[\beta - \omega(u)]$ résultant du calcul du couple et relié à l'angle entre l'aimantation \mathbf{m} et $\mathbf{h}_d(u)$. Par conséquent, le comportement des bandes ou plots constitués d'un matériau dur est prévu d'être différent du cas de plots constitués d'un matériau très doux, où il est admis que le renversement est déclenché le long de bords qui présentent les angles les plus élevés avec la direction principale de l'aimantation [Grimsditch et *coll.* 2001].

5.8 Implications pour les nanostructures de Fe/cc(110) fabriquées au LLN

Comme nous avons vu à la section 5.2.1, ce modèle suppose une anisotropie uniaxiale significative d'origine microscopique comme l'anisotropie magnétocristalline. Nous avons présenté dans ce manuscrit des bandes de Fe auto-organisées de hauteur élevée ($\simeq 5.5$ nm) et nous avons montré qu'elles sont caractérisées par une rémanence et coercitivité non nulle à température ambiante. Mais la forme allongée de ces bandes implique que, comme nous l'avons présenté, une anisotropie uniaxiale d'origine magnétostatique (de

forme). Par conséquent le modèle n'est pas adapté à ce type de structure. Par contre, nous pensons que ce modèle peut être appliqué aux structures sous forme d'îlots biseautés obtenus par croissance de Fe/W(110) ou de Fe/Mo(110) à une température modérée ($\simeq 700$ K).

5.9 Conclusion

Nous avons proposé un modèle analytique de renversement d'aimantation dans des plots et bandes minces et plats avec une anisotropie uniaxiale planaire, en appliquant un champ magnétique extérieur parallèlement à l'axe d'anisotropie, et basé sur des approximations convenables. Comparé à une première version publiée précédemment [Fruchart et *coll.* 2001] nous avons amélioré sa validité de 30%, et étendu la géométrie du modèle à un plot à bord incliné d'un angle quelconque dans le plan. Cette extension a été faite dans le but de décrire des structures nouvelles fabriquées durant la thèse, telles que bandes et plots de Fe(110) à bouts ronds ou biseautés. La configuration magnétique et le champ de renversement \tilde{h}_r sont prédits en fonction de l'aimantation, de l'épaisseur du plot et de l'orientation du bord. $|\tilde{h}_r|$ décroît en augmentant l'épaisseur, à cause de l'augmentation des effets démagnétisants de champs dipolaires internes. À une épaisseur donnée la valeur minimale de $|\tilde{h}_r|$ est obtenue pour les bords perpendiculaires à l'axe d'anisotropie (domaine d'épaisseurs élevées), ou à une orientation intermédiaire (domaine d'épaisseurs faibles). $|\tilde{h}_r|$ atteint la valeur de la rotation cohérente pour des bords parallèles à l'axe d'anisotropie ou dans le cas d'épaisseurs tendant vers zéro. Une loi d'échelle approchée mais très fidèle a été proposée, afin de permettre une évaluation de \tilde{h}_r facilement. Les valeurs de champ de retournement prédites par le modèle sont en excellent accord avec des simulations numériques. En règle générale, le modèle est valide pour les plots et bandes de taille latérale beaucoup plus grande (et épaisseur plus faible) que la longueur d'échange et largeur de paroi, et avec une anisotropie uniaxiale planaire non-évanescence.

Annexe A

Compléments sur le chapitre 5

A.1 Profil du volume de nucléation

L'angle du spin au bord est supposé fixe *a priori* à $\omega_0 > 0$. $\omega_0 > 0$ est déterminé de façon auto-cohérente, en cherchant les solutions de la condition de Brown (Eq. 5.4).

En posant $\theta = \omega/2$ on peut écrire la densité d'énergie magnétique dans le plot (Eq. 5.3) sous la forme

$$e_V = 4(1 + \tilde{h}) \left[\left(\frac{d\theta}{d\eta} \right)^2 + \sin^2 \theta + k_2 \sin^4 \theta \right] \quad (\text{A.1})$$

avec $k_2 = -1/(1 + \tilde{h})$ et $\eta = u\sqrt{1 + \tilde{h}}$. L'énergie totale est alors minimale lorsque :

$$\left(\frac{d\theta}{d\eta} \right)^2 = \sin^2 \theta + k_2 \sin^4 \theta \quad (\text{A.2})$$

dont la solution est

$$\theta = \frac{\pi}{2} - \arctan [\alpha \cosh(\eta - \eta_1)] \quad (\text{A.3})$$

où $\alpha = \sqrt{-\tilde{h}/(1 + \tilde{h})}$ et $\eta_1 = u_1\sqrt{1 + \tilde{h}}$ est une constante d'intégration. Finalement

$$\omega(u) = \pi - 2 \arctan \left\{ \sqrt{\frac{-\tilde{h}}{1 + \tilde{h}}} \cosh \left[\sqrt{1 + \tilde{h}}(u - u_1) \right] \right\} \quad (\text{A.4})$$

u_1 détermine la position de la paroi ($u_1 \gg 1$ pour les faibles rotations au bord). Cette constante est déterminée en utilisant la condition au bord $\omega(u =$

0) = ω_0 , qui s'exprime comme :

$$\cotg\left(\frac{\omega_0}{2}\right) = \alpha \cosh \left[u_1 \sqrt{1 + \tilde{h}} \right]. \quad (\text{A.5})$$

On a choisi ici arbitrairement $\omega_0 > 0$, pour briser la symétrie. On remarque que le cas monodomaine, pour lequel $\omega_0 = 0$ et donc $\omega(u) = 0 \forall u$ est obtenu lorsque $u_1 \rightarrow +\infty$.

A.2 Discussion et résolution numérique

D'un point de vue mathématique, il est tout d'abord important de signaler les points suivants :

- Puisque $\cosh(x) \geq 1 \forall x \in \mathbf{R}$, l'angle au bord ω_0 , défini par Eq.A.5, doit vérifier la condition $\omega_0 \leq \pi/2 - \arctan(\alpha)$.
- L'angle du spin $\omega(u)$ très loin du bord ($u \rightarrow -\infty$) devient négligeable devant 1 (le volume de nucléation est localisé tout près du bord). Effectivement on peut démontrer que

$$\omega(u) \underset{u \rightarrow -\infty}{\sim} \alpha e^{\sqrt{1+\tilde{h}}(u-u_1)}. \quad (\text{A.6})$$

De ce fait l'intégrale 5.10, définissant le couple démagnétisant Γ_d , dans le cas d'un bord perpendiculaire à l'axe facile, est convergente puisque

$$\sin[\omega(u)] f(u) \underset{u \rightarrow -\infty}{\sim} \alpha e^{\sqrt{1+\tilde{h}}(u-u_1)} \times \frac{t}{2u}. \quad (\text{A.7})$$

Il en résulte une astuce utile pour l'évaluation du couple démagnétisant (Eq. 5.10), où nous avons besoin d'effectuer une intégrale impropre de la forme

$$L = \int_{-\infty}^0 \xi(u) du = \int_{-\infty}^{-1} \xi(u) du + \int_{-1}^0 \xi(u) du. \quad (\text{A.8})$$

En effet, un simple changement de variable, $q = 1/u$, nous permet de l'écrire sous la forme suivante

$$L = \int_{-1}^0 \xi(1/q) dq/q^2 + \int_{-1}^0 \xi(u) du = \int_{-1}^0 \left[\frac{\xi(1/q)}{q^2} + \xi(q) \right] dq. \quad (\text{A.9})$$

Ce changement de variable est mathématiquement justifié puisque $\xi(u) = \sin[\omega(u)] f(u)$ tend vers zéro de façon exponentielle beaucoup plus rapidement que $1/u^2$ lorsque $u \rightarrow -\infty$.

Afin d'effectuer l'intégrale numériquement, nous divisons l'intervalle d'intégration $[x_1, x_N]$ en $N - 1$ petits segments à pas de $h = (x_N - x_1)/(N - 1)$, puis en assimilant chaque groupe de quatre points successifs à un polynôme de troisième degré, nous utilisons l'expression suivante [Isaacson et Keller 1966], pour une fonction $f(x)$

$$\int_{x_1}^{x_N} f(x) dx = h \left[\frac{3}{8}f(x_1) + \frac{7}{6}f(x_2) + \frac{23}{24}f(x_3) + f(x_4) + f(x_5) + \dots + f(x_{N-4}) + f(x_{N-3}) + \frac{23}{24}f(x_{N-2}) + \frac{7}{6}f(x_{N-1}) + \frac{3}{8}f(x_N) \right] + O\left(\frac{1}{N^4}\right). \quad (\text{A.10})$$

- Tandis que l'intégrale 5.16 définissant ce couple dans le cas d'un bord incliné, est divergente logarithmiquement, puisque cette intégrale fait intervenir la fonction

$$\cos[\omega(u)] f(u) \underset{u \rightarrow -\infty}{\sim} 1 \times \frac{t}{2u}. \quad (\text{A.11})$$

Afin de résoudre le modèle numériquement, nous avons développé un code spécial utilisant la programmation orientée objet de Borland DELPHI professionnel (version 6.0, Build 6.163, Copyright ©1983-2001, Borland Software Corporation). Le code est développé de façon à permettre d'effectuer toutes les opérations nécessaires à vérifier les résultats et à les comparer.

Conclusion générale

Ce manuscrit présente la synthèse d'un travail réalisé à la frontière entre la science des surfaces et le magnétisme. Le fil conducteur de notre travail a été de mettre à profit de nouveaux procédés d'auto-assemblage épitaxial (un mode de croissance qui permet la fabrication spontanée de nanostructures lors d'un dépôt sous ultra-vide), afin de fabriquer des nanostructures originales pour le magnétisme. Notre travail est à classer dans la recherche fondamentale : notre objectif n'est pas de fabriquer des dispositifs avec l'auto-assemblage, mais de démontrer les possibilités offertes par cette technique.

La première étape de notre travail a consisté à optimiser la fabrication de couches tampon versatiles. Nous avons montré, sur un exemple de deux éléments W et Mo, qu'il est possible de faire varier le paramètre de maille d'une couche tampon de façon continue. Le procédé est fondé sur des multicouches, ou des mélanges plus intimes de deux éléments par dépôt laser pulsé. Nous avons en effet montré qu'une couche composite de W et Mo présente un paramètre cristallin continûment variable. Dans un second temps, et dans le but de séparer les rôles respectifs de paramètre cristallin et de l'interface, nous avons optimisé la croissance d'une fine couche d'interface de W ou Mo d'épaisseur $\simeq 5$ HA, permettant de conserver le paramètre de maille de la couche sous-jacente, tout en changeant l'énergie de sa surface. Nous avons vérifié par STM et par Auger quantitatif que ces couches présentent une surface vicinale sans ségrégation de la couche de dessous vers la couche d'interface. Dans une seconde étape nous avons mis à profit les couches tampon originales afin d'étudier les effets respectifs du paramètre cristallin et de l'interface sur la croissance et les propriétés magnétiques de bandes de Fe. Nous avons mis en évidence que la croissance de Fe/W(110) à température modérée ($\simeq 500$ K), suivie d'un recuit vers 725 K, est caractérisée par la formation de bandes auto-organisées, composées exclusivement de Fe, et de hauteur beaucoup plus élevée que celle des bandes auto-organisées rencontrées jusqu'à présent dans la littérature. À la fois le paramètre de maille et l'énergie d'interface influencent la hauteur des bandes. Nous avons mis en évidence que les bandes auto-organisées de Fe/W(110) sont magnétiques à température am-

biante, surmontant ainsi le superparamagnétisme rapporté dans la littérature pour les systèmes épitaxiés auto-organisées, d'épaisseur bien plus faible. Le caractère ferromagnétique a été illustré démontrant, dans des systèmes similaires mais d'anisotropie différente, deux propriétés essentielles utilisées dans les applications des matériaux magnétiques :

► Pour un système possédant un axe de facile aimantation clairement défini, nous avons mis en évidence une forte rémanence (85 %) ainsi qu'une coercitivité significative et peu dépendante de la température entre 0 K et 300 K. Ces propriétés sont à la base des applications utilisant des matériaux ferromagnétiques durs.

► Sur un système de plus faible anisotropie nous avons démontré la possibilité à 300 K d'obtenir une subdivision en domaines, un comportement caractéristique des matériaux doux dans les applications. Dans ce travail nous ne sommes pas intéressés par la fabrication d'un dispositif mais par une recherche fondamentale. On a montré comment il est possible de procéder pour surmonter le superparamagnétisme si l'utilisation de systèmes magnétiques auto-organisés s'avérait intéressante dans le future.

Enfin nous avons proposé un modèle analytique de renversement d'aimantation dans des plots et bandes minces et plats avec une anisotropie uniaxiale planaire, en appliquant un champ magnétique extérieur parallèlement à l'axe d'anisotropie, et basé sur des approximations convenables. Comparé à une première version publiée précédemment [Fruchart et *coll.* 2001] nous avons amélioré sa validité de 30%, et étendu la géométrie du plot à un plot à bord incliné d'un angle quelconque dans le plan. La configuration magnétique et le champ de renversement \tilde{h}_r sont prédits en fonction de l'aimantation, de l'épaisseur du plot et de l'orientation du bord. $|\tilde{h}_r|$ décroît en augmentant l'épaisseur, à cause de l'augmentation des effets démagnétisants de champs dipolaires internes. À une épaisseur donnée la valeur minimale de $|\tilde{h}_r|$ est obtenue pour les bords perpendiculaires à l'axe d'anisotropie (régime d'épaisseurs élevées), ou à une orientation intermédiaire (régime d'épaisseurs faibles). $|\tilde{h}_r|$ atteint la valeur de la rotation cohérente pour des bords parallèles à l'axe d'anisotropie ou dans le cas d'épaisseurs tendant vers zéro. Une loi d'échelle approchée mais très fidèle a été proposée, afin de permettre une évaluation de \tilde{h}_r facilement. Le modèle est valide pour les plots et bandes de taille latérale beaucoup plus grande (et épaisseur plus faible) que la longueur d'échange et et la largeur de paroi, et avec une anisotropie uniaxiale planaire non évanescence. Les valeurs de champ de retournement prédites par le modèle sont en excellent accord avec des simulations numériques. Il reste à appliquer ce modèle sur les nanostructures de Fe/cc(110) comme celles obtenues au cours de cette thèse.

Liste des tableaux

1.1	Caractéristiques des deux tubes piézoélectriques utilisés au LLN	18
2.1	Constantes élastiques pour W et Mo [Sander 1999].	38
3.1	Angle de diffraction pour différents plans de Fe/W(110), et déduction de distances interréticulaires. Les rayons X utilisés sont générés par une cible de Fe de longueur d'onde moyenne $\bar{\lambda} = 1.93799 \text{ \AA}$	54
3.2	Hauteurs <i>magiques</i> $h(\text{nm})$ dans les quatre systèmes étudiés en fonction du taux de couverture de Fe, $\Theta(\text{nm})$. En tête le symbole \checkmark indique la croissance du Fe en bandes auto-organisées, et le symbole \otimes indique l'absence d'organisation en bandes des nanostructures observées (pour le système Fe/Mo/W seulement). Dans ces quatre systèmes le Fe est déposé à 500 K et recuit à 725 K pendant 30 min environ.	62
5.1	Unités servant à définir des grandeurs réduites non dimensionnées dans ce modèle.	92

Table des figures

1.1	Représentations schématiques (a) des processus atomiques engagés lors de l'épitaxie. (b) d'une surface <i>vicinale</i> définie comme une surface dont l'orientation est voisine d'une orientation cristalline dense. θ est la désorientation par rapport à la face dense et la largeur de terrasse est $L = h/\tan\theta$, h étant la hauteur atomique du plan dense.	6
1.2	Représentation des trois modes de croissance à différent taux de couverture θ : (a) Frank-van der Merwe, (b) Volmer-Weber et (c) Stranski-Krastanov.	7
1.3	Dispositifs expérimentaux du dépôt par laser pulsé employés dans la préparation et l'étude, par spectroscopie Auger, STM, et RHEED d'échantillons étudiés.	11
1.4	(a) Schématisation des fonctions d'onde électroniques au niveau de Fermi dans deux métaux de travaux de sortie ϕ_1 et ϕ_2 respectivement. (b) Les deux métaux sont suffisamment rapprochés l'un de l'autre pour permettre le recouvrement des fonctions d'onde. Lorsqu'une tension est appliquée entre eux un courant tunnel s'établit [Bai 2000].	13
1.5	Schématization des deux modes opératoires en STM : (a) à courant constant et (b) à hauteur constante. I est la valeur de courant de consigne pour (a) et le courant tunnel pour (b) et V_{gap} est la tension appliquée entre la pointe et l'échantillon. Pour (a), V_z est la tension de rétroaction ajustant la hauteur de la pointe au dessus de la surface sondée [Bai 2000].	14

- 1.6 (a) Force de Van der Waals (courbe continue) entre les atomes d'une pointe AFM et les atomes de la surface d'un échantillon sondé, et son gradient $f' = df/dr$ (courbe pointillée). (b) En pointillé est schématisée l'amplitude d'oscillation d'un levier libre en fonction de la fréquence d'excitation. Lorsque la pointe s'approche de l'échantillon cette courbe se décale vers la courbe continue et l'amplitude d'oscillation à la fréquence de travail ω^* fixée diminue. 16
- 1.7 Spécifications d'une pointe AFM utilisée au LLN. 18
- 1.8 (a) Anneaux de détection (au centre) et de compensation (au bords). (b) Tension du SQUID en fonction de la position de l'échantillon lorsque celui ci se déplace tout au long de la distance accessible dans les anneaux de détection (3 cm). Au point A la pente de cette courbe est maximale et la réponse du SQUID est linéaire. (c) En mode de détection RSO l'échantillon effectue un certain nombre d'oscillations autour de A. L'amplitude, la fréquence et le nombre de ces oscillations sont choisis par l'expérimentateur. (d) Réponse du SQUID aux oscillations de l'échantillon. 20
- 1.9 (a) Un exemple de microspectroscopie magnétique {tiré de [Swiech et *coll.* 1997]} utilisant le dichroïsme magnétique circulaire de rayons X (XMCD). En fonction de l'énergie des photons X incidents sont représentées, en haut, les deux intensités d'absorption correspondant aux photons X incidents polarisés circulairement droit (I^+ , courbe continue) et gauche (I^- , en pointillé), et en bas, le signal dichroïque absolu ΔI (Eq. 1.5). Remarquer l'inversion de signe de ce signal entre les seuils $L_{2,3}$. (b) Origine de l'asymétrie XMCD [Schönhense 1999]. L'asymétrie est liée à l'étape initiale de la photoexcitation à partir d'un état de niveau atomique profond vers un état inoccupé dans un niveau de densité d'états dépendant du spin et se trouvant juste au-dessus de l'énergie de Fermi E_F 24
- 2.1 Image STM (800 nm × 800 nm) d'une couche tampon de Mo(110)/Al₂O₃(11 $\bar{2}$ 0), présentant après recuit les terrasses atomiques séparées par des marches mono-atomiques (de hauteur $\simeq 2 \text{ \AA}$). 33

2.2	Dispositif expérimental permettant l'élaboration d'une couche tampon à paramètre continûment variable spatialement. L'automatisation de l'ensemble obturateur/cibles/focalisation du faisceau (devant être adaptée à chaque élément), et son pilotage par ordinateur, permet de produire automatiquement une <i>séquence</i> déterminée de W et Mo. Le vide pendant le dépôt est de 2×10^{-10} Torr.	35
2.3	Représentation schématique d'une couche tampon à paramètre continûment variable spatialement. Les éléments W et Mo sont déposés en coins, entre 0 et 1 à 10 Å, opposés et étendus sur 5 mm le long de la longueur de la couche. Le paramètre de maille varie de droite à gauche entre 3.147 Å, et 3.165 Å. . . .	36
2.4	Caractérisation d'une couche tampon à paramètre de maille intermédiaire $W_{0.5}Mo_{0.5}$. (a) Diagramme RHEED, après recuit. (b) Image STM (750 nm \times 750 nm)	37
2.5	Raies (110) de trois parties d'une couche tampon W_xMo_{1-x} : (a) $x = 0$ (coté Mo pur) (b) $0 < x < 0.3$ et (c) $0.6 < x < 0.9$. (d) montre les raies (11 $\bar{2}$ 0), $K_{\alpha 1}$ et $K_{\alpha 2}$, du substrat de saphir prise comme référence pour l'angle θ	40
2.6	Paramètre de maille d'une couche à paramètre cristallin continûment variable, en fonction de la composition x en W [carrés pleins : expériences ; courbe continue : modèle (voir Eq.2.6)]. Nous avons caractérisé quatre parties d'une couche à paramètre continûment variable spatialement, d'où des barres d'erreur horizontales représentant la taille de ces parties. . . .	41
2.7	Schéma d'une couche dédiée à l'étude quantitative par spectroscopie Auger. Le coin de W est déposé à température ambiante. La partie de Mo non couverte et la partie couverte par une grande quantité de W servent à mesurer les signaux Auger de référence de Mo et W respectivement.	42
2.8	(a) Signal Auger brut mesuré sur une position du coin de W. (b) Le spectre Auger (courbe pointillée) obtenu par dérivation de (a) et par dérivation et soustraction d'un fond parabolique (courbe continue). (c) Un spectre Auger sur une position du coin (●) présentant les pics de W et Mo, et sa reproduction (○) par combinaison linéaire en fonction des deux références de W et Mo (Eq. 2.7).	44

2.9	Spectres Auger sur différentes positions de la couche d'interface (Fig. 2.7). De haut en bas et de gauche à droite on balaie le coin de W en partant de l'épaisseur la plus grande. Remarquons comment les pics caractéristiques de W et Mo changent entre ces différents spectres.	45
2.10	Schéma des différents spectres Auger. L'axe horizontal représente la position sur la couche (Fig. 2.7), tandis que l'axe des ordonnées est celui de l'énergie en (eV). Le dégradé de gris représente les intensités des spectres Auger.	46
2.11	(a) Diagramme RHEED et (b) image STM 800 nm × 800 nm d'une couche tampon à paramètre variable, avec interface de Mo.	46
2.12	(a) Intensité du signal Auger due au Mo en fonction de la quantité de W déposée (mesurée en HA et en Å). (b). Intensité Auger due au W.	47
2.13	Images STM (600 nm × 600 nm), après recuit à 600 °C, d'une couche d'interface W déposée à température ambiante, en coin sur Mo(110). Les images sont prises sur différents points du coin de W. Les régions noires représentent des trous de profondeur 2 à 7 nm.	48
2.14	Diagramme RHEED sur une couche à paramètre variable (a) avec et (b) sans interface de Mo.	48
3.1	Image AFM (10 μm × 10 μm) montrant la croissance en bandes auto-organisées de Fe/W(110) de hauteur moyenne 5.5 nm. Ici une quantité de 2.5 nm de Fe est déposé à 500 K et recuit à 725 K pendant 30 min. La surface de l'échantillon est recouverte par 9 nm de Mo afin de contrôler son anisotropie magnétique et de la protéger contre l'oxydation. Les trous observés ici (en noir) ont une profondeur moyenne 58 nm et une taille latérale $\simeq 1.200 \mu\text{m} \times 0.700 \mu\text{m}$. (b) La même image avec contraste ajusté afin de montrer la hauteur de ces bandes. L'échelle en teint gris à droite représente les hauteurs entre 81.25 nm et 87.26 nm.	52
3.2	Diffraction de rayons X en incidence rasante sur la surface (110) d'un échantillon. φ est l'angle d'incidence sur un plan (hkl), et $\chi = 2\varphi$ est l'angle de diffraction.	53
3.3	Raie de saphir (11 $\bar{2}$ 0) recherché afin d'ajuster le réglage de la référence de l'angle d'incidence θ	54

3.4	(a), (b) et (c) Diffraction de rayons X en incidence rasante sur les bandes de Fe. (d) Diffraction de rayons X sur le plan (110) en géométrie $(\theta/2\theta)$	55
3.5	Déformations hors du plan, ϵ'_3 , en fonction d'une déformation planaire isotrope dans le plan (110). Les carrés représentent le cas de nos bandes et les cercles correspondent aux résultats de R.Popescu et <i>coll.</i> [Popescu et <i>coll.</i> 2003]. Les symboles vides correspondent aux valeurs trouvées expérimentalement et les pleins correspondent aux déformations prévues par la théorie continue de l'élasticité. La ligne continue représente la déformation prévue par la théorie continue de l'élasticité (voir D. Sander [Sander 1999] page 820).	57
3.6	Images AFM ($5\mu\text{m}\times 5\mu\text{m}$, sauf contre-indication) présentant la forme de structures de Fe déposé à 500 K et recuit à 725 K. Le Fe est déposé sur W(110) avec/ou sans interface de Mo(110). Θ indique le taux de couverture de Fe mesuré en nm. Dans les deux cas le Fer est recouvert par 1 nm de Mo puis par 4 nm d'Al, pour les besoins de mesures en X-PEEM (voir §4.2 page 80) ce qui explique les irrégularités observées en bord bandes (image de taille $2.5\mu\text{m}\times 2.5\mu\text{m}$).	60
3.7	Images AFM ($5\mu\text{m}\times 5\mu\text{m}$) présentant la forme de bandes et structures de Fe déposé à 500 K et recuit à 725 K. Le Fe est déposé sur Mo(110) avec/ou sans interface de W(110). Θ indique le taux de couverture de Fe mesuré en nm.	61
3.8	Images ($10\mu\text{m}\times 10\mu\text{m}$) obtenues par microscopie AFM de Fe épitaxié sur une fine couche de W pseudomorphe sur une couche tampon $\text{W}_x\text{Mo}_{1-x}$ à paramètre de maille variable. $\Theta = 2.5\text{ nm}$ de Fe est déposé à 500 K et recuit à 725 K pendant 30 min environ.	63
3.9	Hauteurs moyennes de bandes et structures formées par épitaxié de Fe sur une couche à paramètre cristallin variable ($\text{W}_x\text{Mo}_{1-x}$) avec interface de W. $\Theta = 2.5\text{ nm}$ de Fe est déposé à 500 K et recuit à 725 K pendant 30 min environ.	64

- 3.10 (a) Image AFM ($4\ \mu\text{m} \times 4\ \mu\text{m}$) de Fe/Mo(110) : des îlots biseautés de hauteur $\simeq 1.2\ \text{nm}$ sont formés lorsqu'une quantité, $\Theta = 0.35\ \text{nm}$, de Fe est déposée directement à haute température ($\simeq 700\ \text{K}$). Ces îlots sont présents sur Mo(110) quelque soit le taux de couverture Θ [Jubert 2001]. (b) Image AFM ($5\ \mu\text{m} \times 5\ \mu\text{m}$) de Fe/W(110) : des îlots biseautés, de hauteur $\simeq 5.5\ \text{nm}$, sont également formés lorsqu'une quantité, $\Theta = 2\ \text{nm}$, de Fe est déposée directement à la même haute température. 65
- 3.11 Hauteurs moyennes de galettes de Fe formées par épitaxie de Fe à $1070\ \text{K}$ sur une couche à paramètre cristallin variable ($\text{W}_x\text{Mo}_{1-x}$) avec interface de Mo. Constaté la similarité de comportement avec la hauteur des bandes de la figure 3.9 page 64. Le diamètre des disques est proportionnel à la quantité de Fer déposé. 65
- 4.1 (a) Image AFM ($10\ \mu\text{m} \times 10\ \mu\text{m}$) montrant la croissance en bandes auto-organisées de Fe/W(110) de hauteur moyenne $5.5\ \text{nm}$. Ici une quantité de $2.5\ \text{nm}$ de Fe est déposée à $500\ \text{K}$ et recuite à $720\ \text{K}$ pendant $30\ \text{min}$. La surface de l'échantillon est recouverte par $9\ \text{nm}$ de Mo afin de contrôler son anisotropie magnétique et de la protéger contre l'oxydation. (b) et (c) Cycles d'hystérésis mesurés sur ce système avec un champ magnétique appliqué $H_{\parallel}[001]$ et $H_{\parallel}[1\bar{1}0]$ respectivement. . . . 72
- 4.2 (a) Réseau de N bandes identiques aimantées uniformément selon l'axe Oz (correspondant à la direction Fe $[1\bar{1}0]$). Ces bandes sont allongées selon Ox (correspondant à la direction Fe $[001]$). Les dimensions d'une bande sont $2a$ selon l'axe Ox , $2b$ selon Oy et $2c$ selon Oz . (b) Représentation de deux distributions surfaciques rectangulaires, Σ et Σ' , de densité de charges magnétiques σ ($= +M_s$ ou $-M_s$ dans notre cas) et σ' et placées perpendiculairement à Oz en z et z' respectivement. La distribution Σ crée au point $M(x', y', z')$ un champ démagnétisant $H_d(M)$ dérivant du potentiel scalaire $\varphi_d(M)$. L'expression de ce potentiel, dans l'approche coulombienne, est donnée par $\varphi_d(M) = 1/4\pi \int_{\Sigma} \sigma dS/PM$ 75

- 4.3 Même figure que Fig.4.1.c (page 68). Cycle d'hystérésis mesuré sur des bandes de Fe/W(110) avec $H//[1\bar{1}0]$ (en pointillé) et courbe d'aimantation déduite par valeur moyenne (courbe continue) afin de pouvoir estimer le champ d'anisotropie du réseau de bandes de Fe/W(110) par $2 \int H(m)dm = H_a$, et à partir de la pente à l'origine (qui donne $\mu_0 H_a \simeq 90$ mT). 78
- 4.4 Champ coercitif, déduit des cycles d'hystérésis présentés dans la figure 4.1, en fonction de la $\sqrt{(25k_B T)}$, où T est la température. La variation est linéaire selon la loi calculée (avec les unités de la figure) $\mu_0 H_c = 50 (1 - 0.35\sqrt{25K_B T})$ 80
- 4.5 Images AFM ($5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$) des deux systèmes (a) Mo/Fe/Mo et (c) Mo/Fe/W/Mo. (b) et (c) Cycles d'hystérésis correspondant mesurés à 300 K avec un champ magnétique appliqué $H\|[001](\blacktriangle)$ et $H\|[1\bar{1}0](\circ)$. Pour avoir un ordre de grandeur l'aimantation à saturation du système Mo/Fe/W/Mo est de 1.67×10^{-8} A.m². 82
- 4.6 Images PEEM $2.25\mu\text{m} \times 2.25\mu\text{m}$ sur une même zone d'un échantillon Fe/W/Mo : contrastes (a) chimique et (b) magnétique. Dans (b) les couleurs blanc, gris et noir représentent des domaines magnétiques à aimantation parallèle, antiparallèle et perpendiculaire au faisceau de rayon X (respectivement), et les flèches pointant vers la droite (gauche) indique quelques parois de domaines à 180° (90°). (c-d) profils de parois à 180° (c) et à 90° (d). La direction de l'aimantation est calculée comme $\arccos(\text{XMCD})$. Encart : schéma de domaines à fermeture de flux indiqués par un ensemble de flèches dans (b). La ligne pointillée schématise la fermeture ou le champ de fuite. 85
- 5.1 (a) Géométrie du modèle. Le plot semi-infini correspond à $z < 0$, (b) Vue de dessus du plot. u est la variable réduite sans dimension de z 91
- 5.2 Champs de nucléation (symboles pleins) et de renversement (symboles blancs), prédits par [Fruchart et coll. 2001](carrés), le modèle présent (cercles), et les simulations numériques (triangles) [Fruchart et coll. 2001]. 94

5.3	États d'équilibre stable (\circ) et instable (\bullet) prédits par le modèle amélioré pour un îlot de bord perpendiculaire à l'axe d'anisotropie et d'épaisseur allant de 0.05 à 0.40. Encart : ω_0^r (ω_0 juste avant le retournement), en fonction de l'épaisseur. La transition de l'état MD vers l'état NU, juste avant le renversement, se produit à $t_c = 0.273$	97
5.4	Vue de dessus de la nouvelle géométrie dans le modèle généralisé : le bord est incliné d'un angle arbitraire β ($\beta \neq 90^\circ$) par rapport à l'axe de facile aimantation.	98
5.5	Champ de retournement $ \tilde{h}_r $ prédit par le modèle analytique en fonction de l'orientation du bord β pour différentes épaisseurs.	101
5.6	Représentation polaire du champ de retournement $ \tilde{h}_r $ prédit par le modèle analytique en fonction de l'orientation du bord et pour différentes épaisseurs : l'angle est l'orientation du bord β et le rayon représente $ \tilde{h}_r $	101
5.7	Angle de l'aimantation au bord juste avant le retournement ω_0^r en fonction de l'orientation du bord du plot β , pour des épaisseurs t de 0.05 à 0.40.	102
5.8	Profils d'aimantation $\omega(z)$ prédits par le modèle dans un îlot d'épaisseur 27 Å pour différents champs appliqués : Dans (a) l'orientation du bord est $\beta = 70^\circ$, et dans (b) $\beta = 89^\circ$	103
5.9	Champ de retournement $ \tilde{h}_r $ prédit par le modèle (\circ) et les simulations numériques (\triangle) pour deux épaisseurs 10 Å (a) et 27 Å (b). Encarts : Mêmes courbes mais avec une échelle complète.	105
5.10	Illustration schématique des deux cylindres i et $i + 1$ dans le plan, de section $t \times t$, pris en compte afin d'estimer l'intensité du champ dipolaire résultant des charges magnétiques de volume.	106
5.11	Profil d'aimantation $\omega(u)$ au bord, juste avant le renversement de l'aimantation, prédit par le modèle (disques) et la simulation (triangles) pour deux épaisseurs 10 Å (a) et 27 Å (b) et deux orientations du bord : 70° (symboles vides) et 89° (symboles pleins). Encart : angle du spin au bord ω_0^r juste avant le retournement en fonction de l'orientation du bord.	108

Bibliographie

- A. Aharoni. *Introduction to the Theory of Ferromagnetism*, volume 93 of *International Series of Monographs on Physics*. Oxford University Press, Oxford, 1996.
- A. Aharoni. Demagnetizing factors for rectangular ferromagnetic prisms. *J. Appl. Phys.*, 83(6) :3432–3434, 1998.
- C. Bai. *Scanning Tunneling Microscopy and Its Applications*. Springer series in surface sciences. Springer, Germany, 2nd rev. edition, 2000. ISBN 3-540-65715-0.
- E. Bauer. *Z. Kristallogr.*, 110 :372, 1958.
- E. Bauer. *Appl. Surf. Sci.*, 11-12 :479, 1982.
- E. Bauer et H. Poppa. *Thin Solid Films*, 12 :167, 1972.
- G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber, et E. Weibel. Surface studies by scanning tunneling microscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 49(1) :57–61, 1982.
- G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber, et E. Weibel. *Phys. Rev. Lett.*, 50 :120, 1983.
- M. Bode, O. Pietzsch, A. Kubetzka, et R. Wiesendanger. Imaging magnetic nanostructures by spin-polarized scanning tunneling spectroscopy. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, 114-116 :1055–1062, 2001.
- H. Brune. Microscopic view of epitaxial growth : nucleation and aggregation. *Surf. Sci. Rep.*, 31 :121–229, 1998.
- H. Brune, M. Giovannini, K. Bromann, et K. Kern. Self-organized growth of nanostructure arrays on strain-relief patterns. *Nature*, 394 :451–453, 1998.

- P. Bruno et J.-P. Renard. Magnetic surface anisotropy of transition metal ultrathin films. *Appl. Phys. A*, 49 :499–506, 1989.
- P. Bryant et H. Suhl. *Appl. Phys. Lett.*, 54 :78, 1989.
- L. Buda. communication orale, 2004.
- L.-D. Buda. *Developpement d'un code de calcul micromagnetique 2D et 3D : Application a des systemes reels de types films, plots et fils*. Thèse, UNIVERSITE LOUIS PASTEUR - STRASBOURG I, Strasbourg, 11 December 2001 2001.
- S. Y. Chou, M. S. Wei, et P. B. Fischer. An ultra-high resolution single-domain magnetic force microscope tip fabricated using nanolithography. *IEEE Trans. Magn.*, 30(6) :4485–4487, 1994.
- R. P. Cowburn. Property variation with shape in magnetic nanoelements. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 33 :R1–R16, 2000.
- J. G. Deak et R. H. Koch. The effect of edge roughness on magnetization reversal in micron-sized permalloy thin films. *J. Magn. Magn. Mater.*, 213 : 25, 2000.
- C. Ducruet. *Etude de plasmas générés par laser, soumis à des champs magnétique et électrique. Utilisation possible en techniques de dépôt*. Thèse, Université Joseph Fourier-Grenoble I, Grenoble, 2003.
- K. Eberl. Quantum-dot lasers. *Phys. World*, 10(9) :45–50, 1997.
- M. Eleoui, O. Fruchart, et J.-C. Toussaint. Micromagnetic model of magnetization reversal of magnetically hard ultrathin dots and stripes. *J. Magn. Magn. Mater.*, 283(1) :46–58, 2004.
- H. J. Elmers et U. Gradmann. Magnetic anisotropies in fe(110) films on w(110). *Appl. Phys. A : Solid Surf.*, 51 :255–263, 1990.
- H. J. Elmers, J. Hauschild, H. Fritzsche, G. Liu, U. Gradmann, et U. Köhler. *Phys. Rev. Lett.*, 75 :2031, 1995.
- H. J. Elmers, J. Hauschild, H. Höche, U. Gradmann, H. Bethge, D. Heuer, et U. Köhler. Submonolayer magnetism of fe(110) on w(110) : Finite width scaling of stripes and percolation between islands. *Phys. Rev. Lett.*, 73(6) : 989–901, 1994.
- H. J. Elmers, G. Liu, et U. Gradmann. *Phys. Rev. Lett.*, 63 :566, 1989.

- H. Endoa, Y. Uesaka, Y. N. N. Hayashi, et H. Fukushima. *J. Appl. Phys.*, 93 :9865, 2003.
- U. Fano. *Phys. Rev.*, 178 :131, 1969.
- A. Fernandez, M. Gibbons, M. A. Wall, et C. J. Cerjan. *J. Magn. Magn. Mater.*, 190 :171, 1998.
- E. H. Frei, S. Shtrikman, et D. Treves. Critical size and nucleation field of ideal ferromagnetic particles. *Phys. Rev.*, 106(3) :446–455, 1957.
- P. Y. Friot, P. Turban, S. Andrieu, M. Piecuch, E. Snoeck, A. Traverse, E. Foy, et C. Theodorescu. *Europhys. J. B*, 15 :41–50, 2000.
- H. Fritzsche, H. J. Elmers, et U. Gradmann. Magnetic anisotropies of fe(110) interfaces. *J. Magn. Magn. Mater.*, 135 :343–354, 1994.
- O. Fruchart. *Elaboration, étude et modélisation d'un système magnétique modèle : réseaux de plots sub-microniques ultraminces de Fe(110) épitaxié à anisotropie planaire*. Thèse, Université Joseph Fourier-Grenoble I, Grenoble, 1998.
- O. Fruchart, M. Eleoui, J. Vogel, P.-O. Jubert, A. Locatelli, et A. Ballestrazzi. Nanometers-thick self-organized fe stripes : bridging the gap between surfaces and magnetic materials. *Appl. Phys. Lett.*, 84(8) :1335–1337, 2004a.
- O. Fruchart, S. Jaren, et J. Rothman. *Appl. Surf. Sci.*, 135 :218–232, 1998a.
- O. Fruchart, P.-O. Jubert, M. Klaua, J. Barthel, et J. Kirschner. *J. Magn. Magn. Mater.*, 239 :224, 2002.
- O. Fruchart, J.-P. Nozières, et D. Givord. Growth and interface anisotropy of epitaxial mo/fe/mo(110) and w/fe/w(110) ultrathin films. *J. Magn. Magn. Mater.*, 207(1-3) :158–167, 1999a.
- O. Fruchart, J.-P. Nozières, B. Kevorkian, J.-C. Toussaint, D. Givord, F. Rousseaux, D. Decanini, et F. Carcenac. High coercivity in ultrathin epitaxial micrometer-sized particles with in-plane magnetization : Experiment and numerical simulation. *Phys. Rev. B*, 57(4) :2596–2606, 1998b.
- O. Fruchart, J.-P. Nozières, W. Wernsdorfer, D. Givord, F. Rousseaux, et D. Decanini. Enhanced coercivity in sub-micrometer-sized ultrathin epitaxial dots with in-plane magnetization. *Phys. Rev. Lett.*, 82(6) :1305–1308, 1999b.

- O. Fruchart, J.-C. Toussaint, P.-O. Jubert, W. Wernsdorfer, R. Hertel, . Kirschner, et D. Maily. Angular-dependance of magnetization switching for a multi-domain dot : experiement and simulation. *Phys. Rev. B*, pages 172409–1–4, 2004b. Brief Report.
- O. Fruchart, J.-C. Toussaint, et B. Kevorkian. Micromagnetic model of non-collective magnetization reversal in ultrathin magnetic dots with in-plane uniaxial anisotropy. *Phys. Rev. B*, 63 :174418, 2001.
- O. Fruchart, W. Wernsdorfer, J.-P. Nozières, D. Givord, F. Rousseaux, D. Maily, D. Decanini, et F. Carcenac. Arrays of ultrathin fe(110) 200nm-wide particles investigated by microsquid measurements. *J. Magn. Magn. Mater.*, 198-199(1) :228–230, 1999c.
- P. Gambardella, M. Blanc, L. Bürgi, et K. Kern. Co growth on pt(997) : from monatomic chains to monolayer completion. *Surf. Sci.*, 449 :93–103, 2000.
- P. Gambardella, A. Dallmeyer, K. Maiti, M. C. Malagoli, W. Eberhardt, K. Kern, et C. Carbone. Ferromagnetism in one-dimensional monoatomic metal chains. *Nature*, 416 :301–304, 2002.
- P. Gambardella, S. Rusponi, M. Veronese, S. S. Dhesi, C. Grazioli, A. Dallmeyer, I. Cabria, R. Zeller, P. H. Dederichs, K. Kern, C. Carbone, et H. Brune. Giant magnetic anisotropy of single cobalt atoms and nanoparticles. *Science*, 300 :1130–1133, 2003.
- L. Gavioli, K. R. Kimberlin, M.-C. Tringides, J.-F. Wendelken, et Z. Zhang. Novel growth of ag islands on si(111) : Plateaus with a singular height. *Phys. Rev. Lett.*, 82(1) :129–132, 1999.
- U. Gradmann. Magnetism in ultrathin transition metal films. In K. Buschow, editor, *Handbook of magnetic materials*, volume 7, pages 1–96. Elsevier Science Publishers B.V., North Holland, 1993.
- U. Gradmann, H. J. Elmers, G. Liu, et M. Przybylski. The ferromagnetic monolayaer fe(110)/w(110). *Hyperfine Interactions*, 57 :1845, 1990.
- I. S. Gradshteyn et I. M. Ryzhik. *Table of Integrals, Series, and Products*. Academic Press, London, 5th edition, 1994.
- M. Grimsditch, A. Berger, J. Johnson, V. Metlushko, B. Ilic, P. Neuzil, et R. Kumar. Magnetic stability of nano-particles : The role of dipolar instability pockets. *Europhys. Lett.*, 54(6) :813–819, 2001.

- M. Hanzler et W. Rank. *Numerical Data and Functional relationship in Science and Technology*, volume 24a-GroupIII of *Landolt-Bernstein New Series*. Springer, Berlin, 1993.
- J. Hauschild, H. J. Elmers, et U. Gradmann. Dipolar superferromagnetism in monolayer nanostripes of fe(110) on bicinal w(110) surfaces. *Phys. Rev. B.*, 57(2) :R667, 1998a.
- J. Hauschild, U. Gradmann, et H. J. Elmers. Perpendicular magnetization and dipolar antiferromagnetism in double layer nanostripe arrays of fe(110) on w(110). *Appl. Phys. Lett.*, 72(24) :3211–3213, 1998.
- C. Herring. Some theorems on the free energies of crystal surfaces. *Phys. Rev.*, 82(1) :87–93, 1951.
- E. Hirota, H. Sakakima, et K. Inomata. *Giant magneto-resistance devices*, volume 40 of *Springer series in surface sciences*. Springer, Berlin, 2002.
- A. Hubert et W. Rave. Systematic analysis of micromagnetic processes. *Phys. Stat. Sol. (b)*, 211(2) :815–829, 1999.
- A. Hubert et R. Schäfer. *Magnetic domains. The analysis of magnetic microstructures*. Springer, Berlin, corrected 2000 edition, 1998.
- E. Isaacson et H. B. Keller. *Analysis of Numerical Methods*, §7.1. Wiley, New York, 1966.
- C. Jensen et K. Reshöft. *Appl. Phys. A : Mater. Sci. Process.*, 62 :217, 1996.
- P.-O. Jubert. *Croissance et propriétés magnétiques de nanostructures épitaxiées auto-assemblées : le système Fe/Mo(110)*. Thèse, Université Joseph Fourier-Grenoble I, Grenoble, 2001.
- P.-O. Jubert, O. Fruchart, et C. Meyer. Self-assembled growth of faceted epitaxial fe(110) islands on mo(110). *Phys. Rev. B*, 64 :115419, 2001.
- P.-O. Jubert, O. Fruchart, et C. Meyer. *J. Magn. Magn. Mater.*, 242-245 : 565, 2002.
- P.-O. Jubert, J.-C. Toussaint, O. Fruchart, C. Meyer, et Y. Samson. *Europhys. Lett.*, 63(1) :134–141, 2003.
- K. J. Kirk, J. N. Chapman, et C. D. W. Wilkinson. *J. Appl. Phys.*, 85 :5237, 1999.

- J. Kwo, E. M. Gyorgy, D. B. McWhan, M. Hong, F. J. D. Salvo, C. Vettier, et J. E. Bower. *Phys. Rev. Lett.*, 55 :1402, 1985.
- A. Locatelli, A. Bianco, D. Cocco, S. Cherifi, S. Heun, M. Marsi, M. Pasqualetto, et E. Bauer. *J. Phys. IV*, 104 :99, 2003.
- Y. Lu, R. A. Altman, A. Marley, S. A. Rishton, P. L. Trouillard, G. Xiao, W. J. Gallagher, et S. S. P. Parkin. Shape-anisotropy-controlled magnetoresistive response in magnetic tunnel junctions. *Appl. Phys. Lett.*, 70(19) : 2610–2612, 1997.
- G. Luca, R. Kimberlin, M. Tringides, J. Wendelken, et Z. Zhang. Novel growth of ag islands on si(111) : Plateaus with a singular height. *Phys. Rev. Lett.*, 82(1) :129, 1999.
- D.-A. Luh, T. Miller, J. Paggel, M. Y. Chou, et T.-C. Chiang. Quantum electronic stability of atomically uniform films. *Science*, 292 :5519, 2001.
- A. Madhukar. *Surf. Sci.*, 132 :344, 1983.
- I. Markov. *Crystal Growth for Beginners, Fundamentals of Nucleation, Crystal Growth and Epitaxy*. World Scientific, 1995.
- I. V. Markov et S. Stoyanov. Mechanisms of epitaxial growth. *Contemp. Phys.*, 28(3) :267–320, 1987.
- J. I. Martin, J. Nogués, K. Liu, J. L. Vicent, et I. K. Schuller. Ordered magnetic nanostructures : fabrication and properties. *J. Magn. Magn. Mater.*, 256 :449–501, 2003.
- L. Z. Mezey et J. Giber. *Surf. Sci.*, 117 :220, 1982.
- S. Murphy, D. M. Mathúna, G. Mariotto, et I. V. Shvets. Morphology and strain-induced defect structure of ultrathin epitaxial fe films on mo(110). *Phys. Rev. B.*, 66 :195417, 2002.
- L. Néel. *C. R. Acad. Sci.*, 224 :1550, 1947.
- R. M. H. New, R. F. W. Pease, et R. L. White. Effect of magnetocrystalline anisotropy in single-domain polycrystalline cobalt islands. *IEEE Trans. Magn.*, 31(6) :3805–3807, 1995.
- A. O. Orlov, I. Amlani, G. Bernstein, C. S. Lent, et G. L. Snider. Realization of functional cell for quantum-dot cellular automata. *Science*, 277 :928–930, 1997.

- R. Popescu, H. L. Meyerheim, D. Sander, et J. Kirschner. Surface x-ray structure analysis of periodic misfit dislocations in fe/w(110). *Phys. Rev. B*, 68 :155421, 2003.
- M. Przybylski et U. Gradmann. Ferromagnetic order in a fe(110) monolayer on w(110) by mössbauer spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 59(10) :1152–1155, 1987.
- M. Przybylski, I. Kaufmann, et U. Gradmann. *Phys. Rev. B.*, 40 :8631, 1989.
- W. Rave, K. Ramstöck, et A. Hubert. Corners and nucleation in micromagnetics. *J. Magn. Magn. Mater.*, 183 :329–333, 1998.
- J. P. Reithmaier et A. Forchel. Recent advances in semiconductor quantum-dot lasers. *C. R. Physique*, 4 :611–619, 2003.
- F. Robaut. *Elaboration par Dépôt Laser Pulsé et caractérisation de couches minces épitaxiées de terres rares et de composés intermétalliques terre rare-cobalt*. Thèse, Université Joseph Fourier-Grenoble I, Grenoble, 1995.
- R. Otero, A. V. de Parga, et R. Miranda. Observation of preferred heights in pb nanoislands : A quantum size effect. *Phys. rev. B*, 66 :115401, 2002.
- L. Royer. *Bul. Soc. Fr. Mineralog. Cristallogr.*, 51(7), 1928.
- D. Sander. The correlation between mechanical stress and magnetic anisotropy in ultrathin films. *Rep. Prog. Phys.*, 62 :809–858, 1999.
- D. Sander, R. Slomski, A. Enders, C. Schmidhals, D. Reuter, et J. Kirschner. The correlation between mechanical stress and magnetic properties of ultrathin films. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 31 :663–670, 1998.
- C. M. Schneider. *J. Magn. Magn. Mater.*, 175 :160, 1997.
- C. M. Schneider, R. Frömter, C. Ziethen, W. Swiech, N. B. Brooks, G. Schönhense, et J. Kirschner. *J. Mater. Rec. Soc. Symp. Proc.*, 475 : 381, 1997.
- J. M. Schneider et H. Hoffmann. *J. Magn. Magn. Mater.*, 257 :1, 2003.
- G. Schönhense. Imaging of magnetic structure by photoemission electron microscopy. *J. Phys. : Condens. Matter*, 11 :9517–9547, 1999.
- G. Schütz, W. Wagner, W. Wilhelm, P. Kienle, R. Zeller, R. Frahm, et G. Materlik. *Phys. Rev. Lett.*, 58 :737, 1987.

- J. Shen, Z. Gai, et J. Kirschner. Growth and magnetism of metallic thin films and multilayers by pulsed-laser deposition. *Surf. Sci. Rep.*, 52 :163–218, 2004.
- J. Shen et J. Kirschner. *Surf. Sci.*, 500 :300–332, 2002.
- J. Shen, R. Skomsky, M. Klaua, H. Jenniches, S. S. Manoharan, et J. Kirschner. Magnetism in one dimension : Fe on cu(111). *Phys. Rev. B*, 56(5) : 2340–2343, 1997.
- J. C. Slonczewski. Theory of magnetic hysteresis in films and its applications to computers. Research Memo RM 003.111.224, IBM Research Center, Poughkeepsie, NY, 1956.
- J. Stöhr, Y. Wu, B. B. Hermsmeir, M. G. Samant, G. Harp, S. Koranda, D. Dunham, et B. P. Tonner. *Science*, 259 :658, 1993.
- E. C. Stoner et E. P. Wohlfarth. A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys. *Phil. Trans. Royal Soc. London*, A240 :599–642, 1948.
- W. Swiech, G. H. Fecher, C. Ziethen, O. Schmidt, G. Schönhense, K. Grzelakowski, C. M. Schneider, R. Frömter, H. P. Oepen, et J. Kirschner. *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.*, 84 :171, 1997.
- C. Teichert. Self-organization of nanostructures in semiconductor heteroepitaxy. *Phys. Rep.*, 365 :335–432, 2002.
- M. Tikhov et E. Bauer. Growth, structure and energetics of ultrathin ferromagnetic single crystal films on mo(110). *Surf. Sci.*, 232(1-2) :73–91, 1990.
- J. C. Toussaint, A. Marty, N. Vukadinovic, J. Ben Youssef, et M. Labrune. A new technique for ferromagnetic resonance calculations. *Comput. Mater. Sci.*, 24(1-2) :175–180, 2002.
- V. Usov, S. Murphy, et I. Shvets. Study of in-plane magnetic anisotropy of ultrathin epitaxial fe films grown on vicinal mo(110) surface. *en publication*, 2004.
- L. Vitos, A. V. Ruban, H. L. Skiver, et J. Kollár. The surface energy of metals. *Surf. Sci.*, 411 :186–202, 1998.

- B. Voigtländer, G. Meyer, et N. M. Amer. Epitaxial growth of thin magnetic cobalt films on au(111) studied by scanning tunneling microscopy. *Phys. Rev. B*, 44(18) :10354–10357, 1991.
- A. Wachowiak, J. Wiebe, M. Bode, O. Pietzsch, M. Morgenstern, et R. Wiesendanger. Direct observation of internal spin structure of magnetic vortex cores. *Science*, 298 :577–580, 2002.
- H. Wagner. *Physical and Chemical properties of Stepped Surfaces*, volume 85 of *Springer tracts in Modern Physics*. Springer, Berlin, 1979.
- G. Waller et U. Gradmann. Periodic lattice distortions in epitaxial films of fe(110) on w(110). *Surf. Sci.*, 116 :539–548, 1982.
- W. Weber, D. Kermann, D. Pescia, D. A. Wesner, et G. Guntherodt. *Phys. Rev. Lett.*, 65 :2058, 1990.
- G. Wedler, J. Walz, et A. Greuer. Stress dependence of the magnetoelastic coupling constants b1 and b2 of epitaxial fe(001). *Phys. Rev. B*, 60(16), 1999.
- J.-E. Wegrowe, O. Fruchart, J.-P. Nozières, D. Givord, F. Rousseaux, et D. Decanini. Arrays of ultrathin monocrystalline fe submicrometer-sized particles : Néel-brown relaxation and activation volume. *J. Appl. Phys.*, 86(2) :1028–1034, 1999.
- R. L. White. Patterned media promise superhigh storage densities. *Data Stor.*, 4(8) :55–60, 1997.
- Q. Xie, A. Madhukar, P. Chen, et N. Kobayashi. Vertically self-organized inas quantum box islands on gaas(100). *Phys. Rev. Lett.*, 75 :2542–2545, 1995.
- A. Yamasaki, W. Wulfhekel, R. Hertel, S. Suga, et J. Kirschner. Direct observation of the single domain limit of fe nanomagnets by spin-polarized scanning tunneling spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 91(12) :127201–1–4, 2003.
- Z. Y. Zhang, Q. Niu, et C. K. Shih. *Phys. Rev. B*, 58 :5116, 1998.

COUCHES ÉPITAXIALES MAGNÉTIQUES À PARAMÈTRE CRISTALLIN AJUSTABLE

Résumé : L'objectif principal de cette thèse est d'établir un lien quantitatif entre un désaccord paramétrique ou un paramètre de maille différent du massif d'une part, et un comportement de croissance ou une propriété magnétique d'autre part.

Une méthode originale est développée afin de fabriquer des couches tampon à paramètre cristallin ajustable et d'énergie de surface contrôlable indépendamment. Ce développement est ensuite mis à profit pour étudier les effets du désaccord paramétrique et de l'interface chimique sur la croissance de bandes de Fe auto-organisées épaisses. Des bandes auto-organisées de Fe d'épaisseur jusqu'à cinq nanomètres ont pu être élaborées, ce qui contraste avec les résultats de la littérature (un ou deux plans atomiques). Cette épaisseur inhabituellement élevée nous a permis d'obtenir rémanence, coercitivité, et/ou subdivision en domaines magnétiques stables à température ambiante. Les domaines magnétiques ont été mis en évidence par dichroïsme magnétique circulaire des rayons X. Enfin nous avons développé un modèle micromagnétique analytique du renversement d'aimantation dans une nanostructure ultramince, qui pourra être appliqué à certaines des nouvelles structures élaborées au cours de cette thèse.

Mots clefs : Épitaxie, Dépôt par laser pulsé, Couches tampon, Paramètre cristallin, Interface, Auto-organisation, Bandes, Anisotropie magnétique, Modélisation micromagnétique analytique, Renversement d'aimantation, Dichroïsme magnétique circulaire (XMCD), Domaines magnétiques.

EPITAXIAL MAGNETIC FILMS WITH TUNABLE LATTICE PARAMETER

Abstract : The main aim of this thesis is to quantify the relationship between misfit or a crystalline parameter different from the bulk one on one side and the behaviour of growth and magnetic properties on the other side.

An original procedure, based on alternative pulsed laser depositions (PLD) from two different targets, has been developed to fabricate high quality buffer layers with a tunable lattice parameter and an independently controllable surface energy. This procedure is applied to the study of effects due to misfit and chemical interface on the growth and magnetic properties of thick self-organized iron stripes. Self-organized stripes of Fe were fabricated by PLD with a height up to five nanometers in contrast with results found in the literature (one or two atomic layers in height). This new elevated thickness allowed us to obtain remanence, coercivity, and/or splitting into stable magnetic domains at room temperature. Magnetic domains were revealed by X-ray circular magnetic dichroism. Finally, we have proposed an analytical model of magnetization reversal in flat dots and stripes. This model predicts the values of both reversal and nucleation fields as function of the dot thickness. The results of this model are in good agreement with numerical simulations.

Key words : Epitaxy, Pulsed laser deposition, buffer layers, tunable lattice parameter, Interface, Self-organization, Stripes, Magnetic anisotropy, Analytical micro-magnetic modelling, Magnetization reversal, X-Ray Magnetic Circular Dichroism (XMCD), Magnetic domains.