



HAL
open science

ETUDE DE NANOSTRUCTURES MAGNÉTIQUES PAR DIFFRACTION RÉSONANTE ET COHÉRENTE DES RAYONS X MOUS

Guillaume Beutier

► **To cite this version:**

Guillaume Beutier. ETUDE DE NANOSTRUCTURES MAGNÉTIQUES PAR DIFFRACTION RÉSONANTE ET COHÉRENTE DES RAYONS X MOUS. Matière Condensée [cond-mat]. Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, 2005. Français. NNT: . tel-00108493

HAL Id: tel-00108493

<https://theses.hal.science/tel-00108493>

Submitted on 21 Oct 2006

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.

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE

THÈSE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'INPG

Spécialité :

«Physique des matériaux : des nanostructures aux grands instruments»

Thèse préparée au sein du
CEA – Département de Recherche Fondamentale sur la Matière Condensée
dans le cadre de l'Ecole Doctorale de Physique de Grenoble

présentée et soutenue publiquement
le 20 décembre 2005
par

Guillaume BEUTIER

**ETUDE DE NANOSTRUCTURES
MAGNÉTIQUES PAR DIFFRACTION
RÉSONANTE ET COHÉRENTE DES
RAYONS X MOUS**

JURY

M. Michel SCHLENKER	Président
M. François DUCASTELLE	Examineur
Mme Catherine DUFOUR	Rapporteur
M. Mark SUTTON	Rapporteur
M. Frédéric LIVET	Directeur de thèse
M. Alain MARTY	Directeur de thèse

Avant toute chose, je voudrais remercier Catherine Dufour et Mark Sutton d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ce travail, malgré des contraintes de délai qui rendent peu agréables la lecture d'un tel document. Je remercie également Michel Schlenker, en particulier pour ses précieuses suggestions de correction, ainsi que François Ducastelle, pour avoir accepté de participer au jury.

Cette thèse a été préparée au sein du Service de Physique des Matériaux et Microstructures du CEA. A ce titre, je remercie Noël Magnéa et Yves Samson de m'avoir accueilli dans ce laboratoire et de m'avoir donné les moyens de mener à bien cette thèse. Cette thèse a également été préparée en collaboration étroite avec le Laboratoire de Thermodynamique et Physico-Chimie des Matériaux du CNRS, et je remercie Jean-Marc Chaix et Marc de Boissieu de m'y avoir accueilli et d'avoir mis les équipements scientifiques à ma disposition.

Mon plus grand merci va à mes encadrants, Frédéric Livet et Alain Marty, pour la qualité de leur encadrement, tant sur le plan scientifique que sur le plan humain. Impliqués un peu par hasard dans un projet qu'ils n'ont pas lancé avec un thésard qu'ils n'ont pas demandé, ils ont pris goût au jeu de la diffraction magnétique et appris au jeune padawan comment devenir jedi. Merci pour les nuits partagées au synchrotron, merci pour le temps passé à corriger ma thèse, et merci de sacrifier vos vacances pour que je puisse profiter des miennes...

Tout cela ne se serait pas fait sans l'intervention de Michel Belakhovsky et Karine Chesnel, qui m'ont accueilli en stage de DEA puis lancé sur cette thèse. Je souhaite une bonne continuation à Karine, et à Michel de bien profiter de sa retraite.

Parmi mes proches collaborateurs, je voudrais remercier particulièrement Jean-Marc Tonnerre, avec qui j'ai eu plaisir à partager deux manips à PSI (Suisse), avec le réflectomètre qu'il a construit. Je m'excuse sincèrement de ne pas avoir pu parler de ces manips dans ce manuscrit.

Je remercie également Gerrit van der Laan, pour sa participation à plusieurs de nos projets, pour le temps de faisceau à Daresbury et pour les moyens techniques qu'il nous a fournis, et enfin pour sa précieuse aide dans la rédaction d'articles. Plusieurs personnes de son équipe nous ont aidés sur divers projets. Parmi eux, je pense particulièrement à ceux qui ont contribué au projet de diffraction cohérente : Anna Haznar, Esther Dudzik, Steve Collins et Sarnjeet Dhesi.

Ce projet ambitieux, nécessitant une qualité de faisceau particulière, a bénéficié du soutien et du très bon accueil du staff de la ligne ID08. Un immense merci à Stefan et Peter, pour les nuits partagées à compter les photons. Stefan, si jamais un jour je suis local contact quelque part, tu me dois un coup de fil vers 4h30 du mat...

Les manips de neutrons ont eu lieu au Laboratoire Léon Brillouin où nous avons bénéficié de la précieuse aide de Frédéric Ott, tant pour la partie expérimentale que pour l'analyse des données.

Toutes les simulations de micromagnétisme présentées dans ce manuscrit ont été réalisées avec le code GL_FFT, qui a été développé par Jean-Christophe Toussaint. Je le remercie de l'avoir mis à ma disposition.

Un Jedi se doit d'avoir plusieurs cordes à son sabre laser, et celle de \LaTeX n'est pas facile à acquérir. Je dois à Patrick que ce torchon ne soit pas une serpillière. D'ailleurs, comme je ne suis pas une flèche en informatique, je remercie aussi Thierry et Damien pour l'aide en fortran, et Olivier Blondel pour le support technique (merci pour les multiples licences Matlab... j'en demandais pas tant. Et puisqu'on parle de Matlab, je m'excuse auprès de Yann-Michel d'avoir abusé de la licence les dernières semaines. Les autres utilisateurs je les connais pas alors c'est

pas grave.)

Puisqu'une thèse ce n'est pas que de la science mais aussi des rapports humains, alors je pense tout de suite à Jérôme, qui m'a supporté 3 ans comme co-bureau. Désolé Jérôme, j'étais pas à la hauteur sur les problématiques qui t'excitaient. Je t'avoue aussi que j'étais pas à la hauteur non plus pour la plante verte (marron ?) que tu as laissée dans le bureau... On aurait mieux fait de la mettre en salle agrégats ! En tout cas je te souhaite bonne chance pour ta thèse sur la diffusion des techniques de mise ordre du MnPt au paléolithique supérieur.

Maintenant que j'ai remercié mon co-bureau et mon voisin de bureau, je vais plus loin dans le couloir, jusqu'à la salle agrégats, qui pour moi est surtout la salle café et la salle où je vais laisser la plante verte de Jérôme. Merci pour le café du matin, merci Céline pour les gâteaux, merci Ariel pour les scoops de RLP, merci Robert pour m'avoir fait découvrir Hector, et merci Lucien pour tout et rien en particulier. Courage Céline !!! Merci à Matthieu pour sa sympathie, et bonne chance dans ta vie trépidante... Pierre, félicitations pour tes résultats et pour avoir commencé à rédiger ta thèse avant moi ! Plus loin dans le couloir, je remercie encore une fois Yves, mais cette fois pas en tant que remerciements administratifs. Le couloir d'après, c'est déjà la banlieue, j'y vais seulement pour prendre un pôt chez les simulateurs. Il y a Cyrille, à qui je souhaite plein de bonheur avec sa petite famille, puis Jean-Philippe, qu'on remercie tous de ne pas prendre de 3^e dessert, Jean-Christophe, à qui je dois les belles images FEG, et Mickaël, qui a oublié de mettre du sel dans ses agrégats. Et n'oublions pas ceux qui sont partis, Richard, Florent, et surtout Anthony.

Au LTPCM, je remercie tout particulièrement Bruno et Marc pour les manips de dernière minute et pour m'avoir accompagné à Daresbury. Merci aussi à Virginie, Françoise, Alexis, Fabien, Yves, John et les autres pour l'accueil et les bons conseils. Bonne chance à Sonia pour la fin !

J'ai aussi une pensée pour les gens de NRS, qui m'ont filé un coup de main occasionnellement, malgré leur emploi du temps chargé par les multiples manips et contraintes de "local contact". Merci donc à Gilles, Hubert, Vincent, Olivier, Marion, Frédéric, Yohan...

Durant ces 3 années et demi grenobloises, ma vie ne s'est pas arrêtée aux activités scientifiques, au contraire. Alors évidemment il y a mes compagnons de cordées : Johnjohn avant tout, sans qui rien ne serait arrivé (et Oliv' aussi), Filou, Cliff, Pierric, Fonzy, Naga, Noémie et tous ceux du club montagne ECL qui sont venus squatter chez moi, la Flamby Team (Gromain, Groju, Grojean...) et Raph, qui ferait partie de la Flamby Team si elle râlait pas tout le temps. Raph, je te dois aussi le passage sur la microscopie de champ proche, qui est paraît-il le passage le mieux écrit de ma thèse... J'oublie pas Clément, Ivan et Laurent, grands amateurs de dénivellé.

Quand on est pas en montagne, on est bien content d'aller faire la fête chez les copines. Alors un gros bisou à Iris pour le meilleur café du monde, à DoroT pour les apéros du jeudi soir, à Anne pour la musique qui garde éveillée, et à Céline pour la confiture de châtaignes, à Cécile qui fait le meilleur crumble du monde et à Sophie pour les rhums arrangés. Merci aussi à notre grand marin/climatologue/aciériste qui se reconnaîtra, notamment pour la revue de presse, le tagine aux figues et la mini-cafetière.

J'ai aussi une tendre pensée pour certaines demoiselles de Grenoble et d'ailleurs.

Viens le moment où je voudrais remercier mes colocs, mais ils sont trop nombreux, ça ferait un chapitre. Alors je voudrais seulement exprimer toute ma gratitude à Anne et Anouchka, sans qui la rédaction eût été encore plus douloureuse. Votre soutien, tant psychologique que gastronomique et orthographique, je ne l'oublierai pas. Merci aussi à Floflo pour la carte postale de l'Himalaya ; ça provoque des sentiments violents quand on est sevré de nature pendant 3 mois.

Enfin merci à Daschka de marcher sur le clavier quand je tape des formules de maths.

Pour conclure ces remerciements, j'aimerais remercier ma famille, pour son soutien malgré mon absence.

Table des matières

Introduction générale	11
I Alliages ferromagnétiques	13
1 Croissance et structure des échantillons	17
1.1 Alliages binaires à maille cristalline cubique	17
1.2 Epitaxie par Jets Moléculaires	18
1.2.1 Le bâti d'épitaxie	18
1.2.2 Croissance	19
1.2.3 Structure de l'alliage et conditions de croissance	19
1.2.4 Composition des bicouches et tricouches de FePd	20
1.3 Diffraction de rayons X	21
1.3.1 Mesure de l'ordre à longue distance	22
1.3.2 Ordre dans l'alliage FePd	22
1.4 Réflectivité de rayons X	24
2 Propriétés magnétiques	27
2.1 Généralités sur les alliages ferromagnétiques	27
2.2 Configuration des domaines magnétiques	28
2.2.1 Principe de la microscopie à force magnétique	28
2.2.2 Observation de domaines magnétiques dans le FePd	29
2.3 Magnéto-métrie	32
2.3.1 Anisotropie magnétique perpendiculaire	32
2.3.2 Cycles d'aimantation	33
2.4 Simulations micromagnétiques	36
2.4.1 Description du code GL_FFT	36
2.4.2 Modélisation micromagnétique des bicouches et tricouches	38
2.5 Mesures de neutrons	38
2.5.1 Réflectivité de neutrons polarisés	38
2.5.2 Diffusion hors spéculaire	44
II Diffraction magnétique résonante des rayons X mous	45
Introduction	47

3	Formalisme de la diffraction magnétique	49
3.1	Interaction photon-électron	49
3.1.1	Hamiltonien d'interaction	49
3.1.2	Diffusion élastique non-résonante	51
3.1.3	Processus résonants	52
3.1.4	Dépendance en énergie	55
3.2	Formalisme matriciel de la diffraction	57
3.2.1	Polarisation du faisceau	58
3.2.2	Expression de l'intensité selon les polarisations	59
3.3	Particularité des rayons X mous	62
3.3.1	Absorption et réfraction	62
3.3.2	Transmission et réflexion	63
3.3.3	Modèle de diffraction magnétique des rayons X mous	63
4	Analyse de configurations magnétiques	67
4.1	Périodicité magnétique	67
4.2	Asymétrie des satellites magnétiques	69
4.3	Réflectivité magnétique	72
4.4	Tiges magnétiques	73
4.4.1	Mesures expérimentales	73
4.4.2	Modélisation	74
4.5	Conclusion et perspectives	78
III	Diffraction cohérente des rayons X mous	81
	Introduction	83
5	Dispositif instrumental	87
5.1	L'ESRF	87
5.2	La ligne ID08	88
5.2.1	Emittance du faisceau	89
5.2.2	Cohérence du faisceau	90
5.2.3	Structure et stabilité du faisceau	92
5.3	Le diffractomètre	92
5.4	L'électroaimant	94
5.5	Le porte-diaphragmes motorisé	95
5.6	Les diaphragmes	98
5.7	La caméra CCD	100
5.7.1	Caractéristiques du détecteur	100
5.7.2	Etude du bruit de fond du détecteur	101
5.8	L'algorithme de gouttelettes	105
5.8.1	Principe de l'algorithme	105
5.8.2	Distribution d'intensité des gouttelettes	106
5.8.3	Efficacité de l'algorithme	109

6	Diffraction cohérente de domaines	117
6.1	Diffraction magnétique cohérente de films minces	117
6.1.1	Description de l'échantillon	117
6.1.2	Quelques résultats connus	119
6.1.3	Apport de la cohérence	123
6.1.4	Corrélation de figures de speckles	133
6.1.5	Speckles de FePd en géométrie perpendiculaire	135
6.2	Diffraction cohérente d'une microstructure	139
6.2.1	Description de l'échantillon	139
6.2.2	Observation en microscopie de champ proche	140
6.2.3	Diffraction magnétique cohérente	140
7	Diffraction cohérente de nanolignes	147
7.1	Description des nanolignes magnétiques	147
7.1.1	Le réseau de nanolignes	147
7.1.2	La multicouche de Co/Pt	148
7.2	Résultats expérimentaux	149
7.2.1	Observation des défauts de gravure	149
7.2.2	Observation de l'ordre antiferromagnétique	151
7.2.3	Evolution sous champ magnétique perpendiculaire	151
7.2.4	Observation de la mémoire magnétique	153
7.3	Essai de reconstruction	154
7.4	Conclusion et perspectives	160
	Conclusion générale	163
A	Aspects géométriques	165
A.1	Définition des angles	165
A.2	Espace réciproque	166
A.2.1	Géométrie longitudinale	167
A.2.2	Géométrie transverse	168
A.3	Dépendances géométriques du facteur de diffusion	168
B	Amplitude cohérente de l'onde incidente	171
B.1	Champ rayonné par une ouverture	171
B.1.1	Définition du problème	171
B.1.2	Approximation paraxiale	172
B.1.3	Amplitude sur l'échantillon	173
B.1.4	Amplitude réfléchie par l'échantillon	173
B.2	Calcul du facteur de forme de l'ouverture	175
B.2.1	Calcul par éléments finis	175
B.2.2	Cas d'une ouverture circulaire	175
B.2.3	Diffraction de Fraunhofer	178
B.3	Amplitude diffusée par un échantillon invariant	179
	Bibliographie	180

Introduction générale

La science et la technologie entretiennent depuis toujours des rapports étroits et se développent conjointement, la science donnant accès à une nouvelle technologie, qui permet en retour d'améliorer l'instrumentation scientifique. Le XX^e siècle a vu le développement technologique de la microélectronique, lié à l'exploration de la matière à l'échelle du micron. A l'aube du XXI^e siècle, la majorité des grandes questions scientifiques à l'échelle du micron ont été résolues, et la microélectronique atteint ses limites de développement. L'intérêt général s'est déplacé vers l'échelle du nanomètre, qui ouvre de nouvelles voies vers la nanoélectronique et plus généralement vers les nanotechnologies, grâce aux propriétés de la matière à cette échelle.

C'est tout naturellement que la recherche sur les propriétés magnétiques de la matière suit cette évolution. Le développement du nanomagnétisme appelle à l'invention de nouvelles techniques permettant de l'étudier. L'interaction de la lumière avec les moments magnétiques, connue depuis le milieu du XIX^e siècle, est bien établie dans le domaine optique. Si les phénomènes équivalents dans le domaine des rayons X sont prédits depuis le milieu du XX^e siècle, la technologie n'a permis leur étude que depuis peu d'années. Dans ce domaine, l'histoire est étrangement passée de l'échelle optique à l'échelle de l'Angström : l'existence en laboratoire de sources de rayons X durs relativement puissantes explique l'antériorité de la découverte de la diffraction magnétique dans la gamme des longueurs d'onde de l'Angström avant celles du nanomètre. La diffraction magnétique des rayons X mous a connu un rapide développement à partir des années 1990, grâce aux instituts de rayonnement synchrotron de troisième génération, portée par l'intérêt technologique de la nanoélectronique.

Ce n'est pas un hasard si Grenoble est au centre de ce développement. La présence conjointe de l'European Synchrotron Radiation Facility (ESRF) et d'une industrie microélectronique puissante sont en partie l'héritage de Louis Néel, père fondateur de l'étude du magnétisme dans la matière. C'est donc naturellement que la diffraction magnétique des rayons X trouve sa place dans ce cadre propice.

Cette thèse s'inscrit dans la lignée des thèses récentes de Laurent Sève [1], Nicolas Jaouen [2] et Karine Chesnel [3], qui ont montré l'utilité des rayons X mous pour l'étude des systèmes magnétiques à l'échelle nanométrique. Laurent Sève et Nicolas Jaouen se sont principalement intéressés à la diffraction en réflexion spéculaire, puis Karine Chesnel a étendu l'étude à la diffraction hors spéculaire en géométrie de réflexion. J'ai poursuivi ce travail et je présente dans ce document de nouveaux outils permettant l'analyse quantitative de configurations magnétiques périodiques dans les couches minces.

L'utilisation de la forte cohérence du rayonnement synchrotron, particulièrement dans la gamme des rayons X mous, a permis récemment les premières expériences de diffraction magnétique cohérente. Ce document apporte sa pierre à ce nouvel édifice promis à un brillant avenir : le développement actuel du laser à électrons libres laisse entrevoir des perspectives excitantes sur

la possibilité d'imager les domaines magnétiques avec des rayons X.

Par ailleurs, les systèmes étudiés dans ce document sont des nanostructures magnétiques en rapport direct avec les préoccupations des acteurs impliqués dans les nanotechnologies. Ce sont d'une part des couches minces d'alliages ferromagnétiques, d'autre part des media nanostructurés. Ils bénéficient d'une longue tradition dans notre laboratoire, grâce aux thèses de Véronique Géhanno [4] et de David Halley [5] pour les couches minces de FePd, et aux thèses de Stefan Landis [6], de Jérôme Moritz [7] et de Vincent Baltz [8] pour les medias nanostructurés.

Ce document est une sélection des études que j'ai menées pendant mes trois ans de thèse. J'ai eu l'occasion de participer à des expériences dans trois instituts de rayonnement synchrotron, sur 6 lignes différentes, ainsi que sur deux lignes du réacteur à neutrons du Laboratoire Léon Brillouin. Toutes ces expériences n'ont pas encore été exploitées à la hauteur de ce qu'elles méritent, et je m'en excuse auprès des personnes impliquées, aussi je ne présente ici que la substantifique moelle.

Ce document s'articule de la manière suivante :

Dans une première partie, j'exposerai rapidement les propriétés des alliages ferromagnétiques en général, et des couches minces étudiées dans ce document en particulier. Je présenterai également les outils utilisés pour les caractériser.

Dans une deuxième partie, je montrerai quels sont les apports de la diffraction magnétique des rayons X mous pour ces systèmes. Je mettrai l'accent sur l'aspect quantitatif des informations que cette technique peut amener pour la compréhension des systèmes magnétiques.

Dans une troisième partie, je porterai l'attention sur l'utilisation de la cohérence des rayons X et sur son intérêt pour l'étude des processus locaux. Une ouverture sera faite vers la reconstruction de configurations magnétiques, en vue d'un développement vers l'imagerie.

Finalement je conclurai et discuterai des perspectives.

Première partie

Alliages ferromagnétiques

Notre laboratoire a acquis depuis de nombreuses années une connaissance approfondie des métaux ferromagnétiques, tant sur le plan de leur croissance et de leur structure que sur le plan de leur comportement magnétique. Nous disposons donc à la fois de nombreux équipements et de ressources humaines liés à ce sujet, soit en propre, soit par des collaborations locales très développées.

Ce contexte très favorable m'a permis de m'impliquer personnellement dans toutes les étapes de l'étude des échantillons, de la croissance à la caractérisation par les grands instruments, en passant par les caractérisations "de laboratoire".

La plupart de ces techniques sont d'usage courant, particulièrement les méthodes de croissance et de caractérisation de laboratoire. Nous les avons utilisées généralement de manière "standard", dans le but unique d'obtenir des informations utiles sur les propriétés structurales et magnétiques des échantillons, et non de développer la technique. En conséquence, elles n'ont pas vocation à être décrites en détail dans ce manuscrit, et seule une brève description en est faite. C'est également le cas de la réflectivité de neutrons. Inversement, la diffraction magnétique résonante des rayons X fait l'objet d'une description détaillée.

La grande majorité des échantillons que nous avons étudiés sont composés de couches minces épitaxiées à base de métaux ferromagnétiques. Ce manuscrit repose essentiellement sur l'alliage équiatomique FePd. De nombreux autres matériaux ont été étudiés : les alliages CoPt, FePt, MnPt, MnPt₃, CoPd, Fe, Ni... La plupart des études sur ces matériaux sont restées embryonnaires et ne sont pas présentées dans ce manuscrit.

D'autres échantillons ont été réalisés autrement que par épitaxie par jets moléculaires. Ce sont essentiellement des multicouches de Co/Pt déposées par pulvérisation sur des substrats nanostructurés dans le silicium. Ces dépôts ont été faits par Vincent Baltz (CEA - Spintec), sur des substrats fournis par Stefan Landis (CEA - Leti). Ces échantillons seront présentés en détail dans la partie III.

Des agrégats nanométriques de Cobalt, déposés par une équipe de notre laboratoire, ont également été étudiés.

Nous présentons dans cette partie les résultats concernant les couches minces épitaxiées. Une attention particulière sera portée sur une série d'échantillons de «bicouches» et de «tricouches» de FePd : il s'agit d'empilements de deux ou trois couches de FePd aux propriétés structurales et magnétiques différentes. Les techniques de caractérisation présentées dans cette partie vont nous permettre d'étudier le couplage entre les différentes couches constituant ces échantillons.

Cette étude s'inscrit dans un cadre plus global, celui de la recherche sur les matériaux destinés à l'enregistrement magnétique. Les matériaux à aimantation perpendiculaire sont en effet l'objet d'un intérêt croissant : on étudie le couplage d'échange entre couches minces à aimantation perpendiculaire et antiferromagnétiques, en vue d'une utilisation pas exemple dans les têtes de lecture. On étudie également le couplage dipolaire entre couches minces à aimantation perpendiculaire en vue d'une utilisation comme matériau de stockage, par exemple dans des structures multiniveaux.

Par ailleurs, nous allons voir que ces échantillons offrent la possibilité d'obtenir des domaines magnétiques alignés en rubans. Ce type de matériau est particulièrement intéressant pour l'étude de l'effet des parois magnétiques sur les propriétés de transport.

Chapitre 1

Croissance et structure des échantillons

1.1 Alliages binaires à maille cristalline cubique

Les alliages que nous avons étudiés sont principalement les alliages binaires équiatomiques $\text{Fe}_{0.5}\text{Pd}_{0.5}$ et $\text{Co}_{0.5}\text{Pt}_{0.5}$. Par la suite, les alliages mentionnés sans leurs indices de composition (par exemple FePd, FePt et CoPt) se réfèrent aux alliages équiatomiques.

Près de la stoechiométrie 50-50, ces alliages existent principalement sous les phases A1 (Cubique à Faces Centrées) et $L1_0$ (tétraogonale). Ces structures cristallographiques sont représentées sur la Figure 1.1. Mentionnons aussi la phase $L1_2$, qui apparaît lorsque la composition s'approche du rapport 75-25.

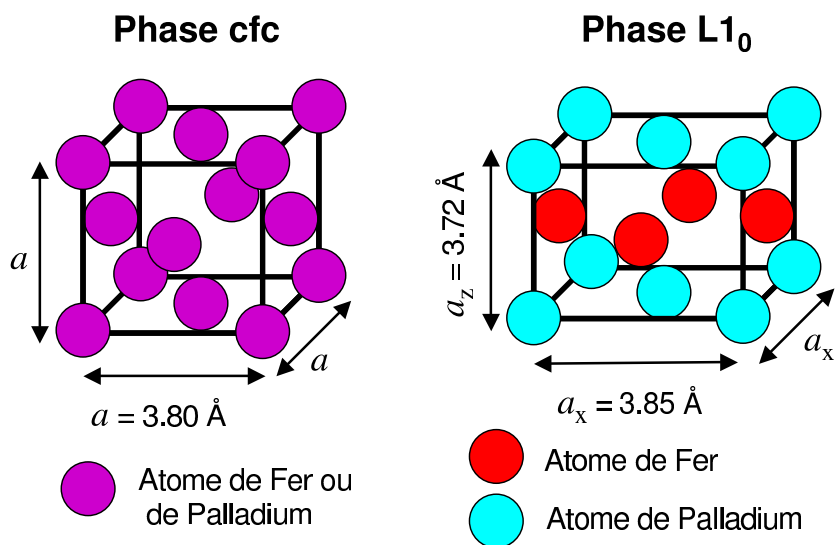


FIG. 1.1 – Schéma des structures cristallographiques A1 et $L1_0$ (Cas du FePd).

La structure A1 consiste en une répartition aléatoire des atomes de deux espèces d'atomes sur les sites d'un réseau cubique à faces centrées. En conséquence, la symétrie est statistiquement cubique et les 3 axes de symétrie sont équivalents.

Dans la structure $L1_0$, les deux espèces d'atomes s'organisent en plans alternés, ce qui brise la symétrie cubique au profit d'une structure tétraogonale. Dans le cas des alliages FePd et CoPt

déposés sur une couche tampon de Palladium ou de Platine, le processus de croissance favorise l'orientation de l'axe d'anisotropie de la maille tétragonale perpendiculairement au plan.

A température ambiante, la phase $L1_0$ est thermodynamiquement plus stable que la phase A1, mais la cinétique de la mise en ordre est très lente, et le dépôt conduit à la phase métastable A1. On peut néanmoins favoriser cette mise en ordre soit en chauffant l'alliage (au-dessus de 350°C pour le FePd), lors du dépôt ou lors d'un long recuit post-croissance, soit en l'irradiant. Il est clair que le dépôt à haute température est plus efficace que le recuit, car les atomes peuvent s'organiser au fur et à mesure du dépôt sur la surface libre, plutôt que de migrer dans la couche. De plus, le recuit donne lieu aux trois variants en proportions égales, alors que le dépôt à chaud favorise la formation du variant perpendiculaire à la couche.

Les conditions de dépôt pour la mise en ordre sont explicitées plus loin, et détaillées dans le cas du FePd dans la thèse de Véronique Géhanno [4]. La mise en ordre du FePd par recuit post-croissance a été étudiée par David Halley [9].

La structure cristallographique de l'alliage détermine grandement ses propriétés magnétiques (cf. §2).

1.2 Epitaxie par Jets Moléculaires

Les couches minces épitaxiées que nous avons étudiées ont toutes été déposées dans notre laboratoire, par épitaxie par jets moléculaires (EJM), dans un bâti sous ultravide (10^{-10} Torr) dédié à la croissance des métaux.

1.2.1 Le bâti d'épitaxie

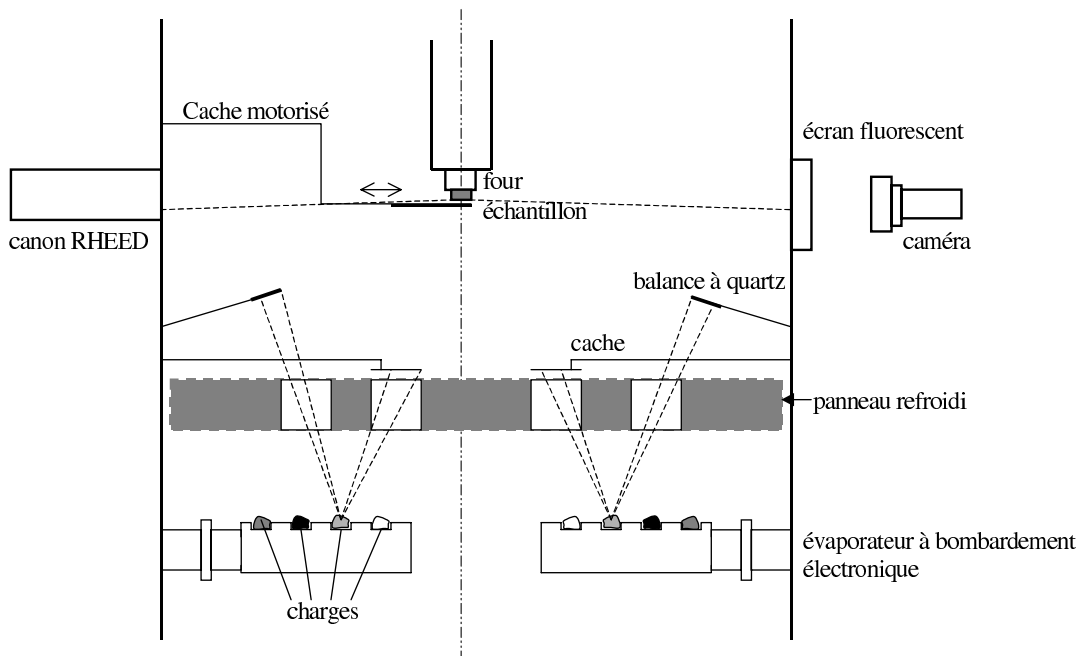


FIG. 1.2 – Schéma du bâti d'épitaxie par jets moléculaires

La chambre d'évaporation du bâti est équipée de deux évaporateurs à bombardement électro-

nique, ce qui permet de déposer des alliages binaires. Chaque évaporateur contient quatre cibles métalliques différentes. Deux cellules à effusion permettent en plus de déposer d'autres matériaux en petite quantité. Des caches mécaniques obturent ou découvrent les évaporateurs et les cellules, afin de maîtriser les temps de dépôt, et les flux sont contrôlés par des balances à quartz. Un masque motorisé permet de masquer l'échantillon, ce qui permet de déposer les couches en coin d'épaisseur.

Le porte-échantillon est muni d'un four permettant de chauffer les échantillons jusqu'à 600°C.

Un canon à électrons et un écran fluorescent permettent de mesurer la diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante (RHEED), ce qui permet de contrôler l'état de surface de l'échantillon en cours de croissance.

Une description plus détaillée du bâti, avec tous ces équipements associés, est donnée dans [10].

1.2.2 Croissance

Tous nos dépôts ont été faits sur des substrats monocristallins de MgO (001). Ces substrats sont préalablement nettoyés par des bains successifs de trichloréthylène (ou de dichlorométhane), d'acétone et de méthanol, puis séchés à l'azote sec. Ils subissent ensuite un cycle de dégazage sous vide, dans une chambre annexe du bâti, par un chauffage par paliers.

Le paramètre de maille de la surface (001) du MgO est de 4.21 Å, ce qui est très différent des paramètres de maille des alliages que nous avons étudiés, qui sont de l'ordre de 3.8 Å à 3.9 Å.

Pour avoir une bonne épitaxie de l'alliage, on dépose généralement une couche tampon assez épaisse (quelques dizaines de nm) de Palladium ou de Platine. Pour cela, on dépose préalablement à température ambiante une couche de mouillage de Chrome de 2 à 3 nanomètres. La couche tampon est alors déposée à température ambiante, puis recuite à $\sim 500^\circ\text{C}$ pendant environ 15 minutes, pour obtenir une surface bien lisse.

Les couches d'alliages peuvent ensuite être déposées. Les conditions de dépôt de l'alliage sont très variables, selon le résultat souhaité. En mode "codéposition", les deux espèces de l'alliage sont déposées simultanément, et la mise en ordre dépend de la température. Une autre manière de faire croître l'alliage est la méthode "couche par couche", qui consiste à ouvrir les caches masquant les cibles à tour de rôle, de façon à déposer alternativement une couche atomique de chaque espèce. Cette méthode donne un ordre $L1_0$ partiel avec l'axe c perpendiculaire au plan de la couche [4].

Il est aussi possible de déposer l'alliage directement sur le substrat de MgO (001) à haute température ($\sim 500^\circ\text{C}$). Les premières couches d'alliages sont alors "sacrifiées" et servent de couche tampon pour les couches suivantes. Cette méthode exige de déposer une épaisseur relativement importante d'alliage, car la différence de paramètre de maille entre le MgO et l'alliage perturbe la mise en ordre cristallographique sur quelques dizaines de nanomètres.

En fin de croissance, l'échantillon est généralement recouvert d'une fine (2 à 3 nm) couche de protection de Palladium ou de Platine, déposé à température ambiante.

Récemment, Anthony Meunier a montré la possibilité d'épitaxier l'alliage FePd sur un substrat de Silicium, grâce à une couche intermédiaire en siliciure de Fer [11].

1.2.3 Structure de l'alliage et conditions de croissance

Les conditions de croissance conditionnent la structure de l'alliage. Le cas du FePd est étudié dans les thèses de Véronique Géhano [4] et de David Halley [5].

La mise en ordre $L1_0$ des alliages équiatomiques de FePd et de CoPt est cinétiquement bloquée à température ambiante. Les couches d'alliage élaborées en codéposition à température ambiante adoptent donc la structure cristallographique A1, désordonnée chimiquement.

Au delà d'une certaine température de transition, de l'ordre de 350°C dans le FePd et le CoPt, la cinétique de mise en ordre est suffisamment rapide pour agir au cours du dépôt. On obtient alors un alliage de structure $L1_0$, dont la qualité augmente très vite après la température de transition avant de se stabiliser. En déposant l'alliage à 500°C, on obtient une mise en ordre de très bonne qualité, comme nous le verrons plus loin.

On peut aussi favoriser la mise en ordre après le dépôt, en recuisant l'échantillon. Cela nécessite des recuits relativement longs, car la cinétique est plus lente dans la couche qu'à sa surface lors du dépôt, et on obtient les trois variants dans les mêmes proportions [9].

On peut favoriser l'ordre $L1_0$ par la méthode de dépôt couche par couche. On obtient ainsi une mise en ordre partielle, même à température ambiante. Les dépôts couche par couche peuvent être pilotés soit par les oscillations d'intensité de RHEED, soit simplement grâce à la calibration des flux d'évaporation. La mise en ordre est meilleure dans le premier cas [4].

1.2.4 Composition des bicouches et tricouches de FePd

Nous présentons ici une série d'échantillons qui seront étudiés par diverses méthodes dans ce document. Il s'agit de "bicouches" et de "tricouches" de FePd, c'est-à-dire d'empilements de deux ou trois couches minces de FePd.

Les couches minces de FePd constituant ces échantillons, de 10 ou 30 nm chacune, sont obtenues en épitaxie par codépôt. La température de croissance change d'une couche à une autre, afin d'obtenir des propriétés structurales et magnétiques différentes et d'étudier leur couplage. Certaines couches sont déposées à température ambiante, favorisant ainsi la structure isotrope A1, d'autres sont déposées à 400°, afin d'obtenir la structure tétragonale $L1_0$ avec le variant perpendiculaire. Dans certains échantillons à 3 couches, des couches intermédiaires de Palladium de 2 nm ont été introduites entre les couches de FePd.

La Figure 1.3 présente la structure générale de ces échantillons. Leur composition exacte est récapitulée dans le Tableau 1.1.

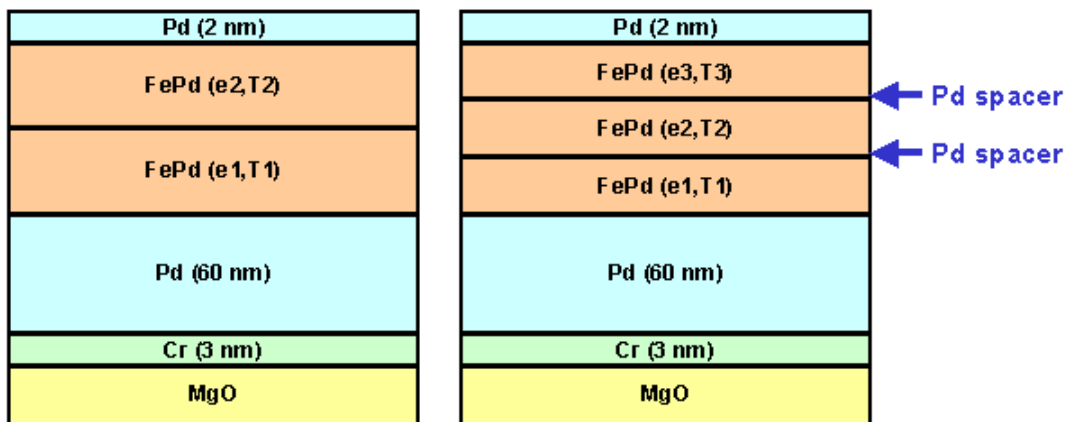


FIG. 1.3 – Schéma de la composition des échantillons de bicouches et tricouches de FePd.

Echantillon	T_1	e_1	Espaceur	T_2	e_2	Espaceur	T_3	e_3	e_{tot}
B1	20	30	-	400	30	-	-	-	60
B2	20	10	-	400	30	-	-	-	40
B3	20	10	-	400	10	-	-	-	20
B4	20	30	-	400	10	-	-	-	40
B5	400	30	-	20	10	-	-	-	40
B6	400	30	-	20	30	-	-	-	60
T1	20	10	-	400	20	-	20	10	40
T2	20	10	-	400	10	-	20	10	30
T3	20	10	2	400	20	2	20	10	44
T4	20	10	2	400	10	2	20	10	34

TAB. 1.1 – Composition des bicouches et tricouches de FePd étudiées : températures de croissance T_i ($^{\circ}\text{C}$), épaisseurs nominales e_i (nm), pour chaque couche i et l'épaisseur nominale totale e_{tot} . Voir Fig. 1.3 pour l'indice des couches.

Parmi les bicouches, quatre sont déposées avec la couche à température ambiante en premier et la couche à haute température ensuite. Les deux autres bicouches sont déposées dans l'ordre inverse. Les tricouches sont des sortes de "sandwichs" magnétiques, dans lesquels la couche de structure $L1_0$ est entourée de deux couches de structure $A1$.

Cette étude a été amorcée par la thèse de Karine Chesnel [3], dans laquelle on trouvera un début de l'étude présentée ici.

1.3 Diffraction de rayons X

La diffraction de rayons X, aux grands angles, permet de sonder la structure cristallographique des échantillons. On mesure ainsi les paramètres des différentes mailles grâce à la position des pics.

Pour un cristal de maille cubique à faces centrées, les pics de diffraction de type $0\ 0\ 2n+1$ sont "éteints". C'est le cas des alliages FePd et CoPt désordonnés. Dans les alliages ordonnés chimiquement, la symétrie cubique à faces centrées est brisée, ce qui donne lieu à des pics dits de surstructure, par opposition aux pics fondamentaux. Ainsi, dans le cas de la structure $L1_0$ de variant perpendiculaire à la couche, on observe par des balayages " $\theta - 2\theta$ " les pics de surstructure 001 et 003, que l'on compare aux pics fondamentaux 002 et 004. Les pics d'ordre supérieur ne sont pas accessibles aux longueurs d'onde utilisées ($\lambda = 1.79\ \text{\AA}$ pour la raie $K_{\alpha 1}$ de notre générateur à anode de Cobalt).

Les intensités relatives des pics de surstructures et des pics fondamentaux permet de quantifier le degré d'ordre à longue distance dans l'alliage. Ce critère est intéressant pour l'évaluation des propriétés magnétiques des échantillons, car il donne une indication sur l'ordre chimique local, qui est responsable de l'anisotropie magnéto-cristalline. En première approximation, on peut estimer que l'anisotropie magnéto-cristalline varie linéairement avec l'ordre à longue distance. Toutefois, des mesures d'EXAFS (Extended X-Ray Absorption Fine Structure) sur des couches de FePd ont montré que cette approximation sous-estimait l'anisotropie magnéto-cristalline [12].

1.3.1 Mesure de l'ordre à longue distance

Dans le cas particulier de la structure $L1_0$ composée de 2 espèces chimiques A et B en proportions 50-50, et si seul le variant perpendiculaire est présent, les intensités diffractées des pics (001) et (002) s'écrivent :

$$I_{001} = S^2 L(\theta_{001}) P(\theta_{001}) A(\theta_{001}) DW(\theta_{001}) |f_A - f_B|^2$$

$$I_{002} = L(\theta_{002}) P(\theta_{002}) A(\theta_{002}) DW(\theta_{002}) |f_A + f_B|^2$$

- S est le paramètre d'ordre à longue distance.
- f_A et f_B sont les facteurs de diffusion atomiques (partie imaginaire incluse) des espèces A et B .
- $L(\theta) = \frac{1}{\sin 2\theta}$ est le facteur de Lorentz, qui décrit la vitesse à laquelle on parcourt la sphère d'Ewald.
- $P(\theta) = \frac{1}{4} (1 + \cos^2 2\theta \cos^2 2\alpha) (1 + \cos^2 2\alpha)$ est le facteur de polarisation. α est l'angle de réflexion utilisé par le monochromateur (13.29° pour notre monochromateur de Graphite, utilisé dans sa réflexion (111)). La réflexion par le monochromateur a pour effet de polariser partiellement le faisceau.
- $A(\theta) = \frac{1}{\mu} (1 - \exp(-2\mu h / \sin \theta))$ est le facteur d'absorption, où h est l'épaisseur totale et μ le coefficient d'absorption linéaire. Dans le cas d'une couche mince d'une centaine de nanomètres, l'absorption est négligeable à ces longueurs d'onde et le facteur d'absorption se réduit à un terme proportionnel à la surface éclairée : $A(\theta) \approx \frac{2}{\sin \theta}$
- $DW(\theta) = \exp\left(-\frac{2B}{\lambda^2} \sin^2 \theta\right)$ où B est le facteur de Debye Waller.

On déduit ainsi le paramètre d'ordre à longue distance, par le rapport I_{001}/I_{002} . Les intensités doivent être intégrées dans l'espace réciproque, au moyen de balayages " $\theta - 2\theta$ " et de balayages transverses en θ ("rocking curves"), le détecteur étant fixe. Localement, ces 2 types de balayages suivent des directions perpendiculaires dans l'espace réciproque.

1.3.2 Ordre dans l'alliage FePd

La Figure 1.4 présente des balayages " $\theta - 2\theta$ " pour 3 échantillons d'alliages FePd :

1. Une couche de FePd de 45 nm déposée couche atomique par couche atomique à température ambiante, en alternant les dépôts de Fer et de Palladium. C'est l'échantillon étudié au chapitre §6. Son ordre chimique est partiel : les plans atomiques de Fe et de Pd ne sont pas parfaitement purs et alternés. Les pics de surstructure 001 et 003 sont faibles par rapport aux pics fondamentaux.
2. Une couche de FePd de 18 nm codéposée à 500°C . Son ordre chimique est très bon ($S \approx 0.9$), la structure cristallographique est majoritairement $L1_0$. Les pics de surstructure sont intenses. Le pic de FePd 004 est hors champ car la bonne mise en ordre induit une compression du paramètre de maille perpendiculaire de 3.80 \AA à 3.72 \AA . La largeur des "rocking curves" révèle une mozaïcité dans l'alliage et dans la couche tampon plus élevée que dans les deux autres échantillons. Ceci s'explique par la plus faible épaisseur de la couche tampon (ici du Platine). La mozaïcité de l'alliage est induite par la couche tampon.
3. La bicouche B1, qui consiste en deux couches de FePd de 30 nm, la première déposée à température ambiante et la seconde déposée à 400° . Les pics de surstructure 001 et 003 sont dus à la mise en ordre $L1_0$ dans la couche déposée à 400° . L'épaule visible sur le pic fondamental 004 révèle la différence de paramètre de maille entre les deux couches.

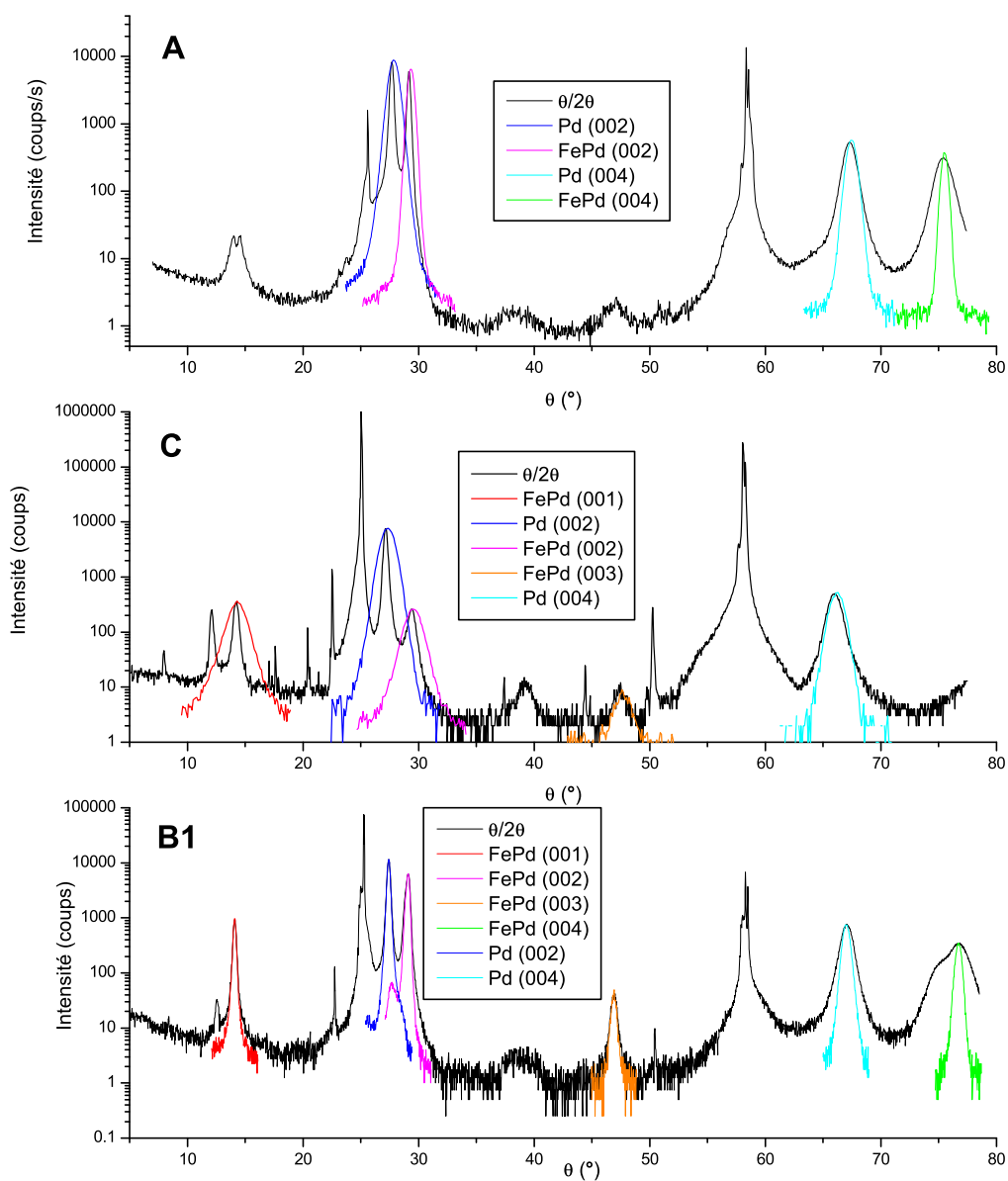


FIG. 1.4 – Balayage " $\theta - 2\theta$ " pour différents alliages de FePd : une couche de 45 nm déposée couche par couche à température ambiante (A), une couche de 18 nm déposée par co-dépôt à 500° (C), et la bicouche B1, comprenant une couche co-dépôtée à température ambiante (30 nm) et une couche co-dépôtée à 400° (30 nm). Les "rocking curves" sur les pics sont en couleur.

Pour une étude complète de l'ordre chimique dans le FePd en fonction des conditions de dépôts, on se référera aux thèses de Véronique Gehanno [4] et de David Halley [5].

1.4 Réflectivité de rayons X

En condition de réflexion spéculaire, les rayons X ne sont sensibles qu'à la structure verticale des échantillons. Ils sont extrêmement sensibles aux interfaces optiques. Les différentes interfaces créent des oscillations d'intensité (dites "franges de Kiessig"). Avec des rayons X durs, on peut dans les meilleurs cas caractériser les épaisseurs des couches avec une précision de l'ordre du plan atomique.

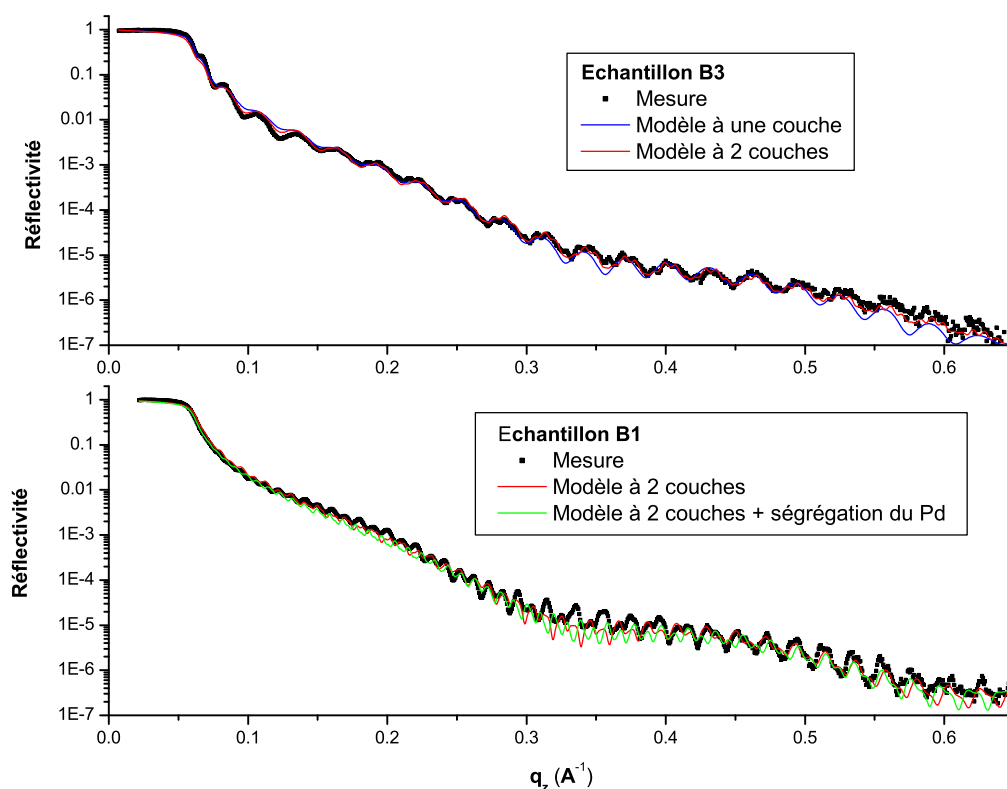


FIG. 1.5 – Réflectivité des échantillons B1 et B3.

Nous avons mesuré la réflectivité des bicouches B1 et B3 en utilisant le faisceau intense délivré par une anode tournante (Fig. 1.5). La raie utilisée est la raie $K\alpha_1$ du Cuivre ($E = 8047$ eV, $\lambda = 1.541$ Å).

Les données ont été analysées en utilisant le logiciel libre "Parratt32", développé par Christian Braun (Hahn Meitner Institut). Le modèle utilisé repose sur la théorie optique des médias stratifiés, telle que décrit par Parratt [13]. Les rugosités des interfaces sont prises en compte selon le modèle de Croce et Névot [14, 15].

Nous avons ainsi pu évaluer l'épaisseur des différentes couches de ces échantillons. Ces valeurs sont en assez bon accord avec les valeurs nominales (Tab. 1.2).

La réflectivité de l'échantillon B3 ne présente pas d'oscillations dont la période correspondrait à l'une des deux couches de FePd. L'interface entre les deux couches est invisible pour les rayons X, car la différence de densité électronique entre la couche ordonnée et la couche désordonnée n'est que de l'ordre du demi pourcent. On reproduit d'ailleurs assez bien la mesure en considérant les deux couches comme une couche unique. La répartition de l'épaisseur totale entre les deux couches, donnée par l'ajustement avec deux couches, n'est probablement pas significative.

Au contraire, la réflectivité de l'échantillon B1 présente clairement des oscillations dues à une interface entre les deux couches de FePd. Cette interface peut être due à la ségrégation en surface des atomes de Palladium pendant le chauffage précédant le dépôt de la deuxième couche. Une autre possibilité est la légère différence de densité des structures A1 et $L1_0$, qui se répercute sur l'indice optique. Il est impossible de reproduire cette mesure sans prendre en compte deux couches de densité légèrement différentes ni introduire une fine couche intermédiaire de Palladium. L'épaisseur de celle-ci est ajustée à 7 Å. On reproduit cependant mieux les données avec le modèle à deux couches en introduisant une différence de densité de 7%. La couche la plus dense est la couche de FePd $L1_0$, qui est aussi légèrement plus fine.

Echantillon	Pd		FePd A1		FePd $L1_0$		Pd	
	N	RX	N	RX	N	RX	N	RX
B1	60	59.72	30	28.95	30	28.18	2.5	2.00
B3	60	60.91	10	9.97	10	8.57	2.5	1.84

TAB. 1.2 – Epaisseurs nominales (N) et déduites des courbes de réflectivité de rayons X (RX) des couches constituant B1 et B3. Les résultats présentés dans ce tableau sont ceux du modèle à 2 couches de FePd, sans ségrégation de Pd à l'interface. Les valeurs sont données en nanomètres.

Chapitre 2

Propriétés magnétiques

2.1 Généralités sur les alliages ferromagnétiques

Les alliages de FePd et de CoPt possèdent une forte aimantation à saturation : $M_s = 1030$ emu/cm³ pour le FePd [16] et $M_s = 780$ emu/cm³ pour le CoPt [17].

Cette aimantation est due principalement à l'élément magnétique ($2.2 \mu_B$ /atome pour le Fe et $1.7 \mu_B$ /atome pour Co), mais aussi à la contribution du Pd et du Pt, qui portent un moment magnétique induit significatif : $0.65 \mu_B$ /atome pour le Pd dans le FePd [18] et $0.35 \mu_B$ /atome pour le Pt dans le CoPt [17].

L'organisation des moments magnétiques dans l'alliage résulte de la compétition entre le champ démagnétisant, les interactions d'échange, et l'éventuelle anisotropie magnétique.

Dans une couche de structure A1, les trois directions cristallographiques sont équivalentes, et le champ démagnétisant s'oppose à l'orientation des moments magnétiques dans la direction de l'axe de croissance. Les moments magnétiques se couchent donc dans l'une des quatre directions cristallographiques planaires.

Dans les alliages ordonnés chimiquement, l'anisotropie de la maille cristalline est conjuguée à une anisotropie magnétique : on parle d'anisotropie magnéto-cristalline. Dans la structure $L1_0$, l'axe de facile aimantation est l'axe de déformation tétragonale. Le processus de croissance (cf. §1.2.2) permet d'obtenir uniquement le variant perpendiculaire dans le FePd et le CoPt, ce qui confère à l'alliage une anisotropie magnétique perpendiculaire.

Quand l'ordre chimique local $L1_0$ est suffisamment important, l'anisotropie magnétique perpendiculaire favorise l'orientation des moments magnétiques hors du plan. La compétition entre anisotropie magnétique perpendiculaire et champ démagnétisant mène à la formation de domaines magnétiques perpendiculaires, dans lesquels l'aimantation pointe alternativement vers le haut et le bas de la couche (on parlera par la suite de domaines d'aimantation «up» et «down»).

Cet état d'équilibre ou un état assez proche est facilement obtenu en absence de champ magnétique extérieur dans les matériaux dont la rémanence est faible, ce qui est le cas des alliages $L1_0$ de FePd et de CoPt. Au contraire, l'alliage $L1_0$ de FePt est $\sim 100\%$ rémanent, ce qui fait de lui un matériau très étudié en vue des applications pour l'enregistrement magnétique. Dans ces matériaux rémanents (même partiellement), des procédures de démagnétisation doivent être appliquées pour obtenir l'état d'équilibre avec alternance de domaines. Notons que l'état obtenu à la croissance est généralement assez proche de cet état d'équilibre.

Si l'anisotropie magnétique perpendiculaire est assez forte, l'aimantation dans les domaines

atteint la direction perpendiculaire. On obtient généralement une configuration isotrope de domaines entrelacés.

Dans le cas contraire, l'anisotropie magnétique ne parvient pas à redresser les moments magnétiques perpendiculairement au plan de la couche. Il reste alors une composante planaire de l'aimantation, qui induit une anisotropie dans l'orientation des domaines. On observe alors une configuration dite "en rubans faibles", dans laquelle les domaines s'organisent en rubans plus ou moins bien alignés, selon l'anisotropie magnétique.

On trouvera une étude détaillée dans la thèse de Véronique Géhanno [4] des conditions de formation, de la forme et de la taille des domaines magnétiques dans les couches de FePd.

Nous allons dans ce chapitre décrire les techniques de caractérisation magnétique en les illustrant par des résultats sur la série d'échantillons de bicouches et tricouches de FePd.

2.2 Configuration des domaines magnétiques

2.2.1 Principe de la microscopie à force magnétique

Le principe de la microscopie de champ proche repose sur l'interaction d'une sonde de taille nanométrique avec la surface de l'échantillon. Les forces qui émanent de cette surface (van der Waals, capillarité, magnétique, électrostatique, etc.) perturbent la sonde et la déplacent de sa position d'équilibre. Cette perturbation, détectée et asservie par une électronique de régulation, constitue le signal de base de la microscopie de champ proche.

La Microscopie à Effet Tunnel (*Scanning Tunneling Microscopy* en anglais, STM) sonde la surface à l'échelle nanométrique en asservissant le courant tunnel qui circule entre la sonde et la surface. La dépendance exponentielle du courant avec la distance sonde-surface fournit à cet instrument une résolution atomique exceptionnelle, car en première approximation seul l'atome situé à l'extrémité de la sonde interagit avec la surface. La microscopie STM a ainsi permis d'observer les micromacles sur une surface de FePd codéposé sur Pd(001) [19].

Dans le cas de la microscopie à force atomique (*Atomic Force Microscopy*, AFM), développée en 1986, les forces ne sont que faiblement dépendantes de la distance. Il s'agit donc d'employer une pointe la plus effilée possible afin de limiter l'aire d'interaction et d'augmenter la résolution. Si elle n'atteint pas facilement la résolution atomique, l'AFM en revanche n'est pas limitée par la nature conductrice ou isolante de la surface. De plus, le STM sonde uniquement les densités électroniques au niveau de Fermi de la surface, tandis que l'AFM peut aussi bien sonder la topographie que les propriétés physiques des matériaux, tant à l'air qu'en ultra-vide ou encore en milieu liquide. L'AFM est utilisée selon deux modes différents : le mode "contact", dans lequel la pointe suit la surface au contact, en régulant sa hauteur par la déflexion de la pointe, et le mode "tapping", dans lequel la pointe oscille à la fréquence de résonance du levier. Il existe plusieurs modes de régulation qui dépendent du facteur de qualité du levier dans son environnement (air ou vide). Classiquement à l'air, le mode le plus sensible est de fixer une consigne de régulation sur l'amplitude de vibration et en UHV une régulation sur la fréquence de résonance.

La Microscopie à Force Magnétique (MFM) découle d'une utilisation particulière de l'AFM avec une pointe couverte d'un matériau magnétique dur. Cette technique consiste à mesurer le champ de fermeture lié aux domaines. Plus précisément, les oscillations verticales de la pointe en mode tapping sont sensibles principalement au gradient spatial de la composante verticale de ce champ ($\vec{\nabla}B_z$). Cette mesure est faite en mode "lift", qui consiste à effectuer deux passages à la surface de l'échantillon : un premier en mode tapping enregistre la topographie de surface, puis

la pointe est relevée et effectue un deuxième balayage à altitude constante (quelques dizaines de nm) au dessus du profil enregistré (Fig. 2.1). La régulation du deuxième balayage se fait en fréquence, et le décalage de fréquence enregistré est fonction de l'interaction à grande distance entre les dépôts magnétiques de la couche et de la pointe. Ce mode de détection permet de décorrélérer les forces à courtes distances de la topographie du champ magnétique vertical.

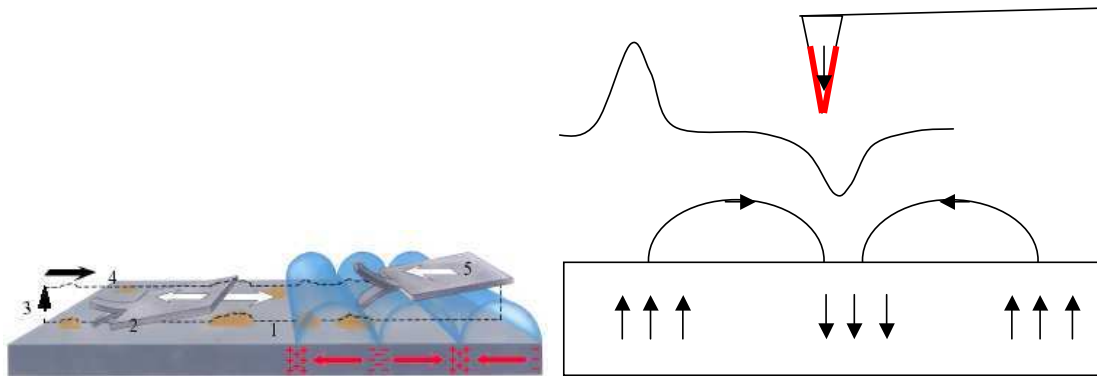


FIG. 2.1 – Schéma de principe de la Microscopie à Force Magnétique. En survolant l'échantillon à hauteur constante, la pointe aimantée subit l'influence des champs de fuite de l'échantillon, qui modifient sa fréquence d'oscillation.

La résolution théorique du MFM est de 10 à 20 nm, pourvu que la pointe soit bien aiguë. A quelques exceptions près, les images MFM présentées dans ce manuscrit ont été faites avec des pointes AFM sur lesquelles nos collaborateurs de Spintec ont déposé une multicouche de Co/Pt ou de Co/Cr. Il est probable que ces pointes faites "maison" n'aient pas une si bonne résolution, ce qui n'est pas gênant tant que la taille caractéristique des domaines n'est pas trop petite, l'idéal étant d'avoir une résolution au moins inférieure à la moitié de cette taille caractéristique.

La MFM ne mesure que la composante perpendiculaire du champ de fuite. Outre le fait que l'on n'a pas d'information sur les deux autres composantes, la MFM ne mesure pas l'aimantation dans le volume, contrairement, par exemple, aux microscopies Kerr et de Lorentz.

Son avantage réside dans la relative facilité de mise en oeuvre, qui en fait un outil de caractérisation rapide et pratique.

2.2.2 Observation de domaines magnétiques dans le FePd

La Figure 2.2 présente les configurations magnétiques des bicouches et tricouches dans l'état de dépôt, observées en MFM.

Forme des domaines magnétiques

On constate que seul l'échantillon B4 ne présente pas de domaines magnétiques à aimantation perpendiculaire. Dans cet échantillon, la couche d'alliage désordonné est suffisamment épaisse (30 nm) par rapport à la couche ordonnée (10 nm) pour forcer l'aimantation dans le plan. La composante perpendiculaire oscillante, si elle existe, est trop faible pour être mesurée en MFM.

Les 5 autres bicouches présentent des domaines d'aimantation perpendiculaire. Lorsque la couche désordonnée est déposée la première, les domaines forment des rubans bien rectilignes, alors que les domaines des deux autres échantillons sont entrelacés de manière isotrope. Dans le premier cas, la couche ordonnée subit l'influence de la couche désordonnée au cours du dépôt :

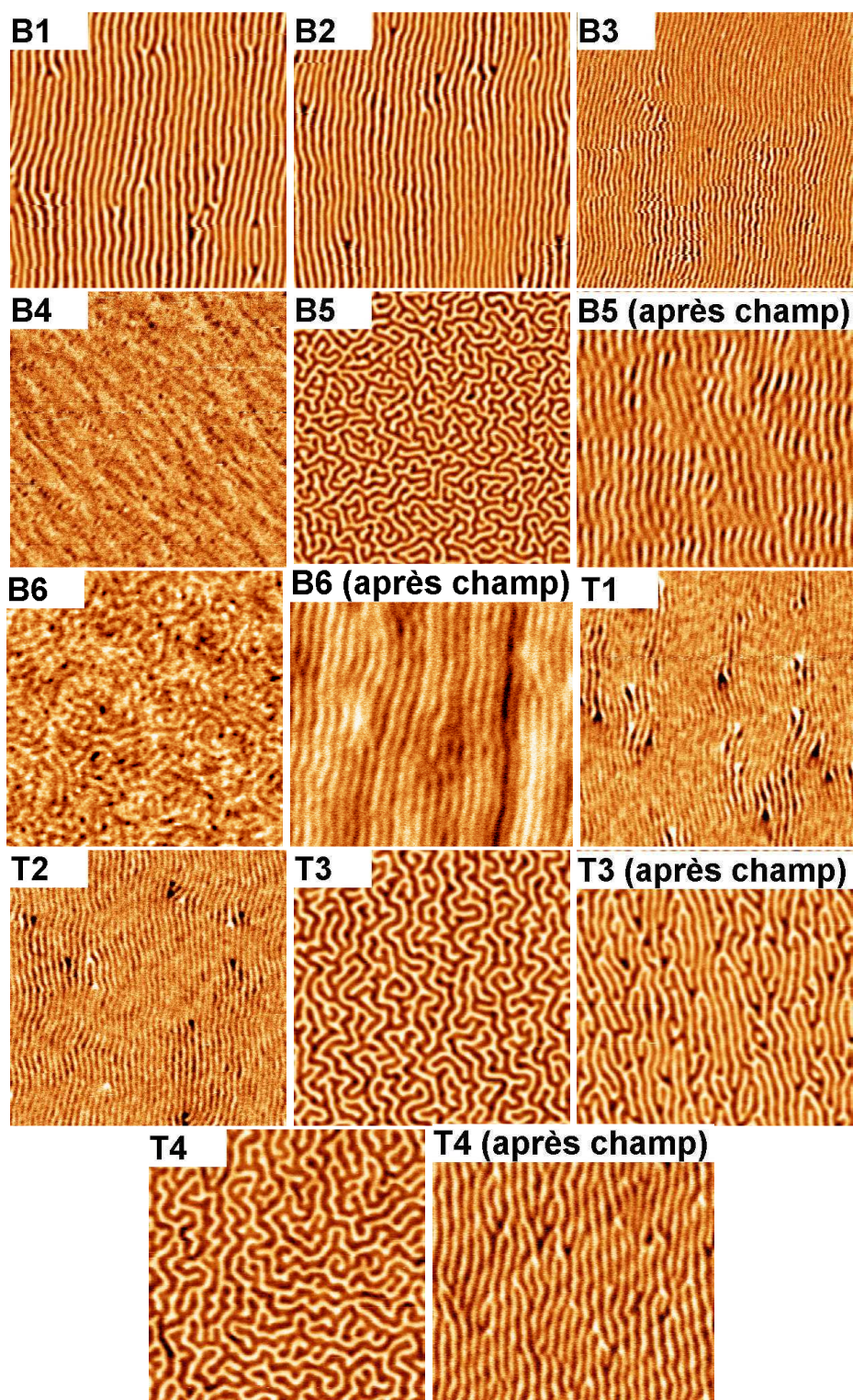


FIG. 2.2 – Images MFM $4\ \mu\text{m} \times 4\ \mu\text{m}$ des bicouches et tricouches dans l'état de dépôt, et après application d'un champ planaire saturant pour ceux dont la configuration initiale est en domaines entrelacés.

les domaines perpendiculaires se forment et s'alignent simultanément au cours de la croissance. Dans le deuxième cas, les domaines perpendiculaires de la couche ordonnée se forment sans contrainte d'orientation. Une fois les domaines formés, la couche désordonnée, dont l'aimantation est préférentiellement dans le plan, ne parvient pas à modifier la configuration des domaines.

Dans le cas des tricouches, le même phénomène explique l'alignement des domaines dans les échantillons $T1$ et $T2$. On remarque également que l'échantillon $T1$ présente plus de "fourches" que l'échantillon $T2$: l'effet de l'anisotropie magnétique est plus important dans $T1$ que dans $T2$, car l'épaisseur de la couche ordonnée est plus grande. La composante planaire de l'aimantation, qui assure la direction des rubans grâce au couplage dipolaire avec la couche à aimantation planaire, est alors diminuée. Les couches intermédiaires de Palladium déposées dans les échantillons $T3$ et $T4$ diminuent suffisamment le couplage dipolaire entre la couche ordonnée et les couches désordonnées pour que les domaines ne s'alignent pas au cours du dépôt.

Les échantillons dont la configuration magnétique initiale formait des rubans entrelacés ont été soumis à un champ planaire saturant. Cela a pour effet d'orienter la composante planaire non périodique de l'aimantation, qui est importante grâce à la couche désordonnée. Cela permet d'aligner les domaines, comme le montrent les images MFM.

Remarquons que les contrastes d'intensité reflètent le degré d'anisotropie global de l'échantillon. En effet, l'anisotropie magnétique perpendiculaire favorise l'orientation des moments magnétiques hors du plan, ce qui augmente le champ de fuite.

Taille des domaines magnétiques

Echantillon	Configuration	p_{mag}	p'_{mag}	P_{GL_FFT}
B1	Rubans parallèles	133 nm		134 nm
B2	Rubans parallèles	107 nm		115 nm
B3	Rubans parallèles	85 nm		83 nm
B4	Pas de domaines			64 nm
B5	Domaines entrelacés	133 nm	145 nm	115 nm
B6	Domaines entrelacés	150 nm	154 nm	134 nm
T1	Rubans parallèles	105 nm		112 nm
T2	Rubans parallèles	92 nm		102 nm
T3	Interlaced domains	172 nm	151 nm	141 nm
T4	Interlaced domains	192 nm	157 nm	134 nm

TAB. 2.1 – Caractéristiques des domaines magnétiques dans les bicouches et tricouches de FePd. La période magnétique moyenne p_{mag} est évaluée à partir des images MFM. Pour les échantillons à domaines entrelacés, l'application d'un champ planaire saturant permet d'aligner les domaines. On mesure en MFM leur nouvelle période magnétique p'_{mag} . La dernière période est la période d'équilibre déterminée par le code GL_FFT (cf. §2.4).

La période magnétique p_{mag} des échantillons a été mesurée à partir d'images MFM généralement plus grandes que celles présentées sur la Figure 2.2, afin d'obtenir une mesure la plus proche possible de la période moyenne des l'échantillons. p_{mag} est reportée dans le Tableau 2.1. Dans le cas des domaines entrelacés, il s'agit du double de la largeur caractéristique des domaines. La période magnétique de ces échantillons a également été mesurée après alignement des domaines (p'_{mag}).

Les périodes s'étendent de 85 à 192 nm et sont globalement croissantes avec l'épaisseur totale de FePd. Dans le cas des tricouches $T3$ et $T4$, la période magnétique est grande car la couche

anisotrope est découplée des deux autres. Or, en-dessous d'une certaine épaisseur critique, la période des domaines dans le FePd $L1_0$ augmente rapidement quand l'épaisseur diminue [16].

Les échantillons $B1$ et $B6$ d'une part, $B2$ et $B5$ d'autre part, sont constitués des mêmes épaisseurs nominales d'alliage ordonné et d'alliage désordonné, mais déposés dans l'ordre inverse. On constate que les domaines entrelacés de $B5$ et $B6$ sont plus larges que les domaines alignés obtenus dans $B1$ et $B2$. Il est probable que la taille des domaines obtenus lors de la croissance soit hors équilibre, car leur formation commence lors des premiers stades de dépôt de la couche ordonnée [20]. Ainsi, dans le cas de $B1$ et $B2$, les domaines se forment alors que la couche désordonnée (respectivement 10 et 30 nm) est déjà déposée, ce qui permet la formation de domaines dont la taille est caractéristique des couches de FePd de plus de 10 nm. Les domaines ainsi formés grandissent lors du dépôt, mais sans atteindre leur taille d'équilibre. Dans le cas de $B5$ et $B6$, la couche ordonnée est déposée la première, et les domaines se forment alors dans une couche relativement fine, ce qui favorise la formation de domaines assez gros (de l'ordre du micron) dont la taille diminue ensuite, mais sans atteindre non plus la taille d'équilibre.

2.3 Magnétométrie

2.3.1 Anisotropie magnétique perpendiculaire

L'anisotropie magnétique perpendiculaire conditionne la réponse des moments magnétiques dans l'alliage quand l'échantillon est soumis à un champ magnétique extérieur, soit perpendiculaire, soit planaire.

L'anisotropie magnétique perpendiculaire dans le FePd est uniaxiale. On modélise assez bien la dépendance angulaire de l'énergie volumique d'anisotropie magnétique par :

$$E_K = K_u \sin^2 \alpha$$

K_u est la constante d'anisotropie magnétique et α est l'angle entre le moment magnétique et l'axe de facile aimantation. Des modèles plus raffinés incluent des termes d'ordre pair supérieur.

Dans un modèle d'aimantation uniforme, on peut considérer que l'énergie volumique "magnétique" est la somme des contributions de l'énergie dipolaire, de l'énergie d'anisotropie, et de l'énergie Zeeman :

$$E_{mag} = 2\pi M_s^2 \cos^2 \alpha + K_u \sin^2 \alpha - HM_s \cos \beta \quad (2.1)$$

où β est l'angle entre l'aimantation et le champ appliqué H .

A champ nul, l'orientation des moments magnétiques est donc déterminée par le facteur de qualité Q défini par :

$$Q = \frac{K_u}{2\pi M_s^2}$$

Dans ce modèle simple, la position d'équilibre est soit dans le plan, si $Q < 1$, soit perpendiculaire au plan, si $Q > 1$. Bien sûr, la situation réelle est plus complexe, mais le facteur de qualité Q permet de décrire relativement bien le comportement de l'alliage à champ nul. A $Q = 0$, les moments magnétiques sont tous dans le plan de la couche. Quand $0 < Q < 1$, et si l'épaisseur d'alliage est supérieure à une certaine épaisseur critique, l'aimantation oscille autour d'une position moyenne située dans le plan de la couche, et le redressement maximal dans un domaine augmente avec Q . Quand $Q > 1$, l'aimantation dans les domaines atteint la direction perpendiculaire («up» ou «down») et la taille des domaines de fermeture diminue quand Q augmente [21].

Comme K_u est une énergie volumique, on peut évaluer une constante d'anisotropie théorique globale pour un empilement de couches par la moyenne des constantes d'anisotropie pondérée par les épaisseurs des différentes couches. Dans les bicouches et les tricouches de FePd, l'aimantation à saturation est du même ordre dans les deux types d'alliages. On peut donc définir un coefficient de qualité moyen :

$$Q_m = \frac{\sum_i e_i Q_i}{\sum_i e_i}$$

En se basant sur des valeurs de Q connues dans les monocouches de FePd, c'est-à-dire $Q = 0$ pour l'alliage déposé à température ambiante et $Q \approx 1.8$ pour l'alliage déposé à 400°C, on calcule ainsi une valeur théorique Q_m dans les bicouches et les tricouches.

Le coefficient de qualité moyen permet d'apprécier le comportement global de l'échantillon. Nous allons voir comment l'évaluer par des mesures de magnétométrie.

2.3.2 Cycles d'aimantation

Nous avons mesuré les cycles d'aimantation des bicouches et des tricouches de FePd sous champs magnétiques planaire et perpendiculaire (Fig. 2.3).

La méthode utilisée est la magnétométrie à échantillon vibrant (*Vibrating Sample Magnetometry*, VSM), qui consiste à faire vibrer l'échantillon dans une bobine. Le moment magnétique porté par l'échantillon, en vibrant dans la bobine, crée une force électro-motrice alternative induite. Elle est mesurée par détection synchrone. On accède ainsi directement au moment magnétique de l'échantillon. Si l'on connaît bien la quantité de matière, on peut remonter à l'aimantation. Le dispositif que nous avons utilisé dispose d'un cryoaimant qui peut délivrer un champ magnétique jusqu'à 7 Teslas. En pratique, 2 ou 3 Teslas suffisent à saturer le FePd, dans le plan ou perpendiculairement au plan.

Les courbes d'aimantation sous champ magnétique planaire comportent toutes une pente raide lorsque le champ appliqué change de signe, ce qui correspond au retournement de la couche magnétique douce (l'alliage désordonné). La hauteur relative du saut par rapport à l'aimantation à saturation correspond assez bien à l'épaisseur relative de la couche douce par rapport à l'épaisseur totale de FePd. En outre, le retournement en bloc de l'aimantation dans l'échantillon B4 confirme que la couche douce impose une aimantation planaire dans cet échantillon, ce qui empêche la formation de domaines d'aimantation perpendiculaire.

Les mesures sous champ perpendiculaire mettent en évidence un changement de pente (sauf pour B4) qui correspond à la saturation de la couche dure, plus facile à saturer hors du plan que la couche douce. La facilité à saturer cette couche est en bon accord avec les épaisseurs relatives d'alliage ordonné et d'alliage désordonné. On remarque, en comparant les cycles de T1 et de T3 d'une part, de T2 et de T4 d'autre part, que la saturation de la couche ordonnée est plus facilement atteinte en présence de couches intermédiaires de Pd, ce qui confirme que ces couches affaiblissent le couplage entre la couche ordonnée et les couches désordonnées.

Mesure de l'anisotropie magnétique perpendiculaire

En comparant les cycles d'aimantation en champ planaire et en champ perpendiculaire pour un échantillon, on peut évaluer son anisotropie magnétique moyenne. En effet, d'après le modèle d'aimantation uniforme 2.1, l'énergie magnétique dans les états saturés perpendiculairement et dans le plan s'écrivent respectivement :

$$E_{mag}^{\perp} = 2\pi M_s^2 - HM_s$$

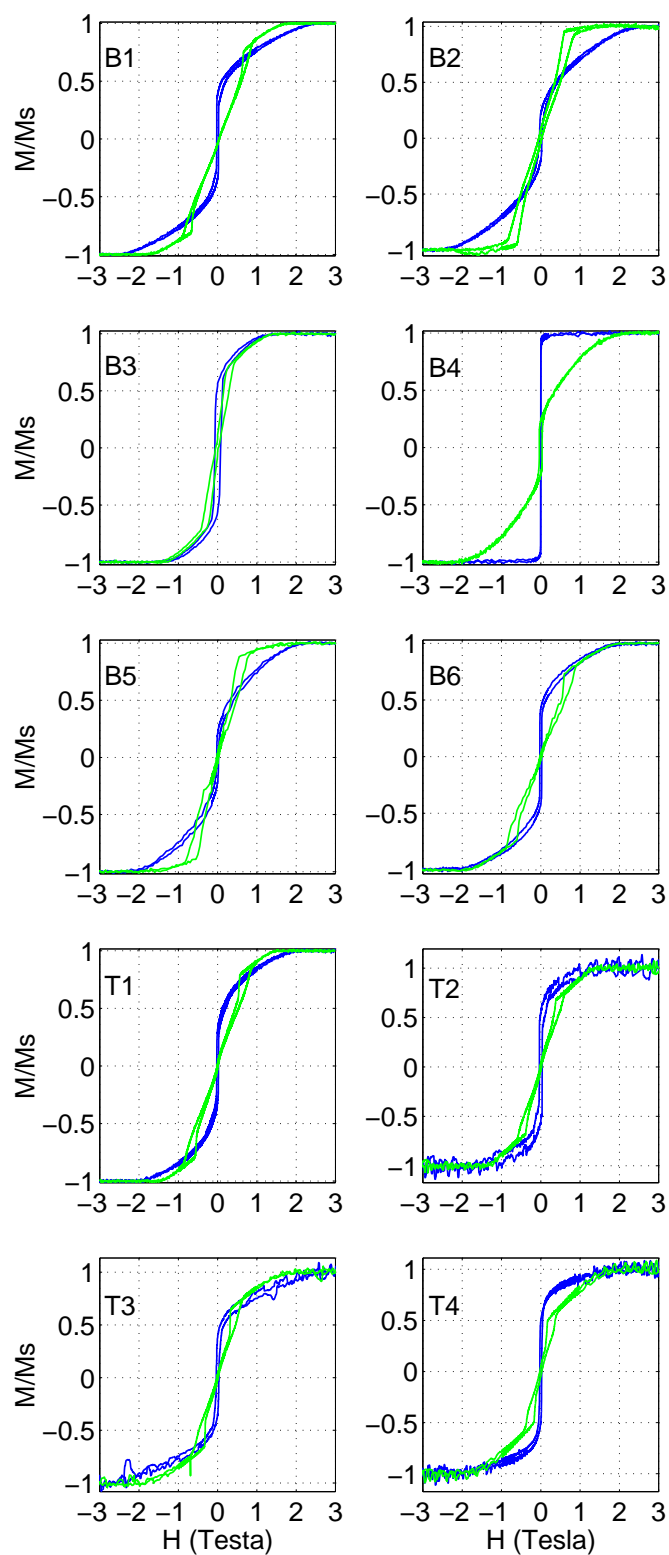


FIG. 2.3 – Cycles d'aimantation des bicouches et tricouches de FePd sous champs magnétiques planaire (en bleu) et perpendiculaire (en vert)

$$E_{mag}^{//} = K_u - HM_s$$

La différence d'énergie entre les deux états saturés s'écrit alors (en choisissant un champ appliqué qui sature l'échantillon dans les deux géométries) :

$$\Delta E_{mag}^{sat} = K_u - 2\pi M_s^2$$

Or l'énergie qu'il faut apporter pour faire un petit changement d'état magnétique est HdM , de sorte que la différence d'énergie entre un état saturé et l'état démagnétisé est $\int_0^{M_s} HdM$. La différence d'énergie magnétique entre les deux états saturés est donc :

$$\Delta E_{mag}^{sat} = \int_0^{M_s} (H_{\perp} - H_{//}) dM$$

C'est donc l'aire entre les deux courbes d'aimantation (Fig. 2.4). En supposant connus M_s et les épaisseurs, on évalue ainsi la valeur moyenne de K_u , et on en tire une estimation Q_{vsm} du facteur de qualité global.

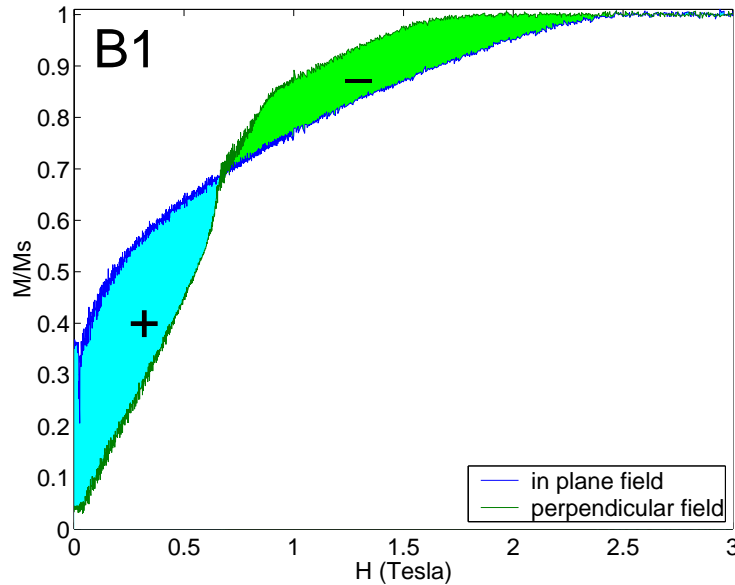


FIG. 2.4 – Evaluation de l'anisotropie magnétique globale par intégration des courbes d'aimantation. Exemple de l'échantillon B1

Les valeurs Q_{vsm} évaluées par cette méthode, et les valeurs attendues Q_m sont rassemblées dans le Tableau 2.2. L'accord entre les deux évaluations de Q est relativement bon. Les différences peuvent être expliquées par l'incertitude sur la valeur évaluée à partir des cycles d'aimantation. En particulier, le moindre défaut d'orientation de l'échantillon par rapport à la direction souhaitée a des répercussions différentes en champ perpendiculaire et en champ planaire, car la couche d'aimantation planaire se retourne plus facilement que la couche anisotrope. Cet effet se voit sur les courbes d'aimantation perpendiculaire au moment du changement de signe du champ appliqué : on observe un saut d'aimantation probablement dû au retournement de la couche désordonnée dans le plan, si celui-ci est incliné.

Echantillon	e_{A1}	e_{L10}	Q_{vsm}	Q_m
B1	30 nm	30 nm	0.95	0.80
B2	10 nm	30 nm	1.35	1.20
B3	10 nm	10 nm	0.86	0.8
B4	30 nm	10 nm	~0.2	0.4
B5	10 nm	30 nm	1.25	1.20
B6	30 nm	30 nm	0.65	0.80
T1	20 nm	20 nm	0.9	0.8
T2	20 nm	10 nm	0.7	0.53
T3	20 nm	20 nm	1	0.8
T4	20 nm	10 nm	0.6	0.53

TAB. 2.2 – Anisotropie magnétique perpendiculaire des bicouches et tricouches de FePd. Elle est caractérisée par le coefficient de qualité moyen évalué par deux méthodes : Q_{vsm} est évalué par intégration des cycles d'aimantation mesurés en VSM. Q_m est la moyenne des facteurs de qualité habituellement mesurés dans les couches ordonnées et désordonnées. La moyenne est pondérée par les épaisseurs totales d'alliage désordonné e_{A1} et d'alliage ordonné e_{L10} .

2.4 Simulations micromagnétiques

2.4.1 Description du code GL_FFT

Afin d'analyser la configuration magnétique de nos échantillons et leur comportement sous champ magnétique, nous avons utilisé le programme de simulation micromagnétique GL_FFT ©[22, 23]. Ce code a été développé au sein du Laboratoire Louis Néel par Jean-Christophe Toussein.

Ce code de calcul décrit l'évolution dynamique d'une assemblée discrète de moments magnétiques. En supposant nos systèmes invariants dans la direction y des rubans magnétiques, on réduit la simulation à un système bidimensionnel, tout en gardant l'aspect tridimensionnel des moments magnétiques. Dans les deux autres dimensions, on impose des conditions aux limites périodiques dans la direction x de la périodicité magnétique, et des conditions aux limites finies dans la direction z de l'axe de croissance de l'échantillon. La boîte de simulation représente donc une période magnétique de l'échantillon.

Un maillage régulier de la boîte définit des noeuds qui portent chacun un moment magnétique. Les pas de maillage Δx et Δz peuvent être différents. Les paramètres du matériau sont donnés pour chaque noeud, à savoir l'aimantation volumique à saturation M_s , la constante d'échange A_{ex} , la constante d'anisotropie magnétique K_u et sa direction.

GL_FFT intègre numériquement l'équation d'évolution de Gilbert-Landau-Lifshitz qui décrit la précession des moments magnétiques autour du champ magnétique effectif local :

$$\frac{d\hat{m}}{dt} = -\gamma\hat{m} \wedge \vec{H}_{eff} \quad (2.2)$$

$$\vec{H}_{eff} = \vec{H} + \alpha(\hat{m} \wedge \vec{H}) \quad (2.3)$$

Dans cette équation, $\hat{m} = \vec{M}/M_s$ est le moment magnétique réduit local, \vec{H} est le champ magnétique local, γ est le facteur gyromagnétique, et α est le coefficient d'amortissement. Le champ

magnétique local \vec{H} s'obtient par dérivation de l'énergie libre magnétique.

Dans l'approximation des milieux continus, l'énergie libre magnétique s'exprime comme la somme des énergies d'échange, d'anisotropie (définie par la direction \hat{u}), du champ démagnétisant \vec{H}_D et de Zeeman, intégrées dans le volume :

$$E_{mag} = \int_V d\vec{r} \left\{ A_{ex} \left[\vec{\nabla} \hat{m}(\vec{r}) \right]^2 - K_u [\hat{u} \cdot \hat{m}(\vec{r})]^2 - \frac{1}{2} \mu_0 M_s \hat{m}(\vec{r}) \cdot \vec{H}_D(\hat{m}(\vec{r})) - \mu_0 M_s \hat{m}(\vec{r}) \cdot \vec{H}_{ext} \right\} \quad (2.4)$$

Dans le code GL_FFT, l'intégrale de volume est remplacée par une somme discrète sur les noeuds de la boîte. Il faut donc que le maillage soit suffisamment fin pour rendre compte des variations d'orientation des moments magnétiques. En particulier, pour bien décrire les parois magnétiques, le pas doit être inférieur à la taille caractéristique de celle-ci ($\sqrt{A_{ex}/K_u}$). Dans nos échantillons de FePd, la période magnétique est de l'ordre de la centaine de nanomètres, pour des épaisseurs de quelques dizaines de nanomètres. Un maillage de l'ordre du nanomètre permet de bien rendre compte de la configuration magnétique. Nous avons utilisé typiquement un maillage de 128×64 noeuds. Dans le cas d'échantillons à grande période magnétique, de l'ordre du micron, et très anisotropes, il faut augmenter le nombre de noeuds et garder un pas suffisamment fin pour rendre compte des parois. C'est le cas des couches très fines (quelques nanomètres) de FePd et de CoPt $L1_0$. Cette faible épaisseur permet de compenser l'augmentation du nombre de noeuds dans la direction latérale par une diminution du nombre de noeuds dans la direction verticale. Cela évite de multiplier le temps de calcul. Dans ces situations, nous avons utilisé un maillage à 1024 noeuds latéralement et 16 ou 32 noeuds verticalement.

Dans l'équation 2.4, les termes d'échange et d'anisotropie décrivent l'environnement local du moment magnétique, et leur évaluation est sans difficulté, ainsi que celle du terme de Zeeman. La difficulté provient de l'évaluation du champ démagnétisant \vec{H}_D , qui dépend de la distribution complète des moments magnétiques. Dans GL_FFT, \vec{H}_D est évalué par la convolution de la distribution de charges magnétiques volumiques ρ_m et surfaciques σ_m avec une fonction d'interaction modélisée par le gradient spatial de la fonction de Green :

$$\vec{H}_D = \oint_S \sigma_m(\vec{r}') \nabla_{r'} G(\vec{r} - \vec{r}') dS' - \int_V \rho_m(\vec{r}') \nabla_{r'} G(\vec{r} - \vec{r}') d\vec{r}'$$

La convolution tire avantage des méthodes de transformée de Fourier rapide (*Fast Fourier Transform*, FFT) pour accélérer le calcul : le nombre d'opérations est réduit de N^2 à $N \ln N$. La rapidité du calcul est optimale si la boîte de simulation est maillée avec un nombre de noeuds correspondant à une puissance de 2. La contrepartie de cette méthode est d'imposer un maillage à pas constant.

GL_FFT décrit donc l'évolution du système en discrétisant l'équation de Gilbert-Landau-Lifshitz (2.3), à partir d'une certaine configuration initiale, jusqu'à un minimum local. En conséquence, l'état final, qui est ici notre premier centre d'intérêt, est très dépendant de l'état de départ. Il faut donc fournir en entrée une configuration suffisamment proche de la configuration réelle pour aboutir à une configuration finale satisfaisante.

Relaxation de la période magnétique

GL_FFT offre la possibilité de relaxer la période magnétique, pour rechercher l'état magnétique final le plus stable. Il procède par un algorithme de minimisation de l'énergie libre magnétique de type simplex, en calculant à chaque itération la configuration magnétique finale et son énergie libre magnétique.

2.4.2 Modélisation micromagnétique des bicouches et tricouches

La Figure 2.5 présente les configurations magnétiques issues des simulations micromagnétiques des bicouches et tricouches de FePd, sous champ magnétique appliqué nul. Les paramètres physiques utilisés sont les suivants :

- $\mu_0 M_s = 1.32$ T ($M_s = 1050$ emu/cm³)
- $A_{ex} = 7 \times 10^{-12}$ J/m
- $K_u = 1.1 \times 10^6$ J/m³ ($Q = 1.6$) dans la couche ordonnée
- $K_u = 0$ dans la couche désordonnée

Les simulations ont été faites avec un maillage de $n_x = 128$, $n_z = 64$ noeuds ou de $n_x = 64$, $n_z = 32$ noeuds, selon l'échantillon, en relaxant la période magnétique. La période magnétique initiale est celle mesurée en MFM, et la configuration magnétique initiale est définie comme suit :

$$\begin{aligned} m_x(i, j) &= \sin(2\pi i/n_x) \\ m_y(i, j) &= 0 \\ m_z(i, j) &= \cos(2\pi i/n_x) \end{aligned}$$

L'effet de découplage magnétique des couches intermédiaires de Palladium dans les échantillons *T3* et *T4* est bien visible.

Remarquons que le code ne peut pas prévoir que tous les moments magnétiques de l'échantillon *B4* sont dans le plan. C'est une illustration de l'importance de la configuration initiale : à partir d'une configuration initiale périodique, l'algorithme converge vers une configuration périodique, qui est un minimum local de l'énergie.

Les périodes magnétiques relaxées sont rassemblées dans le Tableau 2.1. La différence avec les périodes mesurées en MFM n'excède pas 15%, ce qui est assez satisfaisant.

Ces simulations nous fournissent un modèle de la configuration magnétique des échantillons que nous utiliserons par la suite pour expliquer des mesures de diffraction magnétique des rayons X mous.

En outre, ce modèle va pouvoir être confronté aux résultats de réflectivité de neutrons polarisés, décrits dans la section suivante.

2.5 Mesures de neutrons

2.5.1 Réflectivité de neutrons polarisés

Les neutrons, comme les rayons X, sont sensibles en réflectivité aux interfaces [24]. Au contraste d'indice optique pour les rayons X correspond le contraste de longueur de diffusion neutronique. On peut donc, avec un modèle adéquat, évaluer les épaisseurs des couches. Les neutrons polarisés présentent l'avantage d'être également sensibles à la composante de l'induction magnétique \vec{B} parallèle à leur axe de polarisation. Ainsi l'indice du matériau perçu par les

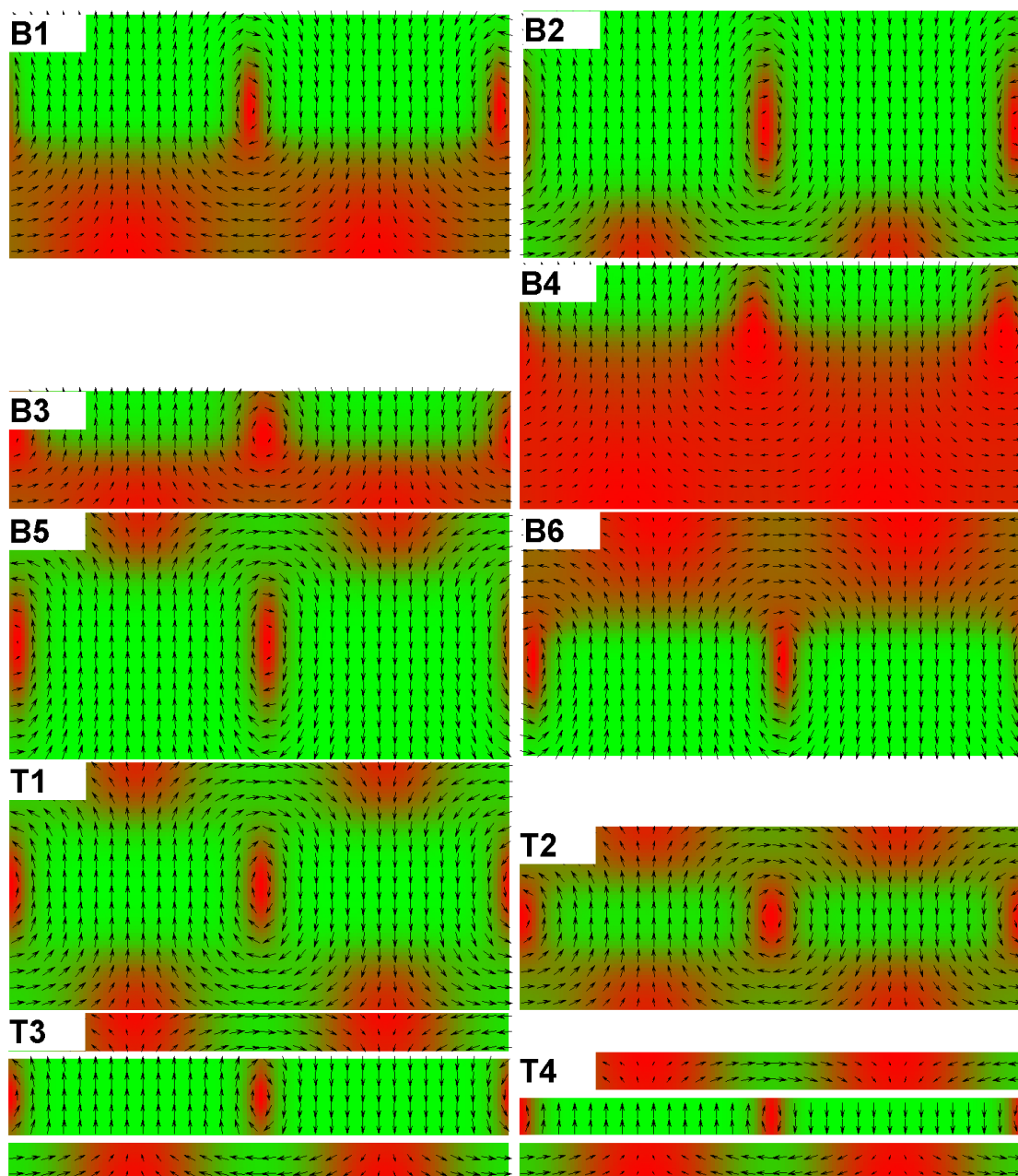


FIG. 2.5 – Configurations magnétiques des bicouches et tricouches de FePd, simulées par *GL_FFT* (la dimension périodique est horizontale). La couleur représente la composante perpendiculaire au plan de la figure : le rouge représente une composante forte et le vert une composante faible. Dans ce modèle, l'anisotropie de la couche désordonnée est nulle, tandis que le coefficient de qualité de la couche $L1_0$ est $Q = 1.6$.

neutrons polarisés dépend de cette composante. En inversant la polarité des neutrons, on observe donc des interférences différentes. En combinant les mesures avec les deux polarités, on accède donc non seulement à l'indice moyen du matériau, mais aussi à sa composante magnétique, directement liée à l'induction, donc à l'aimantation locale.

Il existe par ailleurs un autre effet, dit de "spin flip" (retournement du spin). En effet, les composantes de l'induction perpendiculaires à la polarisation peuvent faire précéder le spin des neutrons. Cet effet est assez faible et n'est donc observable que lorsque l'induction est suffisamment importante, et nécessite d'analyser la polarisation.

La réflectivité de neutrons polarisés des bicouches de FePd a été mesurée sur le réflectomètre 2 axes "PRISM" du Laboratoire Léon Brillouin (LLB), avec analyse de polarisation, en collaboration avec Frédéric Ott (CEA-LLB). La longueur d'onde des neutrons délivrés sur cette ligne est de 0.43 nm. Leur polarisation est assurée par un champ permanent de 13 Gauss.

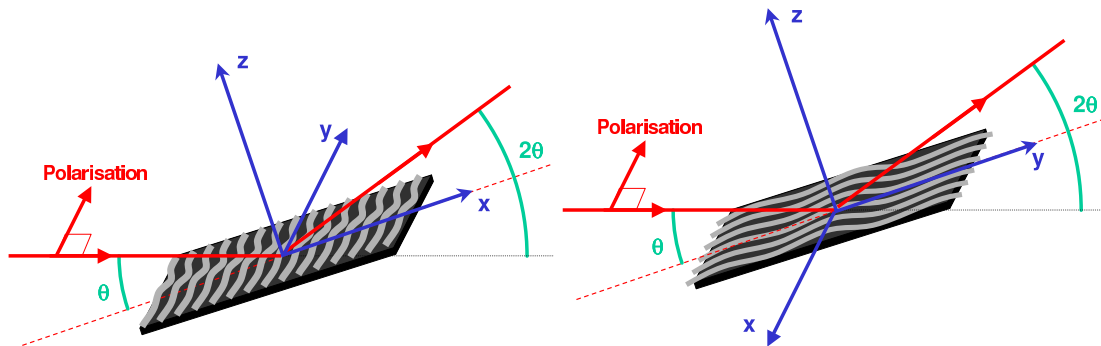


FIG. 2.6 – Géométries transverses (gauche) et longitudinale (droite) en réflectivité de neutrons polarisés.

Les échantillons étaient placés en géométrie transverse, c'est-à-dire avec les domaines alignés perpendiculairement au faisceau incident, la polarisation du faisceau étant choisie parallèle à l'axe des domaines (Fig. 2.6, gauche). Dans cette géométrie, les neutrons polarisés sont sensibles à la composante de l'aimantation parallèle aux rubans. C'est normalement la seule dont la composante constante n'est pas nulle. La différence de réflectivité selon la polarisation ("up" ou "down") confirme l'existence de cette composante constante non-nulle dans la direction de l'axe (Fig. 2.7). D'autre part, l'absence de signal significatif de "spin-flip" dans cette géométrie confirme que les composantes constantes de m_x et m_z sont nulles.

La réflectivité des échantillons B1 et B4 ont également été mesurées en géométrie longitudinale (Fig. 2.6, droite), c'est-à-dire avec les domaines alignés dans la direction du faisceau. La polarisation des neutrons, perpendiculaire à la composante planaire des échantillons, permet d'observer le signal de "spin-flip" (Fig. 2.7). De plus, on vérifie que la composante transverse (m_x) de l'échantillon B1 est nulle en moyenne, car la réflectivité est identique en polarisation "up" et en polarisation "down". Dans le cas de l'échantillon B4, la légère différence de réflectivité dans cette géométrie est certainement due à un léger défaut d'orientation de l'échantillon, qui possède une forte composante longitudinale m_y (c'est l'échantillon qui ne présente pas de domaines). C'est cet échantillon qui présente la plus grande différence de réflectivité en géométrie transverse.

Nous avons modélisé les courbes expérimentales en utilisant le logiciel libre SimulReflec, développé par Frédéric Ott (CEA-LLB). Ce programme simule les réflectivités de neutrons et de

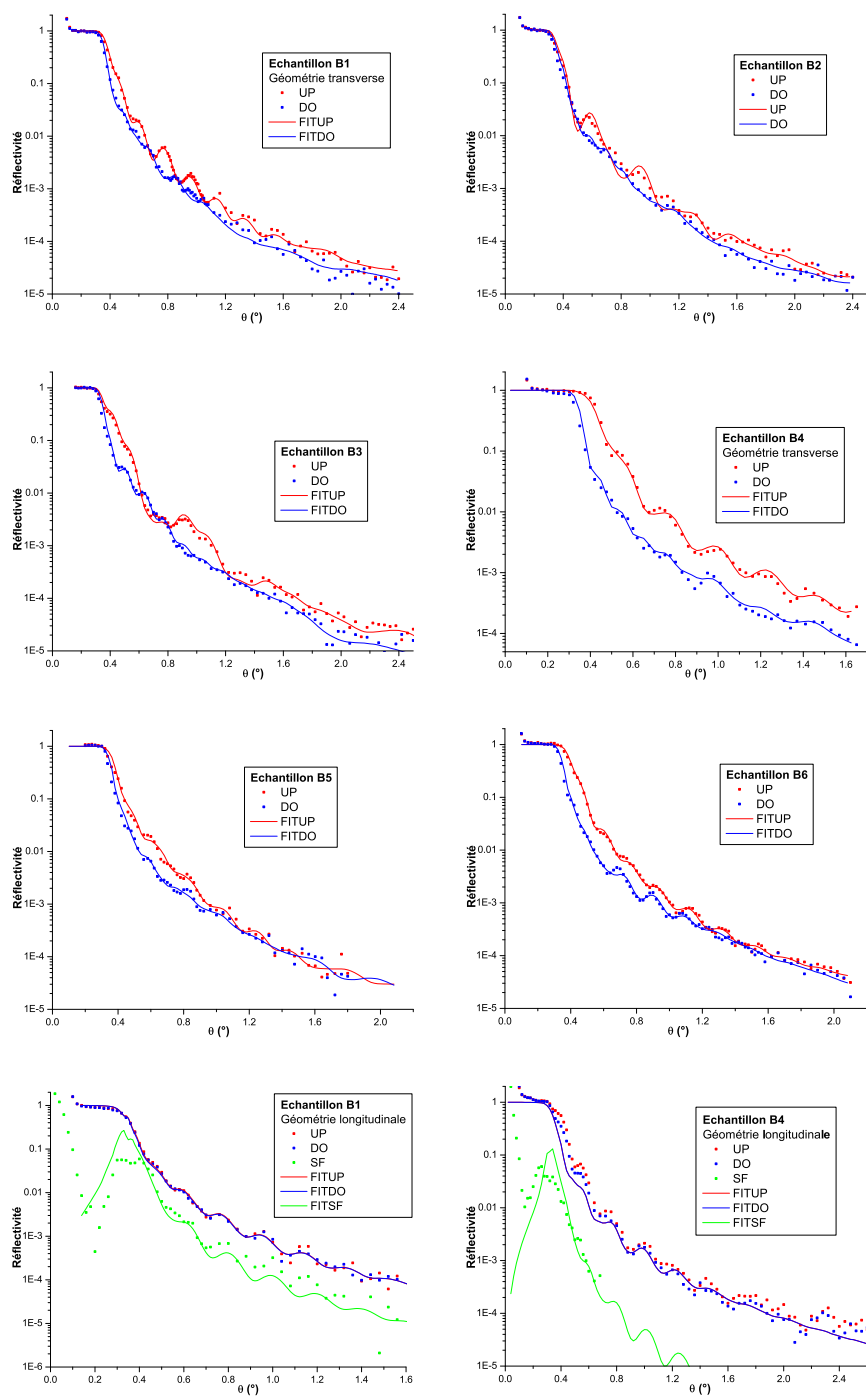


FIG. 2.7 – Réflectivité de neutrons polarisés des bicouches de FePd, en géométrie transverse (les 6 courbes du haut), et en géométrie longitudinale (les 2 courbes du bas). Les mesures en polarisation "up" (UP) et "down" (DO) sont comparées aux ajustements (FITUP et FITDO). En géométrie longitudinale, le "spin-flip" (SF) a également été mesuré et ajusté (FITSF).

rayons X en utilisant une méthode optique matricielle, à partir d'une description en couches de l'échantillon. Les paramètres utilisés sont les épaisseurs, densités, longueurs de diffusion (pour les neutrons ou les rayons X), et les moments magnétiques tridimensionnels. L'ajustement des paramètres se fait par un algorithme de simplex.

L'ajustement des épaisseurs a été fait en modélisant le système avec une seule couche de FePd. Pour les deux échantillons pour lesquels nous disposons de mesures dans les deux géométries, les épaisseurs ont d'abord été obtenues à partir des mesures en géométrie longitudinale, qui présentent peu ou pas de différence entre les deux polarisations. Puis en fixant les épaisseurs obtenues, le profil d'aimantation dans la couche de FePd est ajusté en procédant par dichotomie, en divisant à chaque étape chaque couche de FePd en deux, jusqu'à un total de 16 sous-couches. Il a été vérifié que des ajustements en partant d'une configuration initiale simulée par GL_FFT ne donne pas de meilleurs résultats. Le critère d'erreur utilisé au cours de cette procédure est :

$$\chi^2 = \sum \left(\frac{I^{sim} - I^{exp}}{I^{sim} + I^{exp}} \right)^2$$

Echantillon	Pd			FePd			Pd		
	N	RX	RN	N	RX	RN	N	RX	RN
B1	60	59.72	58.05	60	57.13	58.56	2.5	2.00	4.16
B2	60		58.05	40		33.44	2.5		3.33
B3	60	60.91	58.92	20	18.54	18.40	2.5	1.84	3.44
B4	60		52.62	40		46.40	2.5		2.01
B5	60		62.04	40		56.16	2.5		3.64
B6	60		57.84	60		63.20	2.5		3.71

TAB. 2.3 – Epaisseurs nominales (N) et déduites des courbes de réflectivité de rayons X (RX) et de neutrons (RN) des couches de FePd et de Pd (couche tampon et couche de protection) des bicouches. Les valeurs sont données en nanomètres.

Les profils ainsi obtenus sont comparables à ceux obtenus par simulation micromagnétique (Fig. 2.8). Dans la plupart des échantillons, les deux profils présentent la même tendance générale, la composante m_y décroissant de la couche désordonnée à la couche ordonnée. Sur les échantillons B2 et B5, la simulation micromagnétique et la réflectivité de neutrons s'accordent sur l'existence d'un "ventre" à l'interface entre les deux couches. L'ajustement de réflectivité de neutrons prédit également l'existence de ce "ventre" dans les échantillons B1 et B6, contrairement aux simulations micromagnétiques. Dans l'échantillon B3, l'ajustement de la réflectivité de neutrons mène à une interface magnétique plus franche entre les deux couches que ce que prédit la simulation. Enfin, les observations sur l'échantillon B4 ne correspondent pas aux simulations micromagnétiques. La mauvaise concordance des épaisseurs est probablement à l'origine de la convergence de l'ajustement vers un profil improbable.

En conclusion, la réflectivité de neutrons polarisés nous a permis d'évaluer la composante planaire de l'aimantation des bicouches de FePd. Ces résultats sont en relativement bon accord avec ceux des simulations micromagnétiques, sauf pour l'échantillon B4.

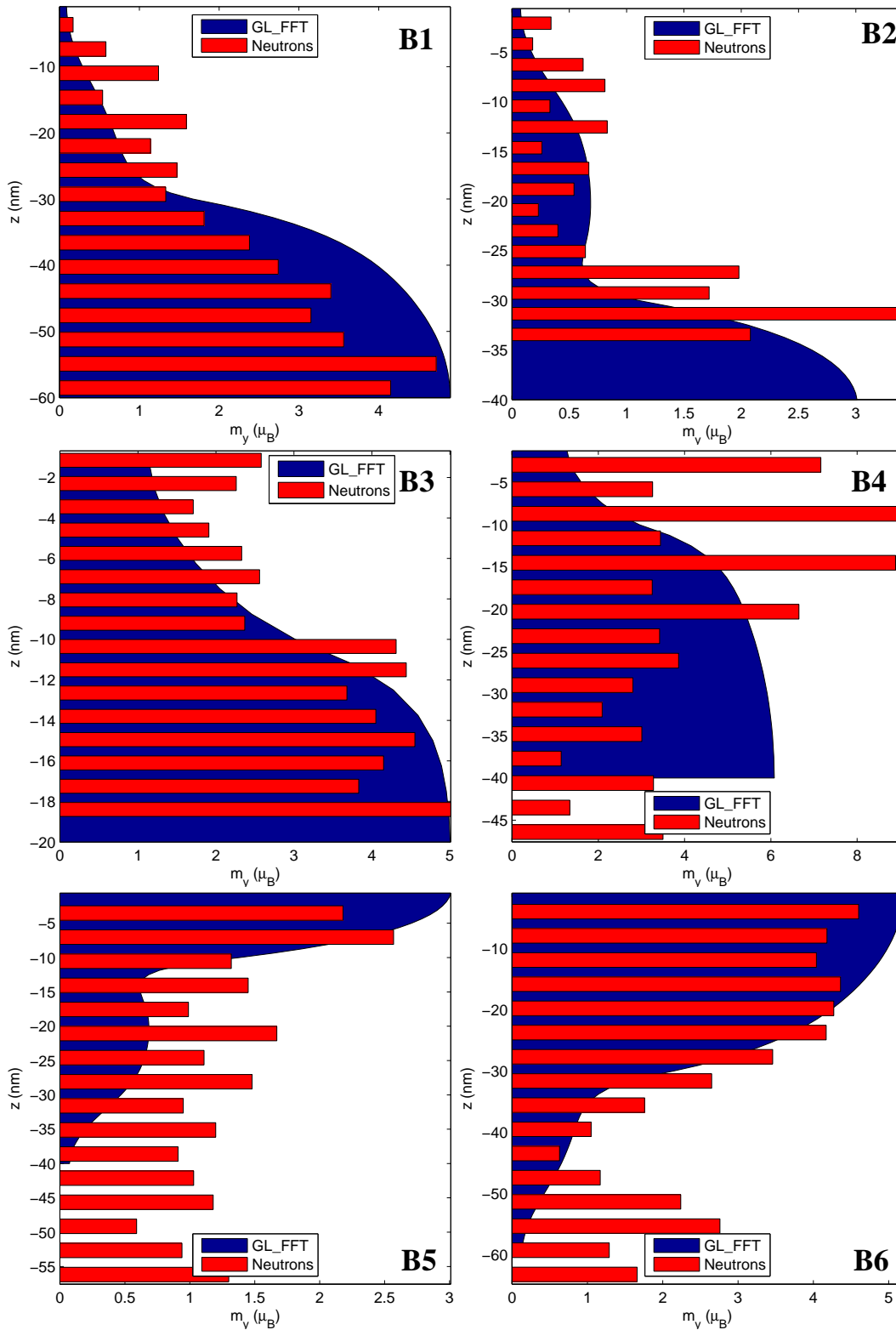


FIG. 2.8 – Profil vertical de la moyenne de la composante m_y , déduite des ajustements de réflectivité de neutrons et des simulations micromagnétiques (GL FFT). L'échelle verticale correspond à l'épaisseur ajustée pour les neutrons et à l'épaisseur nominale pour les simulations.

2.5.2 Diffusion hors spéculaire

La réflectivité ne donne accès qu'à la moyenne planaire des composantes magnétiques, et ne permet donc pas de sonder les composantes périodiques. La périodicité magnétique s'exprime hors spéculaire. On peut l'observer avec des neutrons en diffusion aux petits angles en incidence rasante (*Grazing Incidence Small Angle Neutron Scattering*, GISANS) [25]. Nous avons pu faire de telles mesures au Laboratoire Léon Brillouin, sur la ligne PAPOL, avec un détecteur bidimensionnel de 128×128 cellules à gaz. Les spectres mesurés (Fig. 2.9) permettent d'observer des satellites de part et d'autres du faisceau transmis et du faisceau réfléchi. Des mesures exploratoires ont été faites en variant l'angle d'incidence et l'axe de polarisation, mais les effets observés sur la position et l'intensité des satellites, ainsi que sur leur rapport d'asymétrie, demeurent inexpliqués.

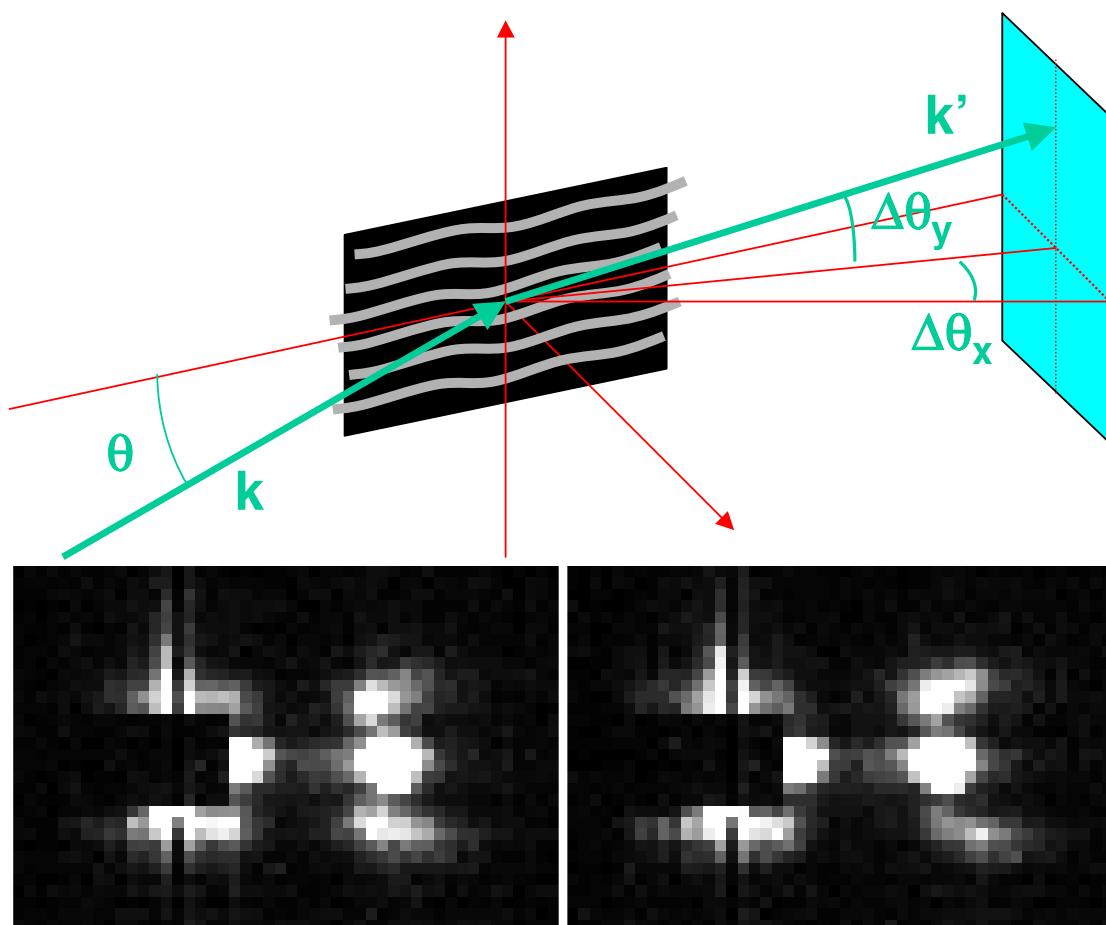


FIG. 2.9 – Spectres GISANS de l'échantillon B1, mesurés en polarisation "up" (gauche) et "down" (droite), avec un angle d'incidence de 7° . Sur chaque image, on observe sur la partie gauche le faisceau transmis et ses satellites magnétiques, et sur la partie droite le faisceau réfléchi et ses satellites magnétiques.

Deuxième partie

**Diffraction magnétique résonante des
rayons X mous**

Introduction

La diffusion magnétique résonante des rayons X (XRMS : X-ray Resonant Magnetic Scattering) est une méthode relativement récente qui a pu se développer grâce aux instituts de rayonnement synchrotron, qui fournissent un faisceau de rayons X intense et polarisable dans une vaste gamme d'énergie.

Dès 1954, la sensibilité des rayons X au spin de l'électron est prédite par les théories non relativistes de la diffusion Compton [26, 27]. En 1970, Platzman & Tzoar [28] démontrent la possibilité d'utiliser cette sensibilité pour étudier la densité de moments magnétiques dans les solides, comme on le fait déjà avec les neutrons, et ils évaluent la section efficace de la diffusion magnétique 10^6 fois inférieure à celle de la diffusion Thomson, dans le cas des rayons X durs de 5 keV.

La confirmation expérimentale des prédictions de Platzman & Tzoar est apportée en 1972, par Brunel et de Bergevin. Plusieurs jours d'acquisition avec un tube à rayons X leur permettent d'observer un pic de surstructure antiferromagnétique dans un cristal de NiO, et sa disparition au-delà de sa température de Néel [29]. Ils poursuivent leurs travaux pionniers sur la diffraction magnétique non-résonante, parmi lesquels deux résultats marquants publiés en 1981 : ils mesurent la variation d'intensité induite par l'inversion de l'aimantation de composés ferro- et ferrimagnétiques [30] et observent la transition de structure magnétique de Fe_2O_3 de part et d'autre de la température de Morin [31]. Ils démontrent en outre la contribution des moments orbitaux à la diffusion magnétique et explicitent les dépendances en polarisation de la diffusion par les moments orbitaux et les moments de spin.

L'apparition des premiers instituts dédiés au rayonnement synchrotron permet à la diffraction magnétique de se développer considérablement. Les propriétés du rayonnement synchrotron permettent de nombreuses études, parmi lesquelles on peut citer celle de l'hélimagnétisme de l'Holmium métallique [32], qui est l'une des premières à apporter de nouvelles informations sur les matériaux caractérisés.

En 1985, Platzman et Tzoar étendent la théorie au cas de la diffusion magnétique inélastique [33]. Les premiers résultats expérimentaux suivent en 1986 [34, 35].

Jusqu'alors, les effets de résonance ne sont pas exploités. Ils sont néanmoins mentionnés en 1985 par Blume [36], qui évalue leur ordre de grandeur. En 1988, Hannon et Trammell [37] transposent la théorie de la résonance nucléaire (l'effet Mössbauer) au cas de la résonance électronique et explicitent la contribution des effets résonants à la diffusion des rayons X. Cette théorie se montre en accord avec les résultats expérimentaux publiés simultanément par Doon Gibbs *et al* [38], qui mettent en évidence la très nette augmentation du pic hélimagnétique de l'Holmium métallique quand l'énergie du faisceau incident correspond au seuil L_{III} de l'Holmium.

L'efficacité de la méthode est ainsi démontrée, et de nombreuses études suivent, d'abord dans le domaine des rayons X durs, en particuliers aux seuils M de l'Uranium [39, 40, 41, 42, 43].

On observe aussi la diffusion magnétique résonante d'ions non-magnétiques dans un matériau magnétique [44], que l'on explique par l'interaction entre les électrons résonants et leur voisinage électronique [45].

A partir de ce moment, la diffusion magnétique non-résonante devient plus marginale, réservée à quelques études particulières [46].

Dans le domaine des rayons X mous, la diffraction magnétique résonante aux seuils L des métaux de transition est mesurée dès 1990 [47, 48]. Dans cette gamme de longueur d'onde, l'intérêt se porte sur la réflectivité magnétique, qui permet l'exploration des profils d'aimantation dans les multicouches [49, 50, 51, 1, 52, 53].

La diffusion magnétique résonante des rayons X mous s'avère être aussi un outil performant pour étudier la rugosité magnétique des surfaces et interfaces [54, 55, 56].

Enfin, la longueur d'onde est également adaptée à l'étude des nanostructures périodiques latéralement. On peut ainsi étudier les domaines magnétiques périodiques qui se forment dans certaines couches minces [57, 58], ou les matériaux nanostructurés artificiellement pour l'enregistrement magnétique [59].

Le travail présenté ici s'inscrit dans la lignée des travaux sus-mentionnés dans le domaine des rayons X mous. Il consiste d'une part dans l'utilisation de méthodes existantes pour l'analyse de nanostructures magnétiques, en particulier en ce qui concerne la réflectivité magnétique, et d'autre part dans la mise au point de nouvelles méthodes d'analyse pour l'étude des profils d'aimantation complexes dans les couches minces.

L'utilisation de la cohérence du faisceau pour l'étude des propriétés locales fait l'objet de la partie III de ce manuscrit.

Chapitre 3

Formalisme de la diffraction magnétique résonante des rayons X

3.1 Interaction photon-électron

3.1.1 Hamiltonien d'interaction

La diffraction des rayons X résulte de l'interaction d'une onde électromagnétique avec les électrons d'un matériau. La diffraction magnétique résonante n'est qu'un cas particulier de ce processus. Nous allons brièvement reprendre le formalisme de la diffraction des rayons X pour comprendre l'origine de la diffraction magnétique résonante.

Considérons donc l'interaction d'un électron et d'un photon. On notera les états de l'électron avec des caractères romains ($|a\rangle$, $|b\rangle$, etc...) et les états du photon avec des caractères grecs ($|\alpha\rangle$, $|\beta\rangle$, etc...).

L'électron est caractérisé par son énergie E , son moment cinétique \vec{p} et son moment de spin \vec{s} .

Le photon est la représentation particulière d'un champ électromagnétique caractérisé par son potentiel vecteur \vec{A} et son potentiel scalaire ϕ . Ce dernier est généralement négligeable devant le potentiel ϕ imposé par l'environnement de l'électron (le noyau et les autres électrons). Le potentiel vecteur s'exprime en termes d'opérateurs de création (C) et d'annihilation (C^*) de photons comme suit :

$$\vec{A} = \sum_{\vec{k}, \sigma} \left(\frac{2\pi\hbar c^2}{V\omega} \right)^{\frac{1}{2}} \left[C(\vec{k}, \sigma) \hat{\epsilon}(\vec{k}, \sigma) e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} + C^*(\vec{k}, \sigma) \hat{\epsilon}^*(\vec{k}, \sigma) e^{-i\vec{k}\cdot\vec{r}} \right]$$

où \vec{k} est le vecteur d'onde du photon annihilé ou créé, σ est son état de polarisation (1 ou 2) et $\hat{\epsilon}$ est le vecteur unitaire du champ électrique associé.

L'hamiltonien du système électron - photon s'écrit comme la somme de 4 contributions :

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_K + \mathcal{H}_Z + \mathcal{H}_{SO} + \mathcal{H}_{EM}$$

$$\begin{aligned}
\mathcal{H}_K &= \frac{1}{2m_e} \left(\vec{p} - \frac{e}{c} \vec{A} \right)^2 \\
\mathcal{H}_Z &= -\frac{e\hbar}{2m_e c} \vec{s} \cdot (\vec{\nabla} \wedge \vec{A}) \\
\mathcal{H}_{SO} &= \frac{e\hbar}{2(m_e c)^2} \vec{s} \cdot \left(\vec{\nabla}(\phi + \varphi) + \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{A}}{\partial t} \right) \wedge \left(\vec{p} - \frac{e}{c} \vec{A} \right) \\
\mathcal{H}_{EM} &= \sum_{\vec{k}, \varepsilon} \hbar \omega \left(C^*(\vec{k}, \varepsilon) C(\vec{k}, \varepsilon) + \frac{1}{2} \right)
\end{aligned}$$

- \mathcal{H}_K décrit l'énergie cinétique de l'électron dans le champ électromagnétique.
- \mathcal{H}_Z décrit l'interaction Zeeman entre le spin de l'électron et le champ électromagnétique local.
- \mathcal{H}_{SO} décrit l'interaction spin-orbite.
- \mathcal{H}_{EM} décrit l'énergie propre au champ magnétique.

Parmi ces termes, on identifie ceux qui décrivent l'interaction elle-même, en laissant les termes propres à l'électron d'une part et au champ électromagnétique d'autre part. L'hamiltonien de l'interaction s'écrit donc [36] :

$$\begin{aligned}
\mathcal{H}_I &= \mathcal{H} - \mathcal{H}_{EM} - \frac{p^2}{2m_e} - \frac{e\hbar}{2(m_e c)^2} \vec{s} \cdot (\vec{\nabla} \phi \wedge \vec{p}) \\
&= \mathcal{H}_{A^2} + \mathcal{H}_{Ap} + \mathcal{H}'_{SO} + \mathcal{H}_{spin} + \mathcal{H}_Z
\end{aligned}$$

avec :

$$\begin{aligned}
\mathcal{H}_{A^2} &= \frac{e^2}{2m_e c^2} \vec{A}^2 = \frac{r_e}{2} \vec{A}^2 \\
\mathcal{H}_{Ap} &= -\frac{e}{m_e c} \vec{A} \cdot \vec{p} \\
\mathcal{H}'_{SO} &= \frac{e\hbar}{2m_e^2 c^3} \vec{s} \cdot \left(\frac{\partial \vec{A}}{\partial t} \wedge \vec{p} - e \vec{\nabla} \phi \wedge \vec{A} \right) \\
\mathcal{H}_{spin} &= -\frac{e^2 \hbar}{2m_e^2 c^4} \vec{s} \cdot \left(\frac{\partial \vec{A}}{\partial t} \wedge \vec{A} \right) = -\frac{r_e}{2} \frac{\hbar}{m_e c^2} \vec{s} \cdot \left(\frac{\partial \vec{A}}{\partial t} \wedge \vec{A} \right)
\end{aligned}$$

La règle d'or de Fermi exprime les sections efficaces, c'est-à-dire les probabilités de transition entre deux états $|a, \alpha\rangle$ et $|b, \beta\rangle$ du système électron-photon en fonction de l'hamiltonien d'interaction. Elle s'écrit au second ordre, en fonction des états intermédiaires $|n, \eta\rangle$ comme :

$$w = \frac{2\pi}{\hbar} |f|^2 \delta(E_a + \hbar\omega - E_b - \hbar\omega') \quad (3.1)$$

où f est défini par :

$$f = \langle b, \beta | \mathcal{H}_I | a, \alpha \rangle + \sum_{n, \eta} \frac{\langle b, \beta | \mathcal{H}_I | n, \eta \rangle \langle n, \eta | \mathcal{H}_I | a, \alpha \rangle}{E_n - E_a - \hbar\omega - i\frac{\Gamma_n}{2}} \quad (3.2)$$

Les Γ_n décrivent les largeurs spectrales des niveaux électroniques E_n .

Parmi les termes constituant l'hamiltonien d'interaction, on distingue les termes linéaires en \vec{A} , qui sont des processus à 1 photon, des termes quadratiques en \vec{A} , qui sont des processus à

2 photons. Les processus à 1 photon décrivent l'absorption et la photo-émission, alors que les processus à 2 photons décrivent la diffusion, considérée comme l'absorption et l'émission simultanées d'un photon.

Parmi les processus à 1 photon, \mathcal{H}_{Ap} décrit l'absorption "normale" et \mathcal{H}_Z décrit l'effet Zeeman, beaucoup plus faible et occasionnellement mesurable sous fort champ magnétique.

3.1.2 Diffusion élastique non-résonante

Parmi les processus à 2 photons, nous nous intéressons uniquement à la diffusion élastique, au cours de laquelle le photon et l'électron retrouvent leurs énergies respectives initiales ($\hbar\omega = \hbar\omega'$, $E_a = E_b$), quels que soient les processus intermédiaires.

On décompose l'amplitude de diffusion élastique en 3 termes :

$$f_0 = \langle \beta, b | \mathcal{H}_{A^2} | a, \alpha \rangle = \frac{r_e}{2} (\vec{\epsilon}'^* \cdot \vec{\epsilon}) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} \quad (3.3)$$

$$f_{spin} = \langle \beta, b | \mathcal{H}_{spin} | a, \alpha \rangle = -i \frac{r_e}{2} \frac{\hbar\omega}{m_e c^2} \vec{s} \cdot (\vec{\epsilon}'^* \wedge \vec{\epsilon}) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} \quad (3.4)$$

$$f^{(2)} = \sum_{n, \eta} \frac{\langle b, \beta | \mathcal{H}_I' | n, \eta \rangle \langle n, \eta | \mathcal{H}_I' | a, \alpha \rangle}{E_n - E_a - \hbar\omega - i\frac{\Gamma_n}{2}} \quad (3.5)$$

avec :

$$\mathcal{H}_I' = \mathcal{H}_{Ap} + \mathcal{H}_Z + \mathcal{H}_{SO}'$$

$\vec{q} = \vec{k}' - \vec{k}$ est le vecteur de diffusion.

f_0 décrit la diffusion par la charge (diffusion Thomson), alors que f_{spin} décrit la diffusion par le spin.

$f^{(2)}$ regroupe les processus de diffusion de second ordre : ce sont les processus tels que l'absorption du photon incident crée une transition électronique vers un état intermédiaire $|n, \eta\rangle$, suivi d'un retour à l'état électronique initial provoquant la réémission d'un photon. Ce terme est très dépendant de l'énergie du photon incident, car si celle-ci est proche de l'énergie d'une transition électronique (c'est-à-dire $\hbar\omega \approx E_n - E_a$), l'un des termes de la somme définissant $f^{(2)}$ devient très important, jusqu'à être d'amplitude comparable à la diffusion Thomson. On parle alors de phénomène de résonance.

Dans le cas contraire, ces processus sont tous faibles et participent avec f_{spin} à un terme global de diffusion magnétique non-résonante, dont l'amplitude est donnée par *Platzman & Tzoar* [28] :

$$f_{mag}^{non-res} = f_{spin} + f^{(2)} = -ir_e \frac{\hbar\omega}{m_e c^2} \left\langle a \left| i \frac{\vec{q} \wedge \vec{p}}{\hbar k^2} \cdot \vec{B}_L + \vec{s} \cdot \vec{B}_S \right| a \right\rangle e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}}$$

avec :

$$\vec{B}_L = \vec{\epsilon}' \wedge \hat{\epsilon}$$

$$\vec{B}_S = \vec{\epsilon}' \wedge \hat{\epsilon} + (\hat{k}' \wedge \hat{\epsilon}')(\hat{k} \cdot \hat{\epsilon}) - (\hat{k} \wedge \hat{\epsilon})(\hat{k}' \cdot \hat{\epsilon}') - (\hat{k}' \wedge \hat{\epsilon}) \wedge (\hat{k} \wedge \hat{\epsilon})$$

Dans l'approximation cinématique de la diffraction, l'intensité diffractée dans la direction \vec{q} de l'espace réciproque se calcule comme le module au carré de la transformée de Fourier de f .

Ainsi, de même que la diffusion Thomson est liée à la transformée de Fourier de la densité électronique, la diffusion magnétique non-résonante s'exprime en fonction des transformées de

Fourier des moments orbital et de spin, respectivement \vec{L} et \vec{S} :

$$F_{mag}^{non-res}(\vec{q}) = -ir_e \frac{\hbar\omega}{m_e c^2} \left(\frac{1}{2} \vec{L}(\vec{q}) \cdot \vec{B}'_L + \vec{S}(\vec{q}) \cdot \vec{B}_S \right)$$

\vec{B}'_L est un vecteur géométrique dérivé de \vec{B}_L .

La diffusion magnétique non-résonnante est très faible à cause du terme $\hbar\omega/m_e c^2$ qui est de l'ordre de 10^{-2} dans la gamme des rayons X durs et de 10^{-3} dans la gamme des X mous. Son avantage est la possibilité de séparer les contributions orbitales et de spin, grâce aux termes de polarisation \vec{B}'_L et \vec{B}_S .

3.1.3 Processus résonants

Lorsque l'énergie du photon incident est proche d'un seuil de transition électronique ($\hbar\omega \approx E_n - E_a$), l'une des transitions électroniques vers un état intermédiaire $|n\rangle$ devient prépondérante sur les autres et contribue de manière importante à l'amplitude de diffusion sous la forme d'un terme supplémentaire f^{res} .

Ces transitions virtuelles ont lieu entre un état de coeur et un niveau électronique vide (pour un atome isolé). Dans les solides, le niveau de transition d'intérêt est la bande de valence, car elle détermine le magnétisme de l'atome non-excité. Les transitions sont du type $2p \rightarrow 3d$ pour les seuils L des métaux de transition, et $3d \rightarrow 4f$ pour les seuils M des Terres Rares.

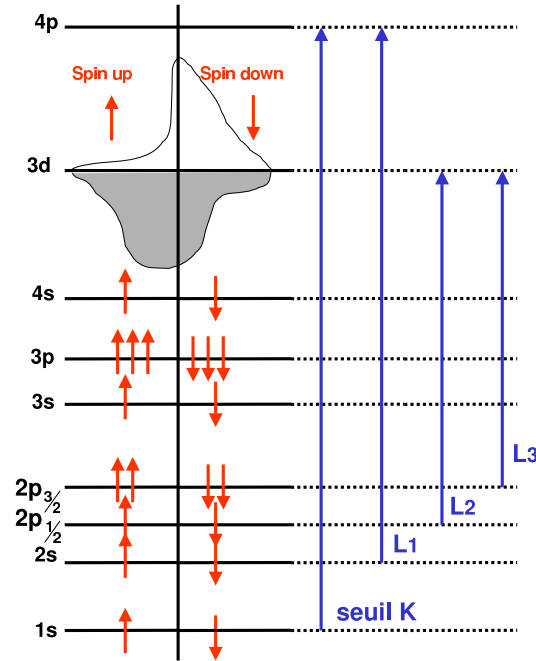


FIG. 3.1 – Schéma des niveaux électroniques impliqués dans la résonance aux seuils L des métaux de transition.

Bien que ces transitions soient purement électroniques, le couplage spin-orbite dans l'état de coeur leur confère une sensibilité au magnétisme. La différence de taux d'occupation de la bande de valence selon le spin sert d'analyseur en spin à cette transition (Fig. 3.1).

	K $1s \rightarrow 4p$	L_1 $2s \rightarrow 4p$	L_2 $2p_{1/2} \rightarrow 3d$	L_3 $2p_{3/2} \rightarrow 3d$
Cr	5989	696.0	583.8	574.1
Mn	6539	769.1	649.9	638.7
Fe	7112	844.6	719.9	706.8
Co	7709	925.1	793.2	778.1
Ni	8333	1008.6	870.0	852.7
Cu	8979	1096.7	952.3	932.7
Zn	9659	1196.2	1044.9	1021.8

TAB. 3.1 – Seuils des métaux de transition usuels dans le domaine des rayons X (Energies en eV)

L'origine du terme résonant, créé par les transitions électroniques entre niveau de coeur et bande de valence, lui confère une propriété très particulière, à savoir la sélectivité chimique. En effet, l'énergie de ces transitions électroniques est propre à chaque élément, de sorte que l'on peut sélectionner un élément particulier d'un matériau et "allumer" ses processus résonants. Cela permet d'étudier séparément les propriétés de chaque élément d'un matériau, ce qui est très utile dans le cas d'empilements de couches minces comprenant des éléments magnétiques différents (Fig. 3.2). Cette propriété va même plus loin, car en choisissant un seuil particulier d'un élément on choisit également une orbitale de transition. Si l'on veut étudier l'aimantation de l'atome, il faut choisir une bande dont le taux d'occupation des états diffère selon le spin.

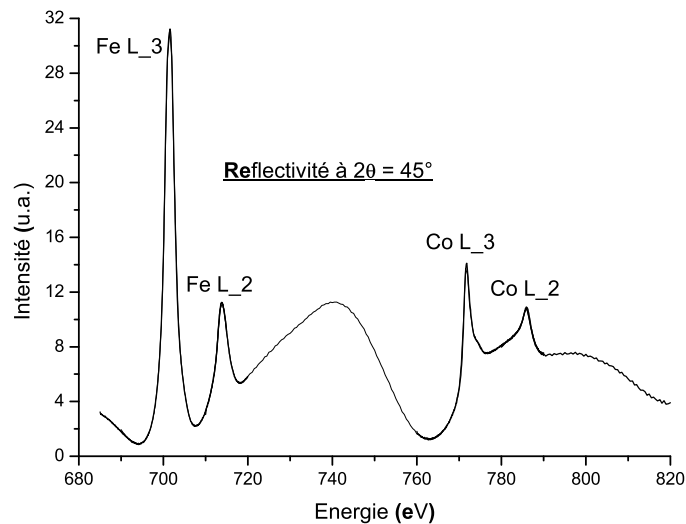


FIG. 3.2 – Réflectivité spéculaire à $2\theta = 45^\circ$ d'un échantillon constitué d'une couche de FePd et d'une couche de CoPt, en fonction de l'énergie du faisceau incident. Les pics d'intensité sont les seuils L_2 et L_3 du Fer et du Cobalt. Les modulations lentes sont dues à la modification des interférences entre couches avec la variation de longueur d'onde.

Hannon [37] a montré qu'il est possible d'écrire la contribution résonante f^{res} sous forme de somme des contributions f_{EL} des transitions électriques 2^L -multipolaires. Ces termes s'expriment en fonction des harmoniques sphériques vectorielles Y_{LM} et de la force F_{LM} des oscillateurs associés.

$$f^{res} = \sum_L f_{EL} = 4\pi r_e \sum_L \sum_{M=-L}^L [\hat{\epsilon}'^* \cdot Y_{LM} Y_{LM}^* \cdot \hat{\epsilon}] F_{LM}$$

$$F_{LM} = \sum_{a,b} p_a p_a(b) \frac{2\Gamma_n^{EL}}{E_a - E_b - \hbar\omega - i\frac{\Gamma_n^{EL}}{2}}$$

p_a est la probabilité pour que l'électron soit dans l'état initial a , et $p_a(b)$ est la probabilité de transition de l'état a à l'état b . Γ_n^{EL} est la largeur énergétique due aux seuls processus électriques 2^L -polaires.

La contribution des transitions électriques dipolaires ($L = 1$), qui est dominante, s'écrit [60] :

$$f_{E1} = F_0(\hat{\epsilon}'^* \cdot \hat{\epsilon}) - iF_1(\hat{\epsilon}'^* \wedge \hat{\epsilon}) \cdot \hat{m} + F_2(\hat{\epsilon}'^* \cdot \hat{m})(\hat{\epsilon} \cdot \hat{m})$$

avec :

$$F_0 = \frac{3\lambda}{8\pi}(F_{11} + F_{1-1})$$

$$F_1 = \frac{3\lambda}{8\pi}(F_{11} - F_{1-1})$$

$$F_2 = \frac{3\lambda}{8\pi}(2F_{10} - F_{11} - F_{1-1})$$

\hat{m} est l'axe de quantification local, c'est-à-dire la direction de l'aimantation locale dans le cas d'un atome magnétique.

Le premier terme de cette expression est la diffusion anormale non-magnétique, que l'on écrit généralement $f' + if''$. Cet effet est important près des seuils d'absorption et s'ajoute à la diffusion Thomson. Il permet d'observer l'ordre de charge.

Le deuxième terme dépend linéairement de la direction de l'aimantation. Son amplitude devient comparable à la diffusion par la charge (diffusion Thomson et anormale non-magnétique) près des seuils L des métaux de transitions et des seuils M des Terres Rares. Ce terme permet d'observer l'ordre magnétique et est responsable du dichroïsme magnétique circulaire (XMCD). Il est parfois noté $m' + im''$ dans la littérature.

Le troisième terme est quadratique en fonction de la direction de quantification locale. Il est identiquement nul dans le cas d'une maille de symétrie cubique, et permet sinon de mesurer l'anisotropie magnéto-cristalline, grâce au dichroïsme magnétique linéaire (XMLD) [61]. Il est néanmoins très petit devant F_0 et F_1 .

Dans les systèmes que nous avons étudiés, comme on s'intéresse à des régions de l'espace réciproque où la transformée de Fourier d'au moins un des deux premiers termes est de module significatif, on peut négliger ce terme quadratique.

Les transitions électriques dipolaires ($E1$) sont généralement dominantes, mais les transitions électriques quadripolaires ($E2$) peuvent jouer un rôle appréciable, particulièrement dans le

cas des transitions $2d \rightarrow 4f$ dans les Terres Rares. Les 5 amplitudes F_{2M} de transitions quadripolaires interviennent dans 13 termes supplémentaires au facteur de diffusion atomique. Le détail de ces termes est donné dans [37]. Dans les cas qui nous intéressent, aux seuils L des métaux de transitions, on peut négliger les transitions quadripolaires.

La contribution non-résonante du spin f_{spin} dépend linéairement du spin, de sorte qu'elle se confond dans l'espace réciproque avec le terme linéaire en \vec{m} de f^{res} . Au voisinage de la résonance, ce dernier devient beaucoup plus important que f_{spin} , que l'on peut alors négliger. Nous nous placerons dans ce cas pour la suite.

Finalement, l'amplitude de diffusion pour un électron résonant s'écrit :

$$f = f_0 + f_{spin} + f^{res} \approx f_0 + f_{E1} \approx f_0 + f' + if'' + m' + im''$$

Il est pratique de réécrire f comme la somme de deux termes, l'un étant la diffusion de la charge (f_c) et l'autre la diffusion magnétique (f_m) :

$$f_c = f_0 + f' + if'' = (r_e + F_0)(\hat{\xi}'^* \cdot \hat{\xi}) \quad (3.6)$$

$$f_m = m' + im'' = -iF_1(\hat{\xi}'^* \wedge \hat{\xi}) \cdot \hat{m} \quad (3.7)$$

La suite du développement est donc donnée à partir de la forme simplifiée $f = f_c + f_m$. Pour simplifier l'écriture, on assimilera aussi $r_e + F_0$ à F_0 .

Connaissant l'amplitude de diffusion d'un électron, l'intensité totale diffusée par un échantillon s'écrit (dans l'approximation cinématique) comme le module au carré de la transformée de Fourier de f , calculée sur le volume irradié ou le volume de l'échantillon, selon le cas.

3.1.4 Dépendance en énergie

Les phénomènes résonants sont extrêmement dépendants de l'énergie du photon incident, car ils sont associés à une transition électronique entre deux états d'énergies bien déterminées.

Les amplitudes de résonance F_0 , F_1 et F_2 , issues de l'hamiltonien d'interaction photon-électron, se modélisent sous la forme de lorentziennes de largeur spectrale Γ centrées sur la différence d'énergie ΔE entre les deux niveaux électroniques :

$$F_0, F_1, F_2 \propto \frac{\hbar\omega - \Delta E + i\Gamma/2}{(\hbar\omega - \Delta E)^2 + (\Gamma/2)^2}$$

Leurs parties réelles et imaginaires sont liées par les relations de Kramers-Kronig :

$$\Re [F(\omega)] = \frac{2}{\pi} P \int_0^{\infty} \frac{\Im [F(\omega')]}{\omega'^2 - \omega^2} \omega' d\omega'$$

$$\Im [F(\omega)] = -\frac{2}{\pi} \omega P \int_0^{\infty} \frac{\Re [F(\omega')]}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega'$$

P désigne la partie principale de l'intégrale au sens de Cauchy.

F désigne F_0 , iF_1 ou F_2 . Le rôle différent de F_1 est due à la brisure de symétrie d'inversion du temps en présence de champ magnétique.

Les relations de Kramers-Kronig posent quelques difficultés d'intégration, dues au pôle de la fonction à intégrer et à la lente décroissance de cette fonction loin des pôles. Ces problèmes et

la manière de les résoudre sont décrits dans la thèse de L. Sève [1].

Expérimentalement, on mesure généralement l'absorption, liée à la partie imaginaire des amplitudes F_i , et on en déduit les parties réelles par les relations de Kramers-Kronig. Les parties imaginaires des termes F_0 , F_1 et F_2 sont mesurées respectivement par le spectre d'absorption moyen, le dichroïsme circulaire et le dichroïsme linéaire.

D'autres approches permettent de mesurer plutôt la partie réelle, en mesurant la dépendance en énergie de la réflectivité [51], la position du pic de Bragg d'une multicouche [62], l'effet Faraday [63, 64, 65], ou l'effet Voigt [66].

Si les valeurs de F_0 (souvent noté $f' + if''$) sont généralement bien connues, celles de F_1 (noté $m' + im''$) n'ont été mesurées que pour peu d'éléments. Cependant, le Fer et le Cobalt, qui sont les deux principaux éléments magnétiques que nous avons utilisés, font partie des éléments les plus étudiés [67, 68]. Les valeurs de F_2 des métaux de transition ont été peu étudiées car elles sont souvent négligeables, comme dans notre cas.

Les valeurs de F_0 et F_1 que nous avons utilisées nous ont été fournies par J. M. Tonnerre.

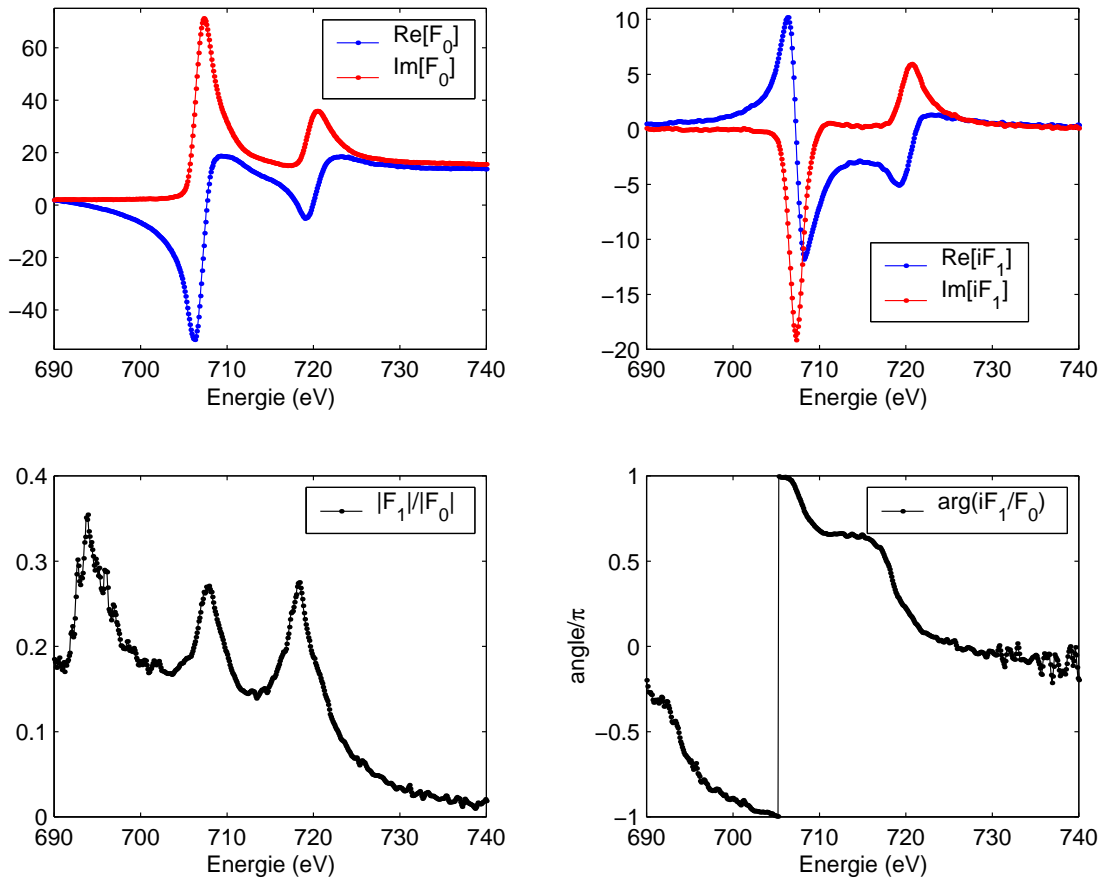


FIG. 3.3 – Amplitudes de résonance F_0 et F_1 du Fer : valeurs absolues des parties réelles et imaginaires (en unités r_e). En bas, le rapport F_1/F_0 est tracé en module et en phase.

Les Figures 3.3 et 3.4 montrent le comportement des parties réelles et imaginaires des facteurs F_0 et F_1 autour des seuils L_{II} et L_{III} du Fer et du Cobalt. Ces valeurs varient très vite au

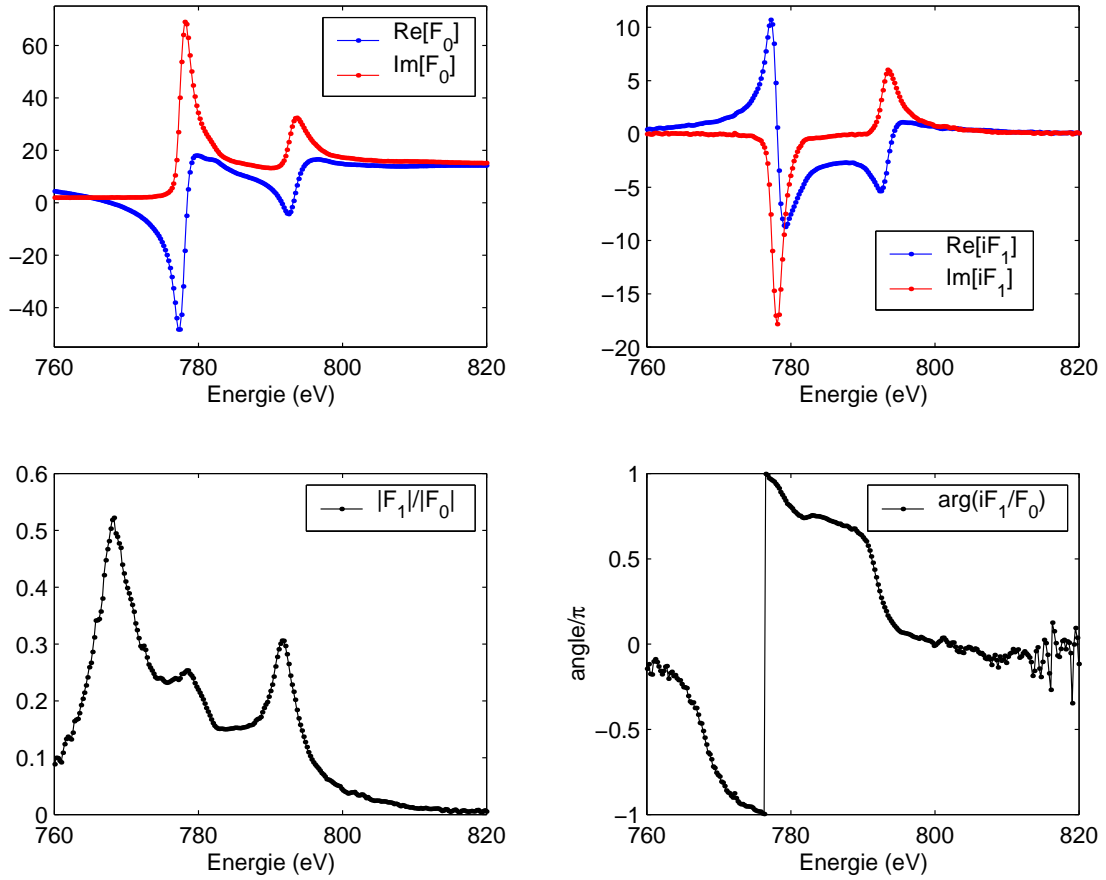


FIG. 3.4 – Amplitudes de résonance F_0 et F_1 du Cobalt : valeurs absolues des parties réelles et imaginaires (en unités r_e). En bas, le rapport F_1/F_0 est tracé en module et en phase.

voisinage de la résonance. En particulier, le rapport F_1/F_0 varie rapidement en phase et en module, ce qui rend les interférences entre le terme de charge et le terme magnétique très sensibles à l'énergie du faisceau.

3.2 Formalisme matriciel de la diffraction

A partir de l'interaction d'un photon avec un électron, nous allons maintenant considérer l'interaction d'un faisceau de photons avec les électrons d'un solide cristallin. On se place ici dans le cas d'un faisceau parfaitement monochromatique de longueur d'onde λ et parfaitement collimaté dans la direction \hat{k} .

L'approximation cinématique de la diffraction suppose que l'interaction d'un photon dans la matière est suffisamment faible pour que l'on puisse considérer un unique événement de diffusion par photon mesuré dans la direction \vec{k}' , et faire abstraction des effets optiques. Tout se passe alors comme si le photon se propageait dans le vide, avant et après l'événement de diffusion. Dans cette hypothèse, l'intensité diffusée s'écrit comme le carré du module de la Transformée de Fourier de l'amplitude de diffusion par un électron $f(\vec{r})$:

$$I(\vec{q}) = \left| \int f(\vec{r}) e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} d\vec{r} \right|^2 \quad (3.8)$$

Dans ce formalisme, on peut utiliser une description matricielle de la diffraction, qui permet de rendre compte de sa dépendance en polarisation.

Nous verrons plus loin les limites de l'approximation cinématique dans le cas des rayons X mous.

3.2.1 Polarisation du faisceau

Les ondes électro-magnétiques se propageant dans le vide sont polarisées perpendiculairement à la direction de propagation. On peut donc décrire la polarisation d'un photon (incident ou diffusé) dans une base de 2 vecteurs complexes.

On utilise habituellement la base (σ, π) , où σ est la polarisation linéaire perpendiculaire au plan de diffraction et π est la polarisation linéaire parallèle au plan de diffraction. σ est un vecteur commun aux 2 bases du photon incident et du photon diffusé, alors que π (pour le photon incident) et π' (pour le photon diffusé) sont différents. σ et π sont les vecteurs propres de l'opérateur de diffusion par la charge.

Lorsque l'on considère un faisceau de photons, la polarisation des photons n'est pas forcément uniforme. L'état de polarisation du faisceau se caractérise par sa matrice de polarisation μ . Dans la base (σ, π) , la matrice μ s'écrit en fonction des 3 coefficients de Stokes P_1 , P_2 et P_3 :

$$\mu = \frac{1}{2} \{ \mathbf{I} + \vec{P} \cdot \vec{\sigma} \} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 + P_1 & P_2 + iP_3 \\ P_2 - iP_3 & 1 - P_1 \end{pmatrix} \quad (3.9)$$

\mathbf{I} est la matrice identité, $\vec{P} = (P_1, P_2, P_3)$ est le vecteur des coefficients de Stokes, et $\vec{\sigma} = (\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3)$ est le vecteur des matrices de Pauli :

$$\sigma_1 = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \quad \sigma_2 = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad \sigma_3 = \begin{pmatrix} 0 & i \\ -i & 0 \end{pmatrix}$$

Les coefficients de Stokes définissent l'état de polarisation du faisceau [69, 70]. Ainsi son degré de polarisation est donné par $P_1^2 + P_2^2 + P_3^2$. S'il vaut 0, le faisceau n'est pas polarisé, alors que s'il vaut 1, il est parfaitement polarisé. Les états de polarisation remarquables sont :

1. Polarisation linéaire parfaite : $P_1^2 + P_2^2 = 1$ (et donc $P_3 = 0$). Plus particulièrement :
 - Polarisation linéaire σ parfaite : $P_1 = 1, P_2 = P_3 = 0$

$$\mu^\sigma = \frac{1}{2} (\mathbf{I} + \sigma_1) = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}$$

- Polarisation linéaire π parfaite : $P_1 = -1, P_2 = P_3 = 0$

$$\mu^\pi = \frac{1}{2} (\mathbf{I} - \sigma_1) = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$$

- Polarisation linéaire à 45° entre σ et π : $P_2 = \pm 1, P_1 = P_3 = 0$

$$\mu^{diag} = \frac{1}{2} (\mathbf{I} \pm \sigma_2) = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & \pm 1 \\ \pm 1 & 1 \end{pmatrix}$$

2. Polarisation circulaire : $P_1 = 0, P_2 = 0, P_3 = \pm 1$

$$\mu^\pm = \frac{1}{2} (\mathbf{I} \pm \sigma_3) = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & \pm i \\ \mp i & 1 \end{pmatrix}$$

Ecriture matricielle de la diffraction magnétique résonante

On utilisera par la suite les notations suivantes :

- F est la transformée de Fourier de f
- F_c est la transformée de Fourier de f_c
- F_m est la transformée de Fourier de f_m
- $\tilde{\rho}$ est la transformée de Fourier de la densité électronique ρ
- \vec{M} la transformée de Fourier du vecteur d'aimantation unitaire \hat{m} (cette transformée de Fourier inclut la densité des électrons résonants portant ces vecteurs).
- $*$ est l'opérateur de conjugaison matricielle

Dans la base de polarisation (σ, π) , l'amplitude de diffusion (Eq. 3.7) s'écrit [60] :

$$f = f_c + f_m = F_0 \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \hat{k}' \cdot \hat{k} \end{pmatrix} - iF_1 \begin{pmatrix} 0 & \hat{k}' \\ -\hat{k} & \hat{k}' \wedge \hat{k} \end{pmatrix} \cdot \hat{m} \quad (3.10)$$

En terme de transformées de Fourier, on a :

$$F = F_c + F_m = \tilde{\rho}F_0 \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \hat{k}' \cdot \hat{k} \end{pmatrix} - iF_1 \begin{pmatrix} 0 & \hat{k}' \\ -\hat{k} & \hat{k}' \wedge \hat{k} \end{pmatrix} \cdot \vec{M} \quad (3.11)$$

L'intensité diffusée s'écrit alors simplement :

$$I = Tr(F^* \mu F) \quad (3.12)$$

On peut décomposer I selon la décomposition naturelle de μ (Equation 3.9), en une partie I^0 que l'on obtient en faisceau non-polarisé, et une partie ΔI due à la polarisation du faisceau :

$$\begin{aligned} I(\vec{q}) &= I^0(\vec{q}) + \Delta I(\vec{q}) \\ &\equiv \frac{1}{2} Tr[F^* F] + \frac{1}{2} Tr[F^* (\vec{P} \cdot \vec{\sigma}) F] \end{aligned}$$

3.2.2 Expression de l'intensité selon les polarisations

Nous allons expliciter I pour les polarisations linéaires σ et π et les polarisations circulaires. Pour apprécier les différentes contributions de la densité de charge et de l'aimantation à l'intensité, il est utile de développer I selon la décomposition (3.10) de f :

$$\begin{aligned} I(\vec{q}) &= I_0(\vec{q}) + I_1(\vec{q}) + I_2(\vec{q}) \\ &\equiv \frac{1}{2} [Tr(F_c^* \mu F_c) + Tr(F_c^* \mu F_m + F_m^* \mu F_c) + Tr(F_m^* \mu F_m)] \end{aligned}$$

– **Polarisation linéaire σ**

$$\begin{aligned} I_0^\sigma(\vec{q}) &= |F_0|^2 |\tilde{\rho}|^2 \\ I_1^\sigma(\vec{q}) &= 0 \\ I_2^\sigma(\vec{q}) &= |F_1|^2 \left| \hat{k}' \cdot \vec{M} \right|^2 \end{aligned} \quad (3.13)$$

– **Polarisation linéaire π**

$$\begin{aligned} I_0^\pi(\vec{q}) &= |F_0|^2 |\tilde{\rho}|^2 (\hat{k} \cdot \hat{k}')^2 \\ I_1^\pi(\vec{q}) &= 2(\hat{k} \cdot \hat{k}') (\hat{k} \wedge \hat{k}') \cdot \Im \{ F_0 F_1^* \tilde{\rho} \vec{M}^* \} \\ I_2^\pi(\vec{q}) &= |F_1|^2 \left[\left| \hat{k} \cdot \vec{M} \right|^2 + \left| (\hat{k} \wedge \hat{k}') \cdot \vec{M} \right|^2 \right] \end{aligned} \quad (3.14)$$

– **Faisceau non polarisé** : $I^0 = 1/2 (I^\sigma + I^\pi)$

$$\begin{aligned} I_0^0(\vec{q}) &= |F_0|^2 |\bar{\rho}|^2 \frac{1 + (\hat{k} \cdot \hat{k}')^2}{2} \\ I_1^0(\vec{q}) &= (\hat{k} \cdot \hat{k}') (\hat{k} \wedge \hat{k}') \cdot \Im \{ F_0 F_1^* \bar{\rho} \vec{M}^* \} \\ I_2^0(\vec{q}) &= \frac{|F_1|^2}{2} \left[|\hat{k} \cdot \vec{M}|^2 + |\hat{k}' \cdot \vec{M}|^2 + |(\hat{k} \wedge \hat{k}') \cdot \vec{M}|^2 \right] \end{aligned} \quad (3.15)$$

– **Polarisation circulaire**

En polarisation circulaire, la matrice de polarisation s'écrit :

$$\mu^\pm = \frac{1}{2} [\mathbf{I} \pm \sigma_3]$$

Cette décomposition permet d'écrire l'intensité obtenue comme la somme d'un terme indépendant de l'hélicité et d'un terme changeant de signe avec l'hélicité. Le terme indépendant de l'hélicité correspond au faisceau non polarisé (I^0).

$$I^\pm(\vec{q}) = Tr[F^* F] \pm Tr[F^* \sigma_3 F] \equiv I^0(\vec{q}) \pm \Delta I^c(\vec{q})$$

ΔI^c est à son tour développé selon les contributions de la densité de charge et de l'aimantation :

$$\begin{aligned} \Delta I^c(\vec{q}) &= \Delta I_0^c(\vec{q}) + \Delta I_1^c(\vec{q}) + \Delta I_2^c(\vec{q}) \\ &\equiv \frac{1}{2} [Tr[F_c^* \sigma_3 F_c] + Tr[F_c^* \sigma_3 F_m + F_m^* \sigma_3 F_c] + Tr[F_m^* \sigma_3 F_m]] \\ \Delta I_0^c(\vec{q}) &= 0 \\ \Delta I_1^c(\vec{q}) &= [\hat{k} + (\hat{k} \cdot \hat{k}') \hat{k}'] \cdot \Re \{ F_0 F_1^* \bar{\rho} \vec{M}^* \} \\ \Delta I_2^c(\vec{q}) &= -|F_1|^2 \Im \left\{ [\hat{k}' \cdot \vec{M}] [(\hat{k} \wedge \hat{k}') \cdot \vec{M}^*] \right\} \end{aligned} \quad (3.16)$$

$$\Delta I_2^c(\vec{q}) = -|F_1|^2 \Im \left\{ [\hat{k}' \cdot \vec{M}] [(\hat{k} \wedge \hat{k}') \cdot \vec{M}^*] \right\} \quad (3.17)$$

Dichroïsme circulaire

En polarisation incidente circulaire, le terme ΔI^c s'ajoute ou se soustrait à l'intensité moyenne I^0 , selon l'hélicité de la polarisation. On définit le rapport dichroïque par :

$$\delta_c = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} = \frac{\Delta I^c}{I^0} \quad (3.18)$$

C'est l'outil le plus couramment utilisé pour quantifier $M(\vec{q})$, particulièrement en réflectivité.

Remarquons que, contrairement au cas du dichroïsme magnétique circulaire en absorption, inverser l'aimantation ne revient pas exactement à inverser la polarisation en diffraction, car ΔI comporte un terme quadratique en \vec{M} issu de l'interférence entre les canaux $\sigma \rightarrow \pi$ et $\pi \rightarrow \pi$, et I^0 comporte un terme linéaire en \vec{M} . Ces deux termes sont proportionnels à $\hat{k} \wedge \hat{k}'$ et disparaissent donc en transmission (aux petits angles).

Propriétés de symétrie en polarisation circulaire

Si l'on se place dans une région de l'espace réciproque où la contribution de la densité de charge est négligeable devant celle des moments magnétiques, seul le terme I_2^\pm , quadratique en

\vec{M} , contribue à l'intensité diffusée. \hat{m} étant une fonction réelle de l'espace direct, sa transformée de Fourier \vec{M} vérifie $\vec{M}(-\vec{q}) = \vec{M}^*(\vec{q})$. Comme $(\mu^+)^* = \mu^-$, l'inversion d'hélicité de la polarisation revient à inverser le vecteur de diffusion :

$$I^+(-\vec{q}) = \text{Tr} [F_m^*(-\vec{q})\mu^+ F_m(-\vec{q})] = \text{Tr} [(F_m^*(\vec{q})\mu^- F_m(\vec{q}))^*] = I^-(\vec{q}) \quad (3.19)$$

En géométrie de réflexion, on n'a accès qu'à la moitié de l'espace réciproque $q_z > 0$, donc on ne peut pas mesurer $I(\vec{q})$ et $I(-\vec{q})$, mais on peut comparer 2 points de l'espace réciproque de part et d'autre du pic spéculaire, c'est-à-dire $I(q_x, q_y, q_z)$ et $I(-q_x, -q_y, q_z)$. Ces deux intensités ne sont *a priori* pas égales. Néanmoins, la symétrie est vérifiée si on néglige en première approximation la structure verticale de l'échantillon : on est alors ramené à un problème bidimensionnel où l'on a la propriété équivalente : $I^+(-q_x, -q_y) = I^-(q_x, q_y)$.

Cet effet de symétrie est rapporté par H. Dürr et E. Dudzik [57, 58] dans une dimension de l'espace réciproque, puis par K. Chesnel [71] à 2 dimensions. Pour les deux premiers, la mesure en diffraction incohérente ne bénéficie pas de la résolution suffisante pour identifier des différences. Dans le troisième cas, l'intensité mesurée en diffraction cohérente est moyennée sur une large zone du détecteur, ce qui revient au même (cf. §6).

En géométrie de transmission ($q_z = 0$), cette symétrie a été observée en diffraction cohérente par Goedkoop *et al* sur un système de rubans magnétiques périodiques dans le FeGd (résultat non publié à notre connaissance).

Réflexivité spéculaire et petits angles

Explicitons les valeurs de l'intensité pour le faisceau réfléchi spéculairement, avec un angle d'incidence θ :

$$I^\sigma(0, 0, q_z) = |F_0|^2 |\tilde{\rho}|^2 + |F_1|^2 |M_y \cos \theta + M_z \sin \theta|^2 \quad (3.20)$$

$$I^\pi(0, 0, q_z) = |F_0|^2 |\tilde{\rho}|^2 \cos^2 2\theta - \sin 4\theta \Im \{F_0 F_1^* \tilde{\rho} M_x^*\} + |F_1|^2 \left[|M_x|^2 \sin^2 2\theta + |M_y \cos \theta - M_z \sin \theta|^2 \right] \quad (3.21)$$

$$I^0(0, 0, q_z) = |F_0|^2 |\tilde{\rho}|^2 \frac{3 + \cos 4\theta}{4} - \frac{\sin 4\theta}{2} \Im \{F_0 F_1^* \tilde{\rho} M_x^*\} + |F_1|^2 \left[|M_x|^2 \frac{\sin^2 2\theta}{2} + |M_y|^2 \cos^2 \theta + |M_z|^2 \sin^2 \theta \right] \quad (3.22)$$

$$\Delta I^c(0, 0, q_z) = 2\Re \{F_0 F_1^* \tilde{\rho} (M_y^* \cos^3 \theta - M_z^* \sin^3 \theta)\} + |F_1|^2 \sin 2\theta \Im \{M_x^* (M_y \cos \theta + M_z \sin \theta)\} \quad (3.23)$$

Ces formules sont données pour l'azimut ϕ de l'échantillon nul (Fig. A.1). Pour nos échantillons à périodicité latérale, il s'agit de la géométrie longitudinale (Fig. A.2).

Dans beaucoup de cas présentés dans ce manuscrit, la zone d'intérêt dans l'espace réciproque est proche du faisceau réfléchi spéculairement, par exemple quand on mesure la diffusion autour du pic spéculaire sur un détecteur bidimensionnel. Pour ces petits angles autour du pic spéculaire, les paramètres géométriques varient peu, de sorte que l'on peut utiliser les mêmes expressions avec les valeurs adéquates des transformées de Fourier.

3.3 Particularité des rayons X mous

L'approximation cinématique de la diffraction (Equation 3.8) s'applique quand les interactions entre les photons et la matière sont faibles, donc quand les effets de réfraction et d'absorption, ainsi que la diffusion magnétique et les diffusions multiples, sont négligeables.

On définit l'indice magnéto-optique n d'un matériau comme son indice de réfraction étendu aux effets d'absorption et de diffusion magnétique. Il est lié linéairement au facteur de diffusion électronique f par :

$$n = 1 - \delta - i\beta = 1 - \frac{r_e \lambda^2 \rho}{2\pi} f \quad (3.24)$$

Comme f , les indices δ et β dépendent de l'énergie et de la polarisation du faisceau, ainsi que de l'aimantation du matériau. Ils sont de l'ordre de 10^{-4} dans la gamme des rayons X durs et de 10^{-3} dans la gamme des rayons X mous. Aux seuils de résonance, l'absorption peut devenir très importante et l'indice δ varie très rapidement.

La conséquence directe de la forte absorption est l'impossibilité de sonder la matière au-delà de quelques centaines de nanomètres. Même en-dessous de cette épaisseur, la contribution au signal diffracté des atomes profonds est largement réduite par rapport à celle des atomes de surface.

Les effets de réfraction sont sensibles aux très petits angles, c'est-à-dire aux angles proches de l'angle critique. Or l'angle critique est d'un ordre de grandeur plus grand dans le domaine des rayons X mous que dans celui des rayons X durs. Par exemple, pour une couche de Palladium, au seuil L_3 du Fer, il est d'environ 4.3° .

Il faut donc tenir compte de ces effets magnéto-optiques.

3.3.1 Absorption et réfraction

On considère une onde plane se propageant dans le vide avec un vecteur d'onde \vec{k}_0 , de module $k_0 = 2\pi/\lambda$. D'après les lois de l'électrodynamique, sa propagation dans un matériau d'indice complexe n se fait avec un vecteur d'onde complexe \vec{k} de module nk_0 . En outre, les conditions de continuité aux interfaces assurent que seule la composante perpendiculaire à l'interface est modifiée. On en déduit la loi de Snell-Descartes qui relie l'angle d'incidence θ et l'angle de réfraction θ_1 :

$$n \cos \theta_1 = \cos \theta \quad (3.25)$$

La composante k_z du vecteur d'onde réfracté est :

$$k_z = k_0 (n^2 - \cos^2 \theta)^{\frac{1}{2}} \approx k_0 (\sin^2 \theta - 2\delta - 2i\beta)^{\frac{1}{2}} \quad (3.26)$$

Grands angles

Quand l'incidence est suffisamment grande par rapport à l'angle critique, on peut utiliser l'approximation :

$$k_z \approx k_0 \left(\sin \theta - \frac{\delta + i\beta}{\sin \theta} \right) \quad (3.27)$$

La partie absorption du terme correctif est bien connue. On l'écrit souvent $\exp(-\frac{\mu z}{2 \sin \theta})$, où $\mu = \frac{4\pi\beta}{\lambda}$ est le coefficient d'absorption linéaire.

La partie réelle de la correction ($-\delta/\sin \theta$) est responsable du déplacement des pics de Bragg en diffraction anormale avec des X durs.

L'approximation 3.27 est valable quand $\sin^2 \theta \gg 2(\delta + i\beta)$. Or δ et β sont de l'ordre de 10^{-3} dans la gamme des rayons X mous. En particulier, à la résonance, l'absorption devient importante : β atteint 5×10^{-3} dans le FePd et 8×10^{-3} dans le Fer au seuil L_3 du Fer. Dans de tels cas, l'approximation 3.27 s'avère inappropriée, sauf aux très grands angles (pour des expériences de rétrodiffusion par exemple).

On s'en tiendra donc à la formulation 3.26

3.3.2 Transmission et réflexion

À l'interface entre le vide et un matériau (ou entre deux matériaux), l'onde se propageant dans le matériau (1) vers le matériau (2) voit son amplitude complexe modifiée à l'interface par le coefficient de transmission t_{12} . Il existe également une onde réfléchie par l'interface, dont l'amplitude complexe est déterminée par rapport à l'onde incidente par le coefficient de réflexion r_{12} . Ces coefficients de transmission et de réflexion sont donnés en fonction de l'angle d'incidence θ et de la polarisation de l'onde (σ ou π) par les relations de Fresnel :

$$r_{12} = \frac{\xi_1 - \xi_2}{\xi_1 + \xi_2} \quad (3.28)$$

$$t_{12} = \frac{2\xi_1}{\xi_1 + \xi_2} \quad (3.29)$$

où les ξ_i sont définis ainsi, en fonction de la polarisation de l'onde :

$$\xi_i^\sigma = \sqrt{n^2 - \cos^2 \theta} \quad (3.30)$$

$$\xi_i^\pi = \frac{\sqrt{n^2 - \cos^2 \theta}}{n^2} \quad (3.31)$$

On peut inclure les effets de la rugosité de l'interface en suivant le modèle proposé par Croce & Nénot [14, 15], qui corrige les équations 3.29 par un terme dépendant de la variance σ^2 de la distribution de hauteur à l'interface :

$$r_{12} = \frac{\xi_1 - \xi_2}{\xi_1 + \xi_2} \exp(-2k_{z,1}k_{z,2}\sigma^2) \quad (3.32)$$

$$t_{12} = \frac{2\xi_1}{\xi_1 + \xi_2} \exp\left(\frac{1}{2}(k_{z,1} - k_{z,2})^2\sigma^2\right) \quad (3.33)$$

La rugosité de l'interface augmente la transmission et diminue la réflexion.

3.3.3 Modèle de diffraction magnétique des rayons X mous

Nous présentons ici le modèle que nous avons utilisé pour modéliser la diffraction magnétique de nos échantillons. Ce modèle est basé sur une description cinématique de la diffraction, mais inclut les effets optiques que nous venons de mentionner.

La structure classique de nos échantillon est composée d'une couche d'alliage magnétique déposée sur une couche tampon épaisse de Palladium ou de Platine, et recouverte d'une fine couche de protection également en Palladium ou en Platine.

Les hypothèses sur lesquelles nous basons notre modèle sont les suivantes :

- La diffraction (magnétique ou de charge) hors spéculaire a lieu uniquement dans la couche magnétique. On suppose donc que, même si les échelles de rugosités de la couche tampon et de la couche de protection sont du même ordre que celle des domaines magnétiques, leur contribution peut être négligée. Dans le cas de la couche de protection, cette hypothèse est justifiée par sa fine épaisseur. Dans le cas de la couche tampon, on suppose que l'absorption de la couche magnétique est suffisamment forte pour que les couches inférieures ne contribuent pas. Comme on travaille à un seuil de résonance de la couche magnétique, l'absorption est effectivement très forte (la longueur d'absorption $1/\mu$ au seuil L_3 du Fer dans une couche de FePd est de l'ordre de 30 nm).
- L'absorption est suffisamment forte pour qu'aucune onde ne parvienne à l'interface inférieure de la couche tampon. Donc aucune onde réfléchie ne provient de la couche tampon.
- La probabilité d'un événement de diffusion d'un photon par la couche magnétique est suffisamment faible pour que l'on n'ait pas besoin de considérer les diffusions multiples. Au delà de la validité de cette hypothèse, il convient d'utiliser l'approximation de Born de l'onde déformée (*Distorted Wave Born Approximation*, DWBA) pour décrire la diffraction magnétique. Un tel modèle a récemment été développé par Lee *et al* pour modéliser l'effet des rugosités structurale et magnétique [72, 73].

Le modèle consiste donc en une onde incidente transmise à travers la couche de protection, diffusée dans les couches magnétiques, puis retransmise à travers la couche de protection. La diffusion dans les couches magnétiques est modélisée par un calcul cinématique, incluant les corrections de réfraction et d'absorption sur les vecteurs d'onde mentionnés plus haut.

Par la suite, les vecteurs d'onde et leurs composantes seront indicés par "0" pour le vide, "1" pour la couche de protection, et "2" pour la couche magnétique.

Les vecteurs d'onde dans le vide de l'onde incidente et de l'onde émergente sont respectivement \vec{k}_0 et \vec{k}'_0 . Les composantes perpendiculaires des vecteurs d'onde dans les couches sont déterminées à partir de l'équation 3.26. θ et θ' sont les angles respectivement d'incidence et d'émergence.

L'onde incidente et l'onde diffusée doivent toutes deux traverser la couche de protection. Le coefficient de transmission en amplitude $T(\theta)$ pour l'onde incidente et $T'(\theta')$ pour l'onde diffusée s'expriment à partir des coefficients de Fresnel aux interfaces "0-1" et "1-2" et de l'épaisseur d_1 de la couche de protection :

$$T(\theta) = \frac{t_{01}t_{12} \exp(ik_{1,z}d_1)}{1 - r_{10}r_{12} \exp(2ik_{1,z}d_1)} \quad (3.34)$$

$$T'(\theta') = \frac{t_{21}t_{10} \exp(ik'_{1,z}d_1)}{1 - r_{12}r_{10} \exp(2ik'_{1,z}d_1)} \quad (3.35)$$

La diffusion dans la couche est décrite de manière cinématique, à partir des vecteurs d'ondes adéquats. Le vecteur de diffusion s'écrit $\vec{q} = \vec{k}'_2 - \vec{k}_2$. Il est différent du vecteur de diffusion que l'on observe dans le vide $\vec{q}_0 = \vec{k}'_0 - \vec{k}_0$. \vec{q} intègre en particulier une partie imaginaire qui décrit l'absorption sur le trajet optique.

L'amplitude diffusée par la couche magnétique s'écrit simplement, à partir des facteurs de diffusion électronique f :

$$F(\vec{q}) = \int f(\vec{r}) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} d\vec{r} \quad (3.36)$$

On aboutit finalement à l'intensité mesurée :

$$I(\vec{q}) = \frac{1}{\sin\theta} \left| T(\theta)T(\theta') \int f(\vec{r})e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} d\vec{r} \right|^2 \quad (3.37)$$

Le préfacteur $1/\sin\theta$ rend compte de l'effet d'éclairement.

Ce modèle sera utilisé par la suite pour rendre compte de la diffraction magnétique des bicouches et tricouches de FePd.

Chapitre 4

Analyse de configurations magnétiques périodiques dans le FePd

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 3.3, la diffraction des rayons X mous permet de mesurer le module au carré de la Transformée de Fourier modifiée du facteur de diffusion atomique. En ajustant l'énergie du faisceau incident à un seuil de résonance approprié, le facteur de diffusion atomique acquiert une sensibilité au moment magnétique local, et cette dépendance est en première approximation linéaire. L'intensité diffractée contient donc une information assez complexe sur l'arrangement des moments magnétiques.

La réflectivité magnétique permet d'accéder au profil en profondeur de l'aimantation nette [1, 2]. Dans le cas de nos échantillons périodiques de FePd, on pourrait ainsi mesurer le profil de la partie constante de la composante de l'aimantation parallèle aux rubans. Cela n'a pas été fait, mais cette composante a été mesurée par réflectivité de neutrons polarisés (§2.5.1).

Nous allons montrer que, pour des échantillons à périodicité latérale, la diffraction magnétique hors spéculaire permet d'accéder au profil en profondeur des composantes de Fourier dans le plan.

Les bicouches et tricouches que nous avons présentées dans les chapitres précédents vont nous permettre d'illustrer ce propos.

Les résultats présentés ici sont publiés dans [74, 75].

La diffraction magnétique des bicouches et tricouches de FePd a été mesurée sur la ligne 1.1 du Synchrotron Radiation Source (SRS) à Daresbury (Royaume Uni). Les mesures ont été faites dans un diffractomètre 2 cercles sous vide, décrit dans [76]. Les échantillons étaient placés en géométrie transverse, c'est-à-dire avec l'axe principal des rubans placé perpendiculairement au faisceau incident (cf. Fig. A.3). Le faisceau incident était polarisé linéairement σ , et son énergie choisie au seuil L_3 du Fer. L'intensité diffractée était mesurée dans le plan d'incidence par une photodiode Silicium.

4.1 Périodicité magnétique dans les bicouches et tricouches de FePd

En balayant l'angle d'incidence θ , le détecteur restant fixe, on parcourt un arc de cercle dans le sous-espace réciproque (q_x, q_z) . Ce balayage permet d'intercepter, de part et d'autre du pic spéculaire, deux satellites correspondant à la périodicité magnétique de l'échantillon (Fig. 4.1).

Une fois extraits du fond diffus, leur centre correspond à la période magnétique p_{mag} , et leur

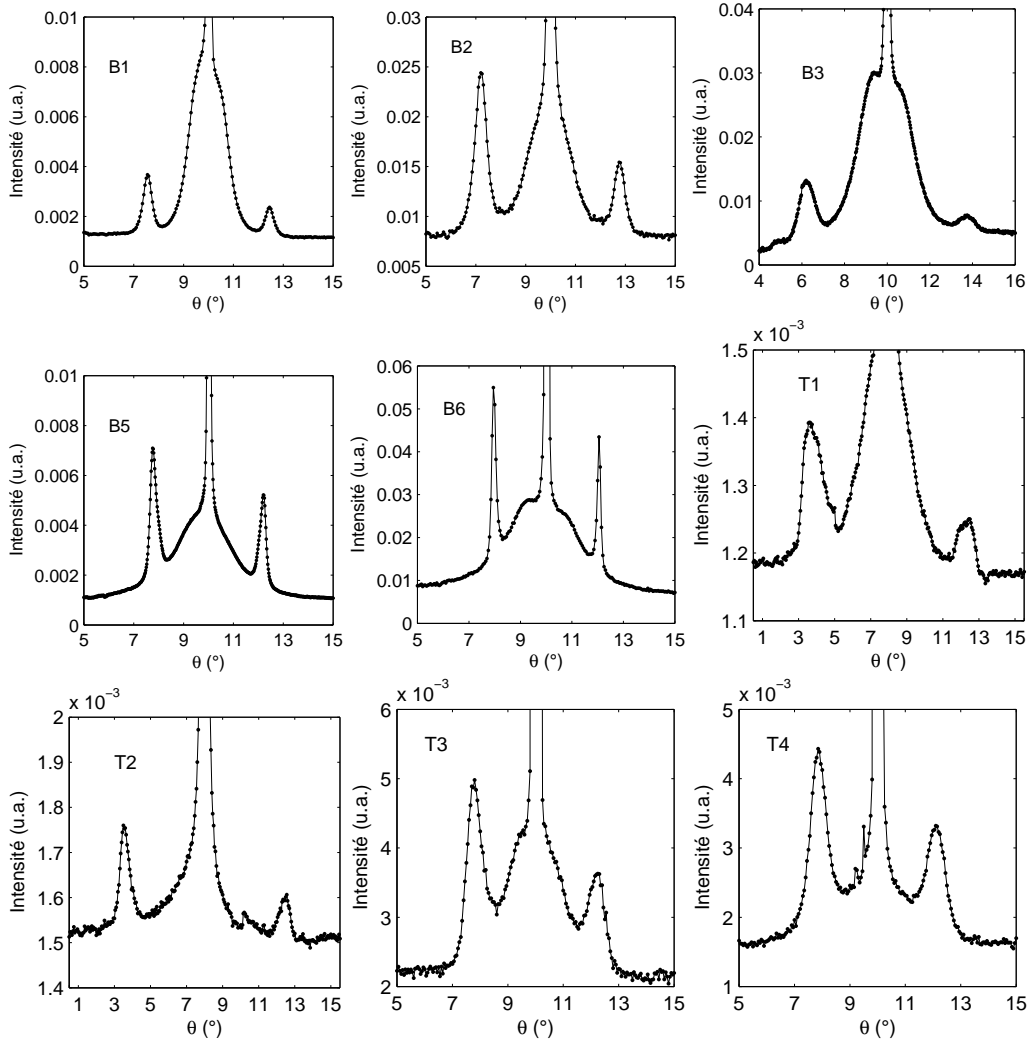


FIG. 4.1 – Rocking curves mesurées sur les bicouches et tricouches en géométrie transverse

largeur à la dispersion de cette période, à laquelle correspond une longueur de corrélation Λ_x :

$$q_x = \frac{2\pi}{p_{mag}} \quad \Delta q_x = \frac{2\pi}{\Lambda_{mag}}$$

D'autre part, le diffus sous le pic spéculaire nous renseigne sur la rugosité structurale. Dans une approximation assez grossière, nous avons modélisé ce diffus par une gaussienne dont l'écart type nous donne une estimation de la rugosité latérale ξ_h .

Le Tableau 4.1 récapitule les périodes magnétiques mesurées en MFM, prédites par les simulations micromagnétiques GL_FFT, et mesurées en SXRMS, ainsi que les longueurs de corrélation mesurées en SXRMS.

Les périodes magnétiques mesurées en MFM et en SXRMS correspondent assez bien. L'écart entre les deux valeurs ne dépasse pas 10%, ce qui est raisonnable compte tenu du fait que la mesure MFM est une mesure locale, contrairement à la SXRMS qui moyenne les propriétés sur une large zone. Toutefois, on remarque que la période mesurée en MFM est toujours légèrement plus grande que celle mesurée en SXRMS. De récentes mesures sur des échantillons nanostructurés laissent supposer un défaut de calibration du microscope.

Echantillon	p_{MFM}	p_{GLFFT}	p_{SXRMS}	Λ_{mag}	R_σ	ξ_h
B1	133 nm	134 nm	121 nm	790 nm	2.12	71
B2	107 nm	115 nm	104 nm	550 nm	2.90	
B3	85 nm	83 nm	76 nm	360 nm	4.42	40
B4			-			
B5	145 nm	115 nm	130 nm	930 nm	1.68	
B6	154 nm	134 nm	141 nm	1050 nm	1.39	
T1	105 nm		82 nm	320 nm	3.0	
T2	92 nm		81 nm	580 nm	2.2	
T3	151 nm	141 nm	128 nm	480 nm	2.1	47
T4	157 nm	134 nm	134 nm	430 nm	1.5	40

TAB. 4.1 – Récapitulatif des périodes magnétiques mesurées en MFM (p_{MFM}), en SXRMS (p_{SXRMS}), et obtenues par simulation micromagnétique (p_{GLFFT}). La longueur de corrélation magnétique Λ_{mag} , le rapport d'asymétrie R_σ des satellites magnétiques et la taille caractéristique de rugosité latérale ξ_h mesurée en SXRMS sont également donnés.

4.2 Asymétrie des satellites magnétiques en géométrie transverse

On remarque sur la Figure 4.1 que les deux satellites magnétiques ne sont pas symétriques. Cette asymétrie dans l'intensité s'explique par 3 contributions :

1. Le facteur d'éclairement, $1/\sin\theta$
2. Le facteur de transmission à travers la couche de protection en Palladium, $|T(\theta)T'(\theta')|^2$, explicité par l'équation 3.35
3. La dépendance géométrique du facteur de diffusion magnétique

En polarisation incidente σ , les amplitudes diffusées par la charge et par le moment magnétique n'interfèrent pas, car leurs polarisations sont orthogonales (σ pour la charge et π pour le magnétisme). L'intensité totale est donc la somme de leurs intensités, et non de leurs amplitudes. Par conséquent, on peut séparer ces deux contributions en extrayant l'intensité des satellites magnétiques du fond diffus lié au pic spéculaire.

D'après l'Equation 3.13, et en incluant les effets d'éclairement et de transmission à travers la couche de Palladium, l'intensité des satellites magnétiques s'exprime comme :

$$I(\vec{q}) = \frac{|F_1|^2}{\sin\theta} \left| T(\theta)T'(\theta')\hat{k}' \cdot \int \hat{m}(\vec{r}) \exp(i\vec{q}\cdot\vec{r}) d\vec{r} \right|^2 \quad (4.1)$$

\vec{q} est le vecteur de diffusion dans la couche magnétique, explicité dans le chapitre §3.3.3.

Par la suite, les indices "g" et "d" se réfèrent au satellite gauche (faible incidence, grande émergence) et au satellite droit (grande incidence, faible émergence).

Le rapport d'asymétrie $R_\sigma = \frac{I_g}{I_d}$ est le produit de 3 contributions :

$$R_E = \frac{\sin\theta_d}{\sin\theta_g} \quad (4.2)$$

$$R_T = \frac{|T(\theta_g)T'(\theta'_g)|^2}{|T(\theta_d)T'(\theta'_d)|^2} \quad (4.3)$$

$$R_M = \frac{\left| \hat{k}'_g \cdot \int \hat{m}(\vec{r}) \exp(i\vec{q}_g \cdot \vec{r}) d\vec{r} \right|^2}{\left| \hat{k}'_d \cdot \int \hat{m}(\vec{r}) \exp(i\vec{q}_d \cdot \vec{r}) d\vec{r} \right|^2} \quad (4.4)$$

On voit que le rapport d'asymétrie comporte une information sur la configuration magnétique, due à la dépendance géométrique en $\hat{k}' \cdot \hat{m}$ du facteur de diffusion magnétique. Cette information ne suffit pas à elle seule à retrouver le profil magnétique, mais nous allons voir qu'en nous aidant de simulations micromagnétiques, on peut espérer accéder à certains paramètres.

Nous avons donc essayé de simuler le rapport d'asymétrie de la bicouche B1, en utilisant le modèle présenté ci-dessus et les configurations micromagnétiques calculées par le code GL_FFT. Les paramètres que nous avons utilisés dans les simulations de GL_FFT sont les paramètres standards connus pour l'alliage FePd, à savoir : $\mu_0 M_s = 1.32$ Teslas et $A_{ex} = 7 \times 10^{-12}$ J/m. Il reste à déterminer la constante d'anisotropie de l'alliage. Nous avons supposé que l'anisotropie dans la couche déposée à température ambiante est nulle, afin de ne garder comme paramètre que l'anisotropie de la couche déposée à 400°C.

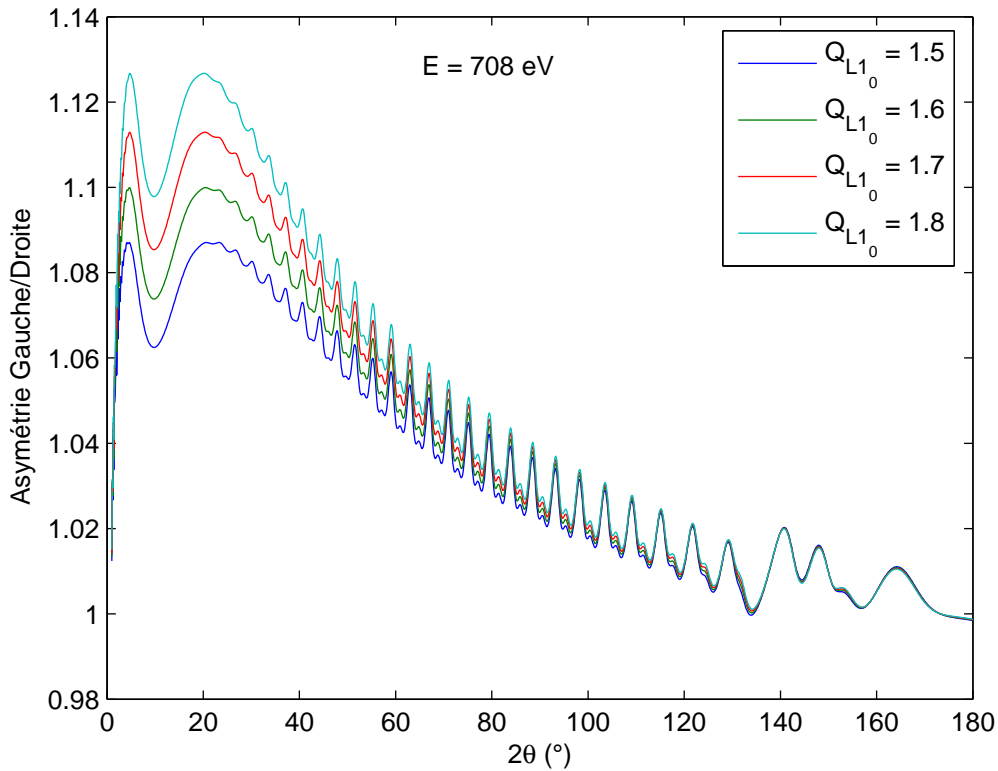


FIG. 4.2 – Dépendance du rapport d'asymétrie R_M en fonction de la position du détecteur (" 2θ "), pour 4 valeurs acceptables du facteur de qualité Q_{L1_0} dans la couche ordonnée.

L'asymétrie due à la configuration magnétique dépend des vecteurs émergents pour les deux satellites (Eq. 4.4). Or, plus l'angle 2θ du détecteur est grand, plus les satellites sont proches du pic spéculaire et donc proches l'un de l'autre. Les angles d'émergence θ' et vecteurs d'onde émergents \vec{k}' se rapprochent, et le contraste diminue, comme le montre la Figure 4.2. On augmente donc la sensibilité au contraste magnétique en diminuant au maximum l'angle du détecteur, ce qui rapproche par ailleurs la position du satellite gauche de l'angle critique. Les modula-

tions du rapport R_M sont liées à la structure en profondeur de l'échantillon. Cet aspect est discuté dans la section suivante.

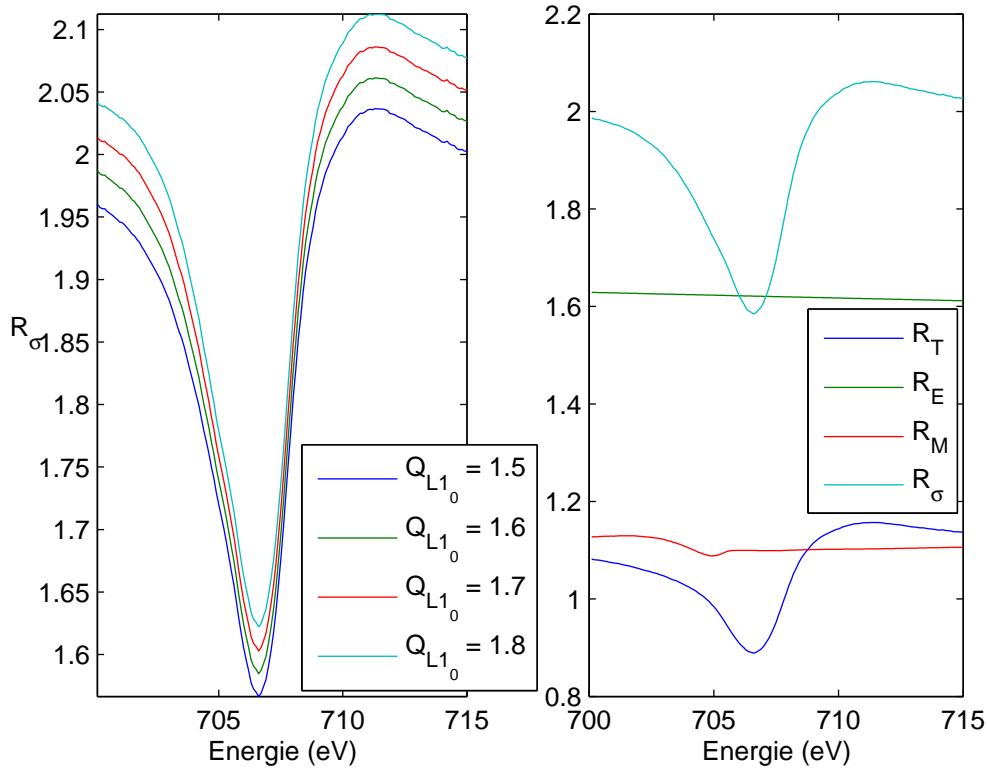


FIG. 4.3 – Dépendance du rapport d'asymétrie et de ses composantes en fonction de l'énergie ($2\theta = 20^\circ$).

Pour extraire le rapport R_M , qui contient l'information magnétique, il faut bien connaître les deux autres contributions. Or le facteur de transmission dépend fortement de l'énergie du faisceau incident (Fig. 4.3, droite). En effet, les facteurs de diffusion atomique du Fer varient très vite au voisinage de la résonance. Le contraste optique entre la couche protectrice de Palladium et l'alliage FePd est affecté par cette variation, ce qui modifie les coefficients de Fresnel de transmission et de réflexion.

Les variations des facteurs de diffusion atomique dans l'alliage modifient également les interférences au sein de l'alliage, ainsi que l'absorption, ce qui s'exprime sur le rapport d'asymétrie R_M , mais dans une mesure moindre que sur R_T . Enfin, les variations d'énergie ont pour seul effet sur R_E de changer légèrement l'angle où l'on observe le satellite périodique, par l'intermédiaire du changement de longueur d'onde.

Le rapport que nous avons mesuré expérimentalement pour l'échantillon B1, obtenu avec $2\theta = 20^\circ$ après extraction des satellites et intégration, est de 2.12. On voit sur la Figure 4.3 que la valeur que l'on simule à 708 eV est de l'ordre de 1.9, ce qui est assez proche, compte tenu du fait que le calcul repose sur une configuration magnétique simulée.

Notons que les configurations magnétiques présentées sur les Figures 4.2 et 4.3 sont très semblables et que la variation du rapport R_M vers $2\theta = 20^\circ$ est pourtant déjà de quelques pourcents. Les valeurs expérimentales montrent par ailleurs que les deux bicouches qui ont la couche $L1_0$ sous la couche désordonnée ont un rapport d'asymétrie plus faible que les autres échantillons.

La différence d'asymétrie est certainement très importante si l'on compare les configurations magnétiques d'un échantillon à très forte anisotropie et d'un échantillon de type "rubans faibles", dans lesquels les moments magnétiques oscillent autour de l'axe des rubans sans jamais atteindre la direction perpendiculaire.

On peut donc penser que cette mesure permet d'estimer correctement l'anisotropie d'un échantillon simple, comme une couche mince seule de FePd.

4.3 Réflectivité magnétique

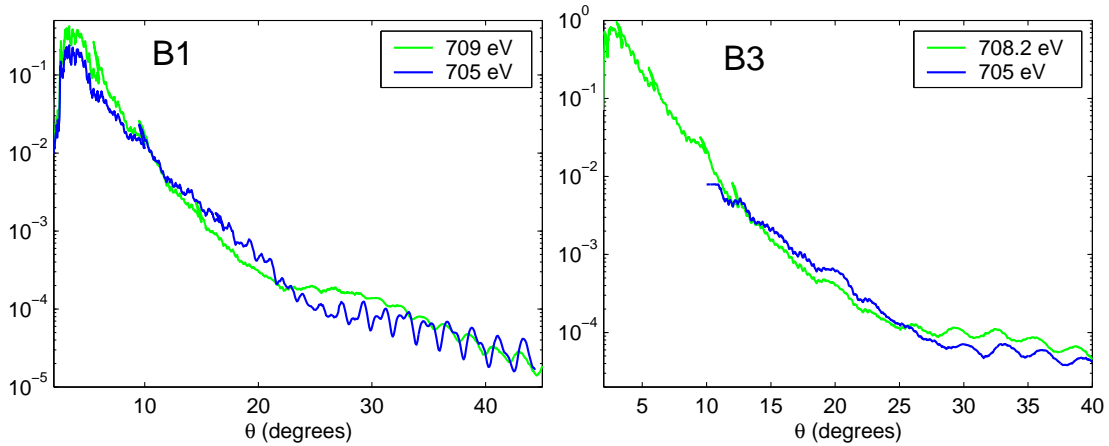


FIG. 4.4 – Réflectivité des échantillons B1 et B3, au seuil L_3 du Fer et hors seuil de résonance, en polarisation incidente σ et géométrie transverse.

En réflectivité, on mesure le profil en profondeur de l'indice magnéto-optique, ou plus exactement sa composante moyenne dans le plan. La réflectivité magnétique de rayons X mous est ainsi un outil puissant pour étudier les profil d'aimantation dans les couches minces [77, 52, 53]. Or dans les configurations de domaines en rubans alignés, seule la composante des moments magnétiques parallèle à l'axe des rubans (m_y) a une partie constante. En géométrie transverse et polarisation incidente σ , cette composante n'est pas mesurée : on s'attend à observer des effets anomaux uniquement dus à la partie de charge de l'indice magnéto-optique.

Effectivement, la réflectivité mesurée sur l'échantillon B3 (Fig. 4.4) présente les mêmes franges de Kiessig caractéristiques de l'épaisseur totale de FePd (20 nm), au seuil de résonance et hors seuil.

Sur l'échantillon B1, les réflectivités mesurées à la résonance et hors résonance montrent des franges de Kiessig différentes. Hors résonance, on distingue deux oscillations dues aux deux couches de FePd de 30 nm. A la résonance, l'absorption devient importante, de sorte que les photons ne parviennent plus à l'interface inférieure des couches de FePd avec la couche tampon : seules les interférences entre les deux interfaces de la couche supérieure de FePd produisent des oscillations. Cette courbe met en évidence l'existence d'une interface optique entre les deux

couches de FePd. Cette observation est cohérente avec les mesures de réflectivité des rayons X durs (cf. §1.4).

Les courbes de réflectivité des autres échantillons de la série sont très peu structurées, et sont très semblables à la résonance et hors résonance, comme dans le cas de B3. Dans certains cas, la forte absorption à la résonance masque les franges principales dues à l'épaisseur totale de FePd, ce qui permet de deviner des franges dues à l'interface entre les différentes couches de FePd, comme dans l'échantillon B1. Ces franges sont cependant toujours plus faibles que dans le cas de B1.

4.4 Tiges magnétiques

4.4.1 Mesures expérimentales

La coordonnée q_x du vecteur \vec{q} à laquelle on observe le satellite magnétique est déterminée par la période magnétique p_{mag} . En gardant cette coordonnée fixée, on peut sonder l'espace réciproque en parcourant une "tige" dans la direction q_z , ce qui permet de sonder la structure de l'échantillon selon l'axe z . On parlera de "tiges magnétiques", par analogie aux tiges de troncation mesurées sur les cristaux avec des rayons X durs [78].

Expérimentalement, il faut asservir les moteurs correspondant à l'angle d'incidence θ et à l'angle du détecteur $2\theta_0$ pour garder q_x constant tout en faisant varier q_z :

$$q_x = k'_x - k_x = \frac{2\pi}{\lambda} (\cos(2\theta_0 - \theta) - \cos\theta) = \text{constante} \quad (4.5)$$

En comparant les mêmes tiges mesurées à la résonance L_3 du Fer et hors résonance, on vérifie que le signal mesuré est essentiellement dû à l'intensité magnétique. C'est en accord avec les balayages en θ présentés précédemment, qui montrent que le fond d'intensité sous les satellites magnétiques est faible. On mesure donc essentiellement le profil en z de la transformée de Fourier 1D dans la direction x du moment magnétique. En polarisation incidente σ , on mesure $\hat{k}' \cdot \vec{M}$, donc les composantes m_x et m_z .

Les oscillations que l'on observe sur les tiges magnétiques révèlent les interfaces entre les couches de FePd et les couches de Pd (couche de protection, couches découplantes dans T3 et T4, et couche tampon). Ces interfaces sont vues grâce au contraste des indices magnéto-optiques.

Ainsi, on observe sur les tiges magnétiques de B3 et T2 des oscillations correspondant à l'épaisseur totale de FePd (respectivement 20 et 30 nm). Sur les tiges magnétiques de T3 et T4, les oscillations correspondent aux épaisseurs des différentes couches de FePd (10 et 20 nm).

Sur les tiges magnétiques des échantillons dont l'épaisseur totale de FePd d'un seul tenant (sans couche découplante) est supérieure à 30 nm, on n'observe aucune oscillation, à cause de la très forte absorption à la résonance : la longueur d'absorption, que l'on définit par $l_{abs} = \lambda/4\pi\beta$, est de l'ordre de 30 nm dans le FePd au seuil L_3 du Fer, ce qui signifie qu'en incidence normale, l'intensité de l'onde est réduite d'un facteur $1/e$ après 30 nm. L'effet est amplifié par l'incidence non perpendiculaire.

Sur la tige magnétique de l'échantillon B1 (Fig. 4.5), on observe des oscillations semblables à celles mesurées en réflectivité (Fig. 4.4), correspondant à une épaisseur d'environ 30 nm. Cela confirme l'existence de l'interface magnéto-optique entre les deux couches de 30 nm de FePd.

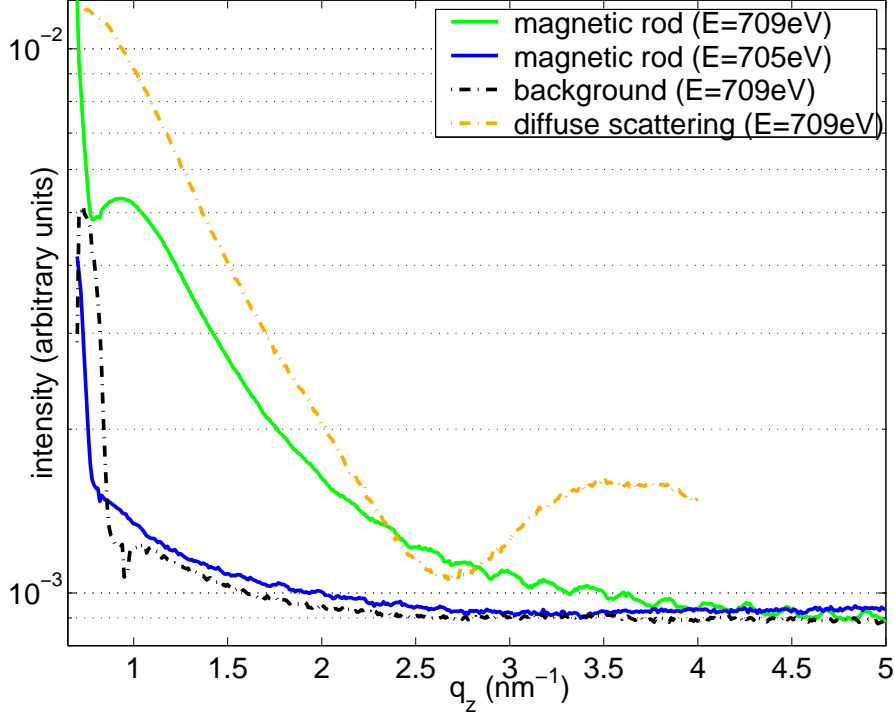


FIG. 4.5 – Tige magnétique de l'échantillon B1, en géométrie transverse et polarisation incidente σ . Le signal magnétique mesuré à la résonance (709 eV) disparaît hors résonance (705 eV). La mesure d'une tige dans le diffus proche du spéculaire permet d'observer une oscillation due à la couche de protection (~ 2.5 nm de Pd).

4.4.2 Modélisation

Nous avons essayé de rendre compte de ces tiges magnétiques en les modélisant à partir du modèle proposé par l'équation 3.37. Nous avons en outre inclus l'effet de la rugosité de l'interface entre le vide et la couche de protection par l'intermédiaire d'un facteur de Debye-Waller $\exp(-\sigma^2 q_z^2)$ dont le paramètre σ^2 est à ajuster. Nous avons négligé la rugosité des autres interfaces. Les mesures RHEED au cours du dépôt, ainsi que les ajustement de la structure à partir des mesures de réflectivité des rayons X durs et des neutrons, laissent penser que cette approximation est valable. En ajoutant un fond constant I_0 et une constante multiplicative expérimentale C , le modèle que nous avons utilisé s'écrit donc :

$$I(\vec{q}) = I_0 + \frac{C}{\sin \theta} \left| T(\theta) T'(\theta') \hat{k}' \cdot \int F_1 \hat{m}(\vec{r}) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} \right|^2 e^{-\sigma^2 q_z^2} \quad (4.6)$$

L'intégrale se fait ici dans les directions x et z , car le système est invariant selon y et observé à $q_y = 0$.

Il est possible que le terme de résonance F_1 du Fer soit légèrement différent dans les deux couches, car il est directement lié à la structure électronique locale. On peut donc penser qu'il est sensible à l'anisotropie magnéto-cristalline. Cette question n'a, à notre connaissance, jamais été étudiée théoriquement ni observée expérimentalement. Faute d'éléments de réponse, nous avons considéré que F_1 était identique dans les deux couches.

Les calculs ont été faits à partir des résultats de simulation micromagnétique obtenus en

supposant nulle l'anisotropie de la couche désordonnée et avec un facteur de qualité $Q = 1.6$ pour la couche ordonnée. L'intégrale dans l'Equation 4.6 est remplacée par une somme discrète sur les noeuds du réseau. La somme dans la direction x , pour $q_x = 2\pi/L_{mag}$, donne simplement le coefficient d'ordre 1 de la transformée de Fourier discrète, pour chaque altitude z :

$$\tilde{m}(z) = \frac{1}{n_x} \sum_{j=1, n_x} \hat{m}(x, z) e^{2i\pi \frac{j}{n_x}}$$

Il reste à calculer la somme dans la direction z , qui n'est pas une transformée de Fourier.

Le maillage utilisé pour la configuration micromagnétique, en éléments dont la taille est de l'ordre du nanomètre, induit des pics de surstructures artificiels dans l'espace réciproque. Ils ne sont pas gênants dans la direction q_x , car le nombre d'éléments n_x pour décrire une période magnétique est assez grand (128 le plus souvent pour ces échantillons), et le pic artificiel est n_x fois plus loin de l'origine de l'espace réciproque que le satellite magnétique. En revanche, il apparaît dans la direction q_z pour $q_z \approx 2\pi \text{ nm}^{-1}$, c'est-à-dire assez près de la zone explorée, qui s'étend jusqu'à $q_z = 5 \text{ nm}^{-1}$ pour certains échantillons. Le pied de ce pic artificiel induit une déformation sensible sur l'intensité modélisée. Il faut donc essayer de décrire la densité de moments magnétiques à une échelle inférieure à celle de la cellule micromagnétique ($\Delta z \sim 1 \text{ nm}$), par exemple à l'échelle cristallographique.

A l'échelle cristallographique, l'orientation des moments magnétiques est uniforme, et leur agencement correspond à celui des atomes de Fer. Sur les tiges magnétiques, $q_x L_{mag} = 2\pi$ et L_{mag} est environ 300 fois plus grand que le paramètre de maille. Donc la structure dans le plan de la maille cristallographique n'a aucune importance et les photons voient des plans atomiques homogènes. Dans la direction q_z , les mesures s'étendent jusqu'à des valeurs de l'ordre de 5 nm^{-1} pour lesquelles $q_z a_0$ est de l'ordre de $\pi/3$. L'agencement des moments magnétiques à l'échelle cristallographique a donc une très légère influence sur les tiges magnétiques vers les grandes valeurs de q_z .

Dans la couche désordonnée, les atomes de Fer et de Pd occupent aléatoirement les sites d'un réseau Cubique à Face Centrées de paramètre de maille a_0 . Les plans atomiques ont donc une densité de moments magnétiques proportionnelle à $1/a_0^2$, ces plans étant espacés de $a_0/2$. Dans la structure tétragonale $L1_0$, en supposant l'ordre chimique parfait, les atomes de Fer et de Palladium forment des plans alternés, donc les moments magnétiques occupent des plans de densité $2/a_{\parallel}^2$ espacés de a_{\perp} . Les facteurs de structure des couches micromagnétiques sont donc :

$$S_{A1} = \frac{1}{a_0^2} \frac{\sin(q_z \Delta z / 2)}{\sin(q_z a_0 / 4)} \quad S_{L1_0} = \frac{2}{a_{\parallel}^2} \frac{\sin(q_z \Delta z / 2)}{\sin(q_z a_{\perp} / 2)}$$

Ces facteurs de structure permettent le raccord d'échelle entre l'échelle des plans atomiques et l'échelle des cellules micromagnétiques grâce à un rapport de sinus. Ce raccord est approximatif, car la taille de la cellule micromagnétique Δz n'est pas un multiple entier des distances inter-plans magnétiques $a_0/2$ et a_{\perp} . Il ne décrit donc probablement pas très bien les interférences aux valeurs de q_z comprises entre $2\pi/\Delta z$ et $2\pi/a_0$, mais cela repousse le pic de surstructure artificiel vers un pic de Bragg réel, loin du domaine mesuré. En outre, cette description prend en compte la différence de densité de moments magnétiques, ce qui est nécessaire pour reproduire les oscillations visibles sur la tige magnétique de l'échantillon B1.

Finalement, l'intensité est modélisée par l'équation suivante :

$$I(\vec{q}) = I_0 + \frac{C}{\sin\theta} |T(\theta)T'(\theta')F_1|^2 \sin^2\left(q_z \frac{\Delta z}{2}\right) e^{-\sigma^2 q_z^2} \times \left| \hat{k}' \cdot \left[\sum_k \frac{\tilde{m}(z_k) e^{iq_z \cdot z_k}}{a_0^2 \sin(q_z a_0/4)} + \sum_k \frac{2\tilde{m}(z_k) e^{iq_z \cdot z_k}}{a_{//}^2 \sin(q_z a_{//}/2)} \right] \right|^2 \quad (4.7)$$

Les sommes se font sur les noeuds appartenant respectivement à la couche désordonnée et à la couche ordonnée.

Dans ce modèle, la décroissance générale de l'intensité le long des tiges est essentiellement due au terme de rugosité et aux facteurs $1/\sin(q_z a_0/4)$ et $1/\sin(q_z a_{//}/2)$. La rugosité que l'on décrit correspond à l'échelle de discrétisation utilisée, ici le plan atomique. Par conséquent, la valeur à donner au paramètre σ^2 change si on change d'échelle de discrétisation.

Les paramètres que nous avons ajustés pour reproduire les tiges magnétiques sont l'épaisseur d_1 de la couche de protection, l'épaisseur totale d_2 des couches de FePd, en incluant le cas échéant les couches intermédiaires de Palladium, la rugosité σ , et l'énergie E du faisceau incident.

Ce dernier paramètre est en effet mal déterminé lors des mesures, car l'encodeur analogique du monochromateur de la ligne 5U.1 du SRS connaît des problèmes de dérive. Or les coefficients magneto-optiques du Fer, qui varient très vite au voisinage de la résonance, jouent un rôle très important dans les interférences qui produisent les oscillations observées sur les tiges magnétiques, tant par l'effet de réfraction que celui d'absorption. D'autre part, les coefficients magnéto-optiques utilisés ont été obtenus par Jean-Marc Tonnerre sur une autre ligne, ce qui n'exclut pas un décalage dû aux calibrations des lignes.

Echantillon	E (eV)	d_1 (nm)	d_2 (nm)	σ (nm)
B1	708	2.0	58.0	0.28
B3	706.2	0.8	19.4	0.33
T3	707.9	3.1	43.7	0.48
T4	707.7	3.4	32.4	0.39

TAB. 4.2 – Paramètres obtenus par les ajustements des tiges magnétiques des échantillons B1, B3, T3, T4

Echantillon	FePd				Pd			
	N	RX	RN	TM	N	RX	RN	TM
B1	60	57.13	58.56	58.0	2.5	2.00	4.16	2.0
B3	20	18.54	18.40	19.4	2.5	1.84	3.44	0.8
T3	44			43.7	1.9			3.1
T4	34			32.4	1.9			3.4

TAB. 4.3 – Epaisseurs nominales (N) et déduites des courbes de réflectivité de rayons X (RX) et de neutrons (RN) et des tiges magnétiques (TM) des couches de FePd (espaceurs éventuels inclus) et de protection en Palladium. Les valeurs sont données en nanomètres.

Les valeurs attribuées à ces paramètres pour reproduire les tiges magnétiques sont récapitulés dans le Tableau 4.2. Les épaisseurs de FePd et de la couche de protection en Pd sont comparées

aux valeurs nominales et aux valeurs issues des réflectivité de rayons X durs et de neutrons dans le Tableau 4.3.

La valeur obtenue pour l'épaisseur de la couche de protection s'éloigne beaucoup de l'épaisseur nominale. Cette épaisseur étant faible (2.5 nm pour B1 et B3, 2 nm pour T3 et T4), elle ne produit qu'une seule oscillation dans le domaine de q_z mesuré, ce qui ne permet pas d'obtenir une valeur précise de l'épaisseur. La valeur obtenue est donc faussée par les défauts d'alignement : en particulier, le diffractomètre utilisé n'est pas installé de manière permanente sur la ligne 5U.1 et l'alignement de son centre de rotation par rapport au faisceau est certainement moins bon que ce que l'on peut attendre d'un diffractomètre installé de manière permanente.

L'épaisseur totale de FePd modifie essentiellement la période des oscillations sur la tige magnétique, ce qui permet d'en déterminer une valeur correcte. Les valeurs utilisées sont en relativement bon accord avec celles déterminées par réflectivité de rayons X durs et réflectivité de neutrons.

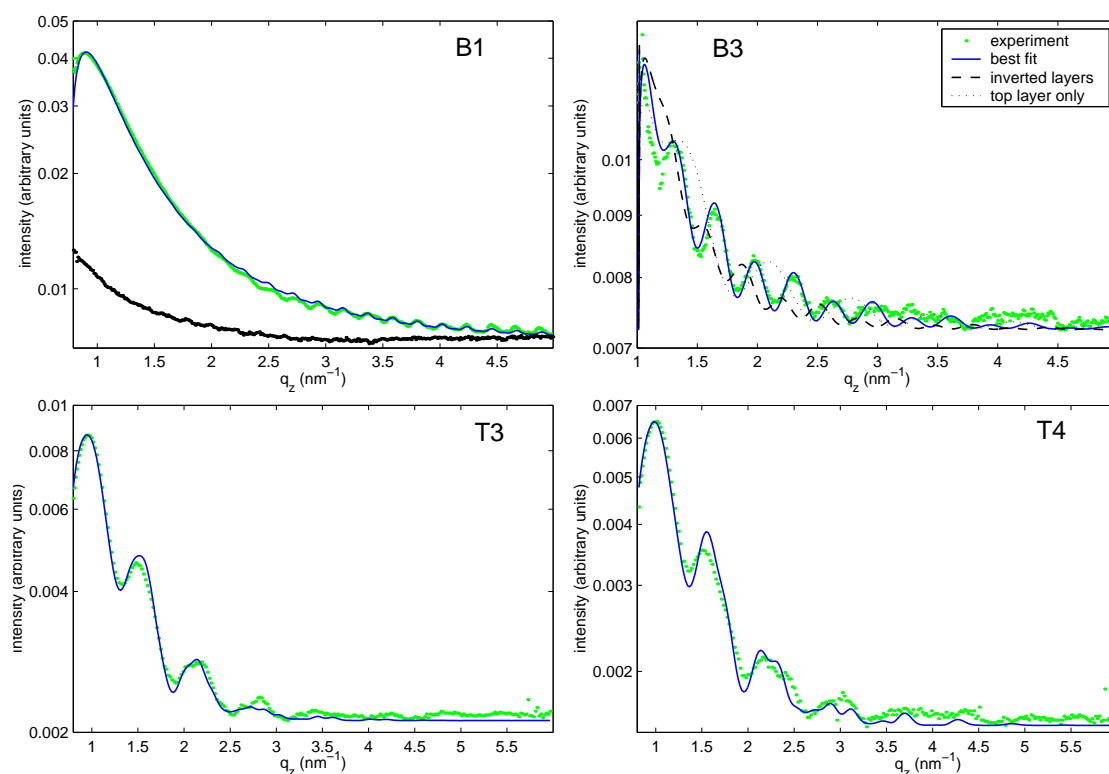


FIG. 4.6 – Tiges magnétiques des échantillons B1, B3, T3 et T4, et leurs ajustements. Dans le cas de B1, on montre aussi la même tige expérimentale, mesurée hors résonance. Dans le cas de B3, deux simulations supplémentaires illustrent l'importance de la configuration magnétique. La première est issue de l'inversion du profil de la bicouche ; dans la deuxième, l'aimantation de la couche est considérée comme nulle (l'oscillation résultante est de période double par rapport à la simulation avec les deux couches).

L'importance de la configuration magnétique est illustrée sur la Figure 4.6. On voit qu'en inversant l'ordre des couches, les oscillations sont décalées, et en supposant nulle l'aimantation dans la deuxième couche, la période des oscillations est doublée car l'épaisseur totale de FePd "magnétique" est réduite de moitié.

En conclusion, notre modèle permet de reproduire de manière satisfaisante les mesures de tiges magnétiques dans les bicouches et tricouches de FePd. Cette méthode permet, grâce aux simulations micromagnétiques, d'accéder au profil vertical de la composante périodique de l'aimantation. Il démontre également que la sensibilité de ce type de mesure doit permettre d'estimer l'anisotropie magnétique perpendiculaire des différentes couches.

4.5 Conclusion et perspectives sur la diffraction magnétique résonante

Nous avons étudié le magnétisme dans des couches minces de FePd formant des domaines magnétiques périodiques par diffraction magnétique résonante des rayons X mous (SXRMS).

Cette technique permet d'accéder à la distribution des composantes de l'aimantation dans le volume. Pour des échantillons à domaines magnétiques périodiques, on mesure ainsi la période des domaines et la qualité de leur périodicité sur une échelle plus grande que la microscopie de champ proche.

En outre, une détection bidimensionnelle permettrait d'évaluer la qualité de l'alignement des domaines et d'étudier ainsi le désordre d'orientation dû à l'ondulation des domaines et aux fourches formées par les rubans. Plus généralement, la détection bidimensionnelle donne une indication sur l'anisotropie des domaines magnétiques.

Ainsi, un arrangement isotrope de domaines d'aimantation perpendiculaire donne lieu en SXRMS à un cylindre dans l'espace réciproque. Un détecteur bidimensionnel permet de mesurer une coupe de ce cylindre sur un plan incliné par l'angle d'incidence. On observe ainsi une ellipse. Son rapport d'aspect est déterminé par l'angle d'incidence, sa taille par la taille caractéristique des domaines, et sa finesse par la largeur de la distribution de taille des domaines. Si l'arrangement des domaines n'est pas isotrope, cela se répercute sur l'anisotropie de l'ellipse (en plus de l'allongement dû à l'angle d'incidence).

En utilisant la propriété de sélectivité chimique de la SXRMS, on peut ainsi étudier l'influence mutuelle de deux couches à domaines d'aimantation perpendiculaire. Nous en donnons un exemple Figure 4.7, sur un système composé d'une couche de FePd et d'une couche de CoPt séparées par une couche de 20 nm de Palladium. Elle montre que l'arrangement des domaines est identiquement isotrope dans les deux couches et que leur distribution de taille est la même.

Par ailleurs nous avons vu que la diffraction magnétique résonante des rayons X mous permet aussi d'accéder au profil en profondeur de l'aimantation. C'est le cas non seulement de la composante constante dans le plan, que l'on mesure en réflectivité spéculaire, mais aussi des composantes périodiques, que l'on mesure le long de "tiges magnétiques". Nous avons ainsi validé la modélisation micromagnétique des bicouches et des tricouches de FePd.

Appliquée à d'autres systèmes, cette méthode doit permettre d'étudier le couplage magnétique entre deux couches à aimantation périodique. Dans le cas que nous avons présenté, les deux couches comprenaient le même élément magnétique (le Fer), ce qui impose de traiter le système comme une seule couche du point de vue du magnétisme. Dans des systèmes utilisant différents éléments magnétiques, ce type d'étude tirerait avantage de la sélectivité chimique de la diffraction magnétique résonante. On pourrait ainsi étudier le profil d'aimantation induit par une couche à domaines périodiques dans une couche ferromagnétique planaire (comme pour les

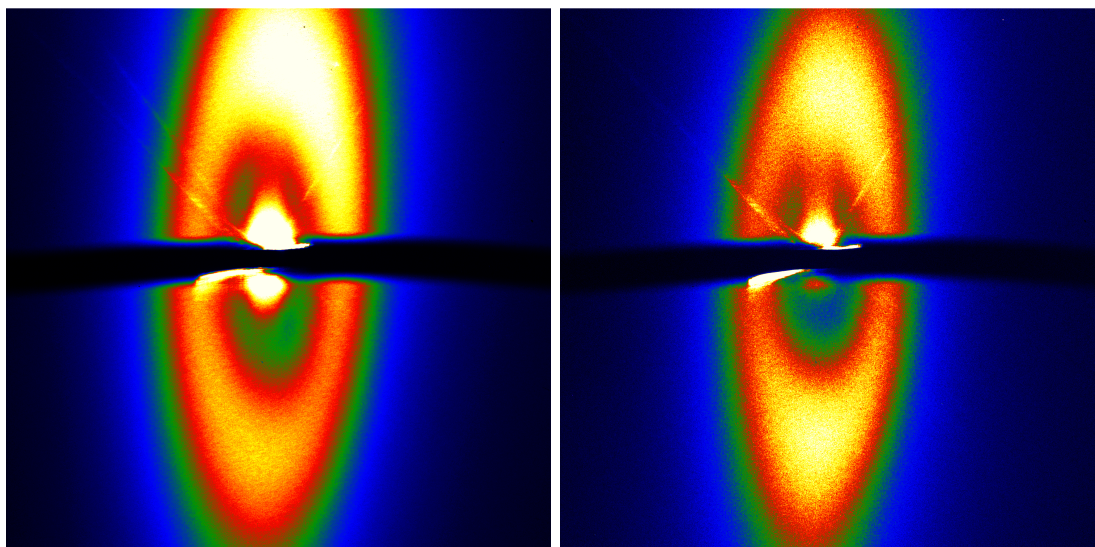


FIG. 4.7 – Figures de SXRMS en réflexion à 45° d'un échantillon de composition CoPt/Pd/FePd , aux seuils L_3 du Fer (à gauche) et du Cobalt (à droite). Les échelles d'intensité sont différentes (la diffraction au seuil du Fer est environ 4 fois plus intense que celle au seuil du Cobalt). Le faisceau réfléchi spéculairement dépasse du "beamstop" horizontal qui protège le détecteur. Une simple homothétie prenant en compte la différence de longueur d'onde permet de constater que l'arrangement des domaines est identiques dans les deux couches ferromagnétiques. Mesures effectuées sur la ligne 5U.1 du Synchrotron Radiation Source, Daresbury (UK).

bicouches et tricouches de FePd) ou dans un matériau antiferromagnétique.

La diffraction magnétique résonante des rayons X mous est donc une méthode bien adaptée au ferromagnétisme des couches minces, par sa capacité à mesurer la répartition des moments magnétiques non seulement en surface, mais aussi en profondeur. Dans ce deuxième cas, la forte absorption des rayons X mous limite le domaine accessible à quelques dizaines de nanomètres. En utilisant également l'avantage de sa sélectivité chimique, les applications possibles sont très larges.

Par ailleurs, les exemples montrés ici présentent la technique en tant que mesure globale, c'est-à-dire qu'elle permet de mesurer les propriétés magnétiques moyennées sur une vaste zone définie par l'empreinte du faisceau. Nous allons voir dans la partie suivante qu'en utilisant la forte cohérence du rayonnement synchrotron, elle permet également d'accéder aux détails non moyennés des propriétés locales.

Troisième partie

**Diffraction cohérente des rayons X
mous**

Introduction

La diffraction de particules ou d'ondes (photons, électrons, neutrons...) est un principe traditionnellement associé à l'idée d'une recherche de propriétés moyennes d'un échantillon, contrairement à la microscopie, qui permet d'accéder à une information locale et de fait non moyennée. Ainsi on cherche en diffraction de rayons X durs un paramètre de maille moyen, et en diffraction magnétique de rayons X mous une configuration magnétique moyenne, comme nous l'avons vu précédemment.

En effet, les faisceaux de particules et d'ondes couramment utilisés sont très peu cohérents, en ce sens que deux régions de l'échantillon trop éloignées l'une de l'autre ne peuvent interférer, car leurs phases ne sont pas corrélées. Les processus d'interférences tels que la diffraction ont donc lieu localement, dans un volume qu'on appelle le volume de cohérence, tel que la différence de chemins optiques entre deux ondes soit dans ce volume. L'intensité diffractée dans un volume de cohérence se mélange de manière incohérente avec celles diffractées par d'autres volumes (ce qui revient à dire que l'on somme des intensités et non des amplitudes), de sorte que l'on n'accède qu'aux propriétés moyennes de l'échantillon. La moyenne se fait sur le volume total d'interaction entre le faisceau et l'échantillon, qui dépend de l'empreinte du faisceau sur l'échantillon et de l'absorption dans l'échantillon.

Lorsque l'on utilise un faisceau partiellement cohérent, le processus d'interférence s'étend significativement dans l'échantillon, et donne lieu à des fluctuations d'intensité, spatiales et/ou temporelles, là où un faisceau incohérent ne permet que de mesurer la moyenne. Ces fluctuations sont appelées *tavelures* (*speckles* en Anglais).

Si l'on est capable d'obtenir un faisceau parfaitement cohérent, on a donc théoriquement accès aux propriétés locales et non-moyennées dans tout le volume d'interaction.

C'est d'abord dans le domaine optique visible que les techniques exploitant la cohérence de la lumière se sont développées. L'exemple le plus célèbre dans ce domaine est l'expérience des fentes d'Young. Le développement des lasers, qui sont des sources très fortement cohérentes, a permis l'étude des phénomènes dynamiques dans la matière "molle", qui est transparente dans le domaine optique, par l'analyse des fluctuations temporelles d'intensité (*Intensity Fluctuation Spectroscopy* (IFS), ou *Photon Correlation Spectroscopy* (PCS), ou encore *Dynamic Light Scattering* (DLS)) [79, 80].

Les synchrotrons de troisième génération ont vu le développement des onduleurs, qui produisent un rayonnement partiellement cohérent, c'est-à-dire dont on peut sélectionner une partie cohérente non négligeable. De nouvelles approches exploitant la cohérence partielle de ces faisceaux sont apparues, d'abord dans les domaines des rayons X durs, puis dans celui des rayons X mous.

En 1991, Sutton *et al* observent les premiers speckles statiques issus de rayons X, sur des domaines d'antiphase dans l'alliage Cu_3Au (100) [81]. Notons que ce travail pionnier fut réalisé avec un faisceau issu d'un wiggler, et non d'un onduleur. Les méthodes de diffraction dynamique de la lumière sont alors adaptées aux rayons X, pour permettre d'étudier le comportement dynamique des matériaux à l'échelle de la structure cristalline, en particulier pendant les transitions de phase [82, 83, 84, 85, 86, 87]. Ces nouvelles méthodes sont généralement connues sous les noms de *X-ray Intensity Fluctuation Spectroscopy* (XIFS) et *X-ray Photon Correlation Spectroscopy* (XPCS).

Les progrès technologiques ont permis d'obtenir des faisceaux de rayons X beaucoup moins divergents, donc plus beaucoup plus cohérents. En effet, la taille caractéristique Λ sur laquelle le faisceau est considéré comme cohérent est de l'ordre du rapport de sa longueur d'onde λ sur sa divergence σ' :

$$\Lambda \sim \frac{\lambda}{\sigma'}$$

Cela a permis de mesurer avec une haute résolution le module de la transformée de Fourier d'objets bien plus gros que les mailles cristallines, jusqu'à quelques dizaines de microns, alors que l'on n'accédait auparavant qu'à sa fonction enveloppe.

Plusieurs équipes ont alors étudié la possibilité de déduire la forme de l'objet à partir du module de sa transformée de Fourier. La perte d'information résultant de la mesure du module sans la phase est compensée par le sur-échantillonnage et l'utilisation d'algorithmes itératifs. Miao *et al* [88] appliquent avec succès ces méthodes pour imager une assemblée bidimensionnelle organisée de plots d'or submicrométriques, avec une résolution de ~ 75 nm, à partir de son spectre de diffraction aux petits angles obtenu avec des rayons X mous cohérents. Puis Robinson *et al* [89] déterminent la forme tridimensionnelle d'un cristal micrométrique d'or, et sa structure interne [90], avec des rayons X durs cohérents. Ces premiers résultats ont ouvert la voie à de nombreuses autres études [91, 92, 93]. En particulier, la diffraction cohérente en position de Bragg permet d'étudier les contraintes, déformations et défauts structuraux des matériaux avec une haute résolution.

Tout cela concerne uniquement la densité électronique, mais on cherche à l'adapter aux systèmes magnétiques. Plusieurs équipes développent donc la diffraction résonante de rayons X mous cohérents, et les premiers speckles magnétiques statiques sont observés aux seuils L des métaux de transition [94, 95]. Leur évolution sous champ permet de caractériser la mémoire magnétique des matériaux [96, 97]. Rahmim *et al* [98, 99] approfondissent la question de la reconstruction pour les systèmes magnétiques et mettent en évidence les difficultés liées au mélange des informations sur le magnétisme avec la densité électronique, en particulier la rugosité des surfaces. Eisebitt *et al* s'affranchissent de ces contraintes grâce à une méthode holographique qui permet d'extraire directement l'amplitude magnétique, grâce aux propriétés du dichroïsme circulaire [100]. Ils proposent ainsi la première image reconstruite de domaines magnétiques [101]. Cette méthode holographique, basée sur l'interférence de l'onde diffusée par l'objet avec une onde référence, est aussi efficace pour des systèmes non-magnétiques [102].

Dans ce contexte, notre équipe a participé au développement de l'utilisation de rayons X mous cohérents pour l'étude de nanostructures magnétiques, tant sur le plan expérimental que sur le plan théorique. La partie expérimentale a vu la création d'une instrumentation adaptée pour le diffractomètre de la ligne ID08, dont un dispositif pour filtrer le faisceau et en extraire une partie de haute cohérence, ainsi qu'un petit électroaimant. Nous avons également développé

l'utilisation des caméras CCD à illumination arrière et mis au point des méthodes permettant de les utiliser pour le comptage de photons sur une grande gamme d'intensité. Cela nous a permis d'enregistrer des images de diffraction d'une grande qualité. La fabrication d'échantillons fut aussi une part importante du projet. Sur le plan théorique, la priorité a été mise sur le problème de la reconstruction d'images magnétiques, pour laquelle un algorithme original a été développé. Des résultats intéressants ont également été obtenus par XPCS sur la mémoire magnétique de certains échantillons.

Chapitre 5

Dispositif instrumental

Toute la partie expérimentale de notre étude a été menée dans le cadre d'un projet à long terme sur la ligne ID08 de l'ESRF. Ce projet garantissait 4 semaines de faisceau réparties sur 2 ans.

Dans cette section, nous allons décrire tout le dispositif instrumental, élément par élément, en insistant sur les propriétés du faisceau.

5.1 L'ESRF

L'ESRF (European Synchrotron Radiation Facility) est un institut de rayonnement synchrotron de troisième génération. 40 lignes de lumières y sont installées, en majorité sur des onduleurs. Il fournit un faisceau d'électrons de haute énergie (6.03 GeV), ce qui est plutôt favorable aux lignes de rayons X durs. Le faisceau d'électrons circulant dans l'anneau de stockage est renouvelé 2 fois par jour, et depuis peu sans interruption de faisceau au moment du remplissage.

Il fonctionne avec différents modes de remplissage :

- un mode uniforme, pour lequel les électrons sont uniformément répartis en 992 paquets dans l'anneau. Ce mode délivre le maximum d'intensité (200 mA).
- un mode "2x1/3" (200 mA), aussi intense que le mode uniforme, mais avec une structure temporelle non-uniforme.
- un mode "16-bunch" (90 mA), pour lequel les électrons sont répartis en 16 paquets uniformément espacés dans l'anneau. Ce mode délivre moins d'intensité, mais la structure temporelle périodique du faisceau permet l'étude de processus dynamiques ultra-rapides.
- un mode "monobunch" (15 mA), qui ne comporte qu'un seul paquet d'électrons, remplacé depuis 2004 par un mode "4-bunch" (4x10 mA) qui en comporte 4.
- un mode hybride

Nous avons utilisé les modes uniforme et "2x1/3", qui délivrent le maximum d'intensité. C'est essentiel dans notre cas, car le faisceau que nous utilisons est très réduit pour obtenir une bonne cohérence, et les sections efficaces magnétiques sont faibles, même aux seuils de résonance. Les deux autres modes auraient été intéressants pour étudier la dynamique de nos systèmes, en appliquant par exemple un champ pulsé synchronisé avec les paquets d'électrons. Cette direction d'étude, bien qu'envisagée, n'était pas prioritaire et n'a finalement pas été retenue.

Le profil du faisceau électronique circulant dans l'anneau de stockage est gaussien, et bien

plus étendu horizontalement que verticalement. Ses principales caractéristiques dans un élément d'insertion tel que ID08 sont récapitulées dans le Tableau 5.1.

Extension horizontale rms	σ_h	402 μm
Divergence horizontale rms	σ'_h	10.7 μrad
Emittance horizontale	$\varepsilon_h = \sigma_h \sigma'_h$	4.3 nm.rad
Fonction β horizontale	$\beta_h \approx \sigma_h / \sigma'_h$	35.2 m
Extension verticale rms	σ_v	7.9 μm
Divergence verticale rms	σ'_v	3.2 μrad
Emittance verticale	$\varepsilon_v = \sigma_v \sigma'_v$	0.025 nm.rad
Fonction β verticale	$\beta_v \approx \sigma_v / \sigma'_v$	2.52 m

TAB. 5.1 – Caractéristiques typiques du faisceau électronique, en mode uniforme, calculées au centre d'un élément d'insertion du type d'ID08. Les caractéristiques en mode "2×1/3" sont similaires. (Source : ESRF Highlights 2004). Lors de nos expériences, l'émission verticale était plutôt de l'ordre de 0.04 nm.rad.

5.2 La ligne ID08

La ligne ID08 est montée sur deux onduleurs du type APPLE II en série. C'est la seule ligne fournissant des rayons X mous à l'ESRF. Sa gamme d'énergie couvre tous les seuils L des métaux de transition et les seuils M des Terres Rares (Fig. 5.1). C'est un onduleur quadripolaire, délivrant un faisceau 100% polarisé, quelle que soit la polarisation choisie.

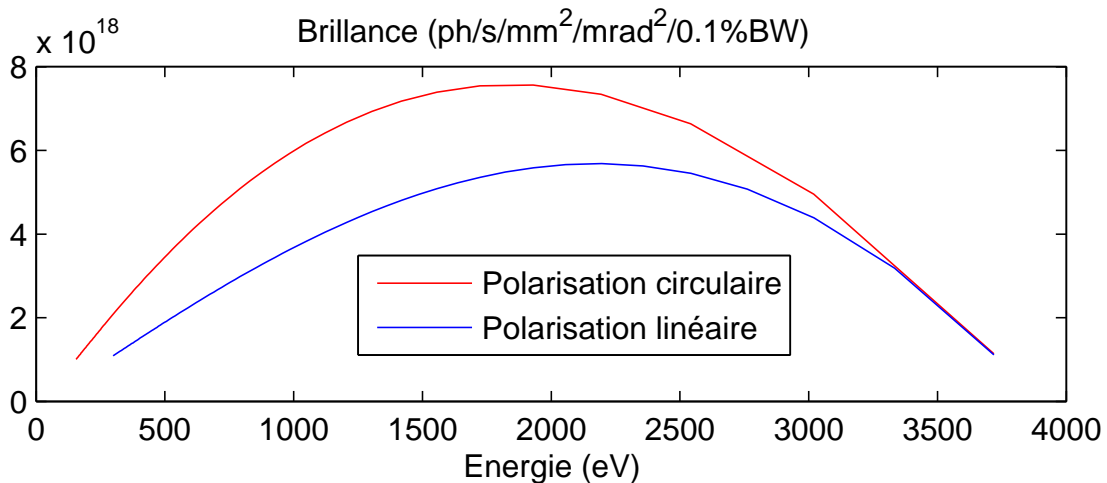


FIG. 5.1 – Spectre d'énergie du faisceau délivrable par l'onduleur APPLE II.

L'optique de la ligne ID08 est schématisée sur la Figure 5.2.

Le monochromateur de type "Dragon" (qui a donné son nom à la ligne) sélectionne une énergie dans la gamme 400 eV - 1500 eV. Son pouvoir résolvant $E/\Delta E$ est défini par ses fentes

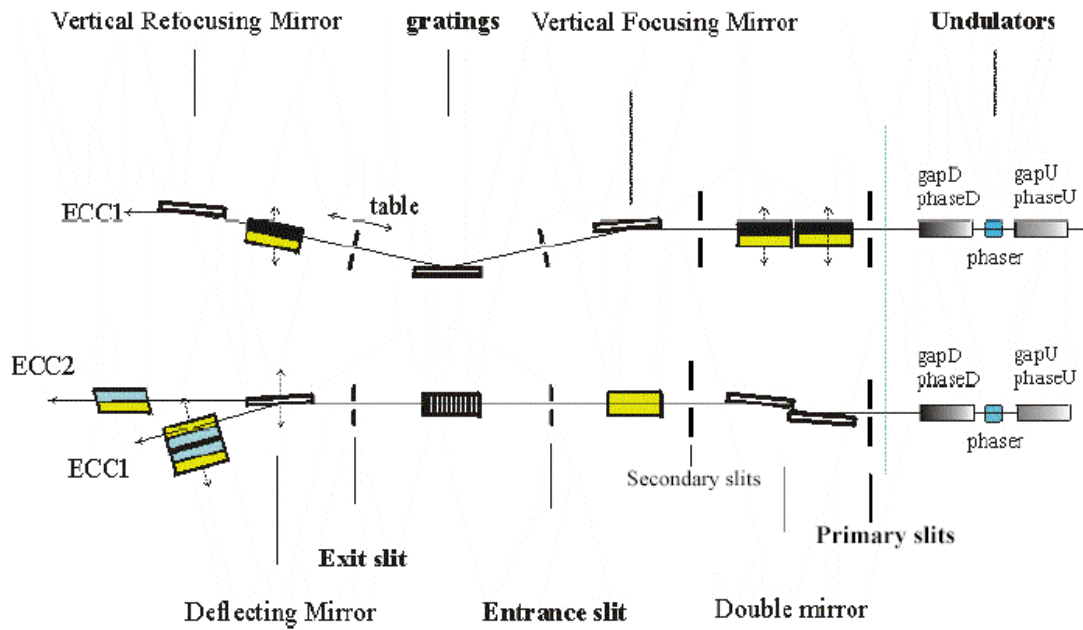


FIG. 5.2 – Schéma de la ligne ID08.

d'entrée et de sortie, et peut atteindre 10000, soit une résolution de l'ordre de 0.1 eV. Cette très bonne monochromaticité est bien sûr obtenue aux dépens du flux. En fonctionnement "standard", son pouvoir résolvant est de l'ordre de 3000, soit une résolution de l'ordre de 0.25 eV aux seuils L_3 du Fer et du Cobalt (707 eV et 778 eV respectivement). Ce bon pouvoir résolvant et la parfaite polarisabilité du faisceau sont particulièrement adaptés aux expériences de dichroïsme circulaire ou linéaire, qui sont une des spécialités de la ligne. Nous avons fait nos expériences avec le pouvoir résolvant "standard" du monochromateur, afin de bénéficier de suffisamment de flux pour observer les speckles dus à la diffraction cohérente avec une bonne statistique.

En fin de cabine optique, un miroir de déflexion permet de sélectionner l'une des sorties de la ligne. L'une (ECC1 sur la Figure 5.2) est équipée d'un aimant supraconducteur produisant un champ magnétique de 7 Teslas, où sont menées des expériences de dichroïsme circulaire et linéaire (XMCD et XMLD). Le dispositif utilisé pour les expériences de diffraction est sur l'autre sortie (ECC2), derrière une station ultraviolette dédiée à la spectroscopie de photo-émission de rayons X mous polarisés [103].

Le faisceau est focalisé verticalement à 0.2 mm au niveau de cette station. Il est donc légèrement divergent et assez étendu en arrivant au niveau de notre diffractomètre, situé quelques mètres derrière.

5.2.1 Emittance du faisceau

C'est le faisceau électronique qui joue le rôle de source de lumière dans l'élément d'insertion. Ses caractéristiques déterminent grandement les caractéristiques du faisceau de photons, en particulier son émittance et sa cohérence.

Chaque électron émet des photons dans un certain cône d'émission d'ouverture $\sigma'_R = \sqrt{\lambda/2L} \approx$

22.4 μrad (pour $\lambda = 1.6$ nm, la longueur de l'onduleur APPLE II étant $L = 1.6$ m), de sorte que la divergence du faisceau de rayonnement synchrotron à la sortie de l'onduleur est issue de la convolution du cône d'émission avec la divergence du faisceau électronique : $\sigma'(\phi) = \sqrt{\sigma^2 + \sigma_R^2}$. On obtient en ordre de grandeur, pour la divergence et l'émittance du faisceau de photons :

$$\sigma'_h(\phi) \approx 24.8 \mu rad \Rightarrow \varepsilon_h(\phi) = \sigma_h \sigma'_h(\phi) \approx 10 \text{ nm.rad}$$

$$\sigma'_v(\phi) \approx 22.6 \mu rad \Rightarrow \varepsilon_v(\phi) = \sigma_v \sigma'_v(\phi) \approx 0.2 \text{ nm.rad}$$

L'effet de diffraction domine largement celui de la divergence du faisceau d'électrons. Cela signifie qu'à cette longueur d'onde, on pourrait élever la brillance significativement en allongeant l'onduleur (ou en en mettant deux en série, si un effort est fait pour les mettre en phase).

5.2.2 Cohérence du faisceau

Cohérence transverse

A sa source, le faisceau de rayonnement synchrotron est cohérent dans un domaine angulaire déterminé par l'effet de diffraction, caractérisé par son émittance ε_c , de laquelle on déduit les divergences correspondantes à partir de la taille du faisceau (pour $\lambda = 1.6$ nm) :

$$\varepsilon_c = \lambda/4\pi \approx 0.127 \text{ nm.rad}$$

$$\sigma'_{c,h} = \frac{\varepsilon_c}{\sigma_h} \approx 0.32 \mu rad$$

$$\sigma'_{c,v} = \frac{\varepsilon_c}{\sigma_v} \approx 16 \mu rad$$

On s'aperçoit que la divergence verticale du faisceau $\sigma'_v(\phi)$ est légèrement supérieure à $\sigma'_{c,v}$, ce qui signifie que le faisceau est partiellement cohérent verticalement. Sa divergence horizontale $\sigma'_h(\phi)$ est quant à elle bien plus grande que $\sigma'_{c,h}$, et le faisceau est donc très incohérent horizontalement. Ces valeurs laissent supposer qu'on ne peut pas récupérer plus de quelques millièmes de l'intensité du faisceau total si l'on veut obtenir un faisceau cohérent.

Remarquons que, grâce à la dépendance proportionnelle à λ de l'émittance due à la diffraction, il est plus facile d'obtenir un faisceau cohérent avec des rayons X mous qu'avec des rayons X durs.

On peut quantifier les longueurs de cohérence transverse à une distance $D=50$ m de la source (en faisant abstraction des éléments d'optique de la ligne) :

$$\Lambda_h = \frac{\lambda D}{\sigma_h \pi \sqrt{2}} \approx 50 \mu m$$

$$\Lambda_v = \frac{\lambda D}{\sigma_v \pi \sqrt{2}} \approx 2 \text{ mm}$$

Les éléments d'optique de la ligne servent entre autres à focaliser le faisceau, ce qui réduit en proportion les longueurs de cohérence transverses. Pour obtenir un faisceau cohérent, on doit donc filtrer le faisceau incident avec un diaphragme dont les dimensions sont inférieures aux longueurs de cohérence transverses. En pratique, nous avons utilisé des diaphragmes circulaires de diamètres 10 et 20 microns. Bien sûr, on augmente la cohérence du faisceau que l'on extrait en diminuant la taille de l'ouverture, mais au détriment de l'intensité.

Cohérence longitudinale

La cohérence longitudinale du faisceau (appelée aussi cohérence temporelle), caractérise la différence de trajet optique acceptable dans la direction de propagation du faisceau pour que deux ondes secondaires puissent interférer. Elle est directement reliée à la résolution en longueur d'onde du faisceau, donc au pouvoir résolvant du monochromateur, par la relation :

$$\Lambda_l = \frac{\lambda^2}{2\Delta\lambda} = \frac{\lambda}{2} \frac{E}{\Delta E}$$

Comme pour la cohérence transverse, la cohérence longitudinale est proportionnelle à λ , ce qui favorise le cas des rayons X mous par rapport aux rayons X durs.

Aux seuils L du Fer et du Cobalt ($\lambda \sim 1.5$ nm), la cohérence longitudinale est d'environ $2.5 \mu\text{m}$. C'est bien supérieur aux longueurs d'absorption typiques (~ 100 nm) dans les métaux à ces longueurs d'ondes, y compris hors seuil d'absorption, ce qui garantit que des ondes diffusées à différentes profondeurs dans l'échantillon peuvent interférer. Pour deux points situés à la surface de l'échantillon et distants de Δy dans la direction longitudinale, la différence de trajet optique s'exprime comme $|\Delta y(1/\cos\theta - 1/\cos\theta')|$. Aux angles auxquels nous avons travaillé ($\theta \approx \theta' \approx 15^\circ$), imposer que la différence de trajet optique soit inférieure à la longueur de cohérence longitudinale revient à imposer $q_y \Delta y < k_0 \Lambda_l$. Comme on s'intéresse aux régions de l'espace réciproque correspondant à la période magnétique, soit $q_y \sim 2\pi/p_{\text{mag}}$, on doit vérifier $\Delta y < p_{\text{mag}} \Lambda_l / \lambda \sim 150 \mu\text{m}$. C'est une condition assez bien remplie, car l'empreinte du faisceau sur l'échantillon est inférieure à $100 \mu\text{m}$ pour un diaphragme de $20 \mu\text{m}$ de diamètre, le plus gros que nous avons utilisé.

Intensité cohérente

En principe, on peut estimer l'intensité cohérente totale disponible dans le faisceau à partir de la brillance B de l'onduleur et des propriétés de cohérence longitudinale et transverse du faisceau, qui sont proportionnelles à λ , de la manière suivante :

$$I_{\text{coh}} = B \left(\frac{\lambda}{2} \right)^2 \frac{\Delta E}{E}$$

Notons que l'intensité cohérente est proportionnelle à λ^2 , ce qui est aussi favorable aux rayons X mous, mais les onduleurs délivrant des rayons X mous ont moins de brillance, car ils ont moins de périodes, à cause de la taille de celle-ci.

On estime que la brillance des onduleurs de la ligne est de l'ordre de quelques 10^{18} photons/s/mm²/mrad²/0.1%BW. L'intensité cohérente maximale, aux longueurs d'onde qui nous concernent, est donc probablement de l'ordre de 10^{11} photons/s. Sachant que l'intensité totale du faisceau est de l'ordre de 10^{13} photons/s après les éléments optiques, l'intensité cohérente représente quelques millièmes de l'intensité totale. C'est compatible avec la taille typique ($10 \mu\text{m}$) des diaphragmes que nous avons utilisés, qui interceptent environ le millième du faisceau (sa taille rms est environ $1 \text{ mm} \times 0.3 \text{ mm}$ au niveau du diffractomètre).

Cependant, lors de nos expériences, nous avons estimé que l'intensité sur l'échantillon derrière le diaphragme était inférieure à 10^8 photons/s, soit seulement environ $1/100000^{\text{e}}$ du faisceau. La divergence du faisceau, qui est focalisé verticalement quelques mètres avant le diffractomètre et éclaire donc une surface bien plus grande que celle du diaphragme, n'explique pas

toute la différence. Nous pensons donc que beaucoup de la qualité de la source est perdue dans les imperfections optiques.

Parmi d'autres, l'effet d'un élément particulier a été discuté, à savoir la fenêtre d'Aluminium de $0.1 \mu\text{m}$ d'épaisseur séparant le vide de la ligne du vide du diffractomètre. Sa rugosité pourrait être à l'origine d'une perte de cohérence, mais les spécifications de cette fenêtre laissent penser que la perte de cohérence doit être minimale. Une solution alternative serait d'installer un pompage différentiel pour la remplacer.

Quelle que soit l'origine de cette perte de cohérence, il est évident que la réduction du nombre d'éléments d'optique ne peut qu'augmenter la cohérence résiduelle en bout de ligne.

5.2.3 Structure et stabilité du faisceau

Dans les expériences exploitant la cohérence, la structure du faisceau est très importante. L'onde produite par l'onduleur est normalement assez "lisse", et assimilable, sur une petite région du faisceau, à une onde plane. Elle est cependant déformée par les éléments optiques de la ligne. Les imperfections des miroirs déforment le front d'onde, et les différentes fentes créent des réflexions parasites, de sorte que le faisceau arrivant au niveau du diffractomètre est parfois très structuré. Cette structure s'observe facilement avec un détecteur bidimensionnel, soit en illumination directe, soit dans le faisceau réfléchi spéculairement. S'il est impossible de compenser les déformations du front d'onde créées par les imperfections des miroirs, on peut en revanche essayer d'éliminer certaines structures du faisceau, en en masquant une partie, aux dépens de l'intensité.

Nous disposons à cet effet de 4 masques motorisés (les "baffles") placés environ 3 mètres en amont du diffractomètre : 2 masques verticaux et 2 masques horizontaux. Des scans sur la position de ces masques permettent d'éliminer la queue du faisceau et de ne garder que sa partie centrale, ce qui le "nettoie" en partie, tout en conservant la plus grande part du flux incident.

Un autre aspect très important du faisceau est sa stabilité. En effet, si le faisceau est instable, sa dérive peut d'une part occasionner une perte d'intensité, une dérive de son énergie, et une modification de sa structure. Ce dernier effet est amplifié par les masques qui ne laissent passer qu'une certaine partie du faisceau.

L'instabilité du faisceau est généralement due à l'échauffement des éléments optiques de la ligne sous l'effet du flux de photons. C'est particulièrement le monochromateur, placé directement en sortie des ondulateurs, qui chauffe le plus. Les éléments d'optique doivent donc être convenablement refroidis. Le refroidissement du monochromateur d'ID08 est assez efficace pour les expériences utilisant tout le faisceau. Cependant, nous avons pu observer lors de nos expériences que la position du faisceau dérivait horizontalement pendant un certain temps après l'ouverture de la ligne, puis se stabilisait. On peut le corriger grâce au miroir de déflexion, mais cela ne garantit pas la stabilité de la structure du faisceau. Celle-ci nous a paru stable, une fois que le faisceau était correctement replacé par rapport aux masques.

5.3 Le diffractomètre

Le diffractomètre que nous avons utilisé a été conçu par Sarnjeet Dhesi et Kenneth Larsson, et a été mis en service au début du projet de diffraction cohérente. Notre première semaine d'expériences fut aussi sa première utilisation par des utilisateurs extérieurs.

Le goniomètre 5-cercles a son plan principal de diffraction vertical. La table échantillon est équipée de 3 rotations (θ , ζ et ϕ) et de 3 translations. Le bras détecteur a 2 degrés de liberté

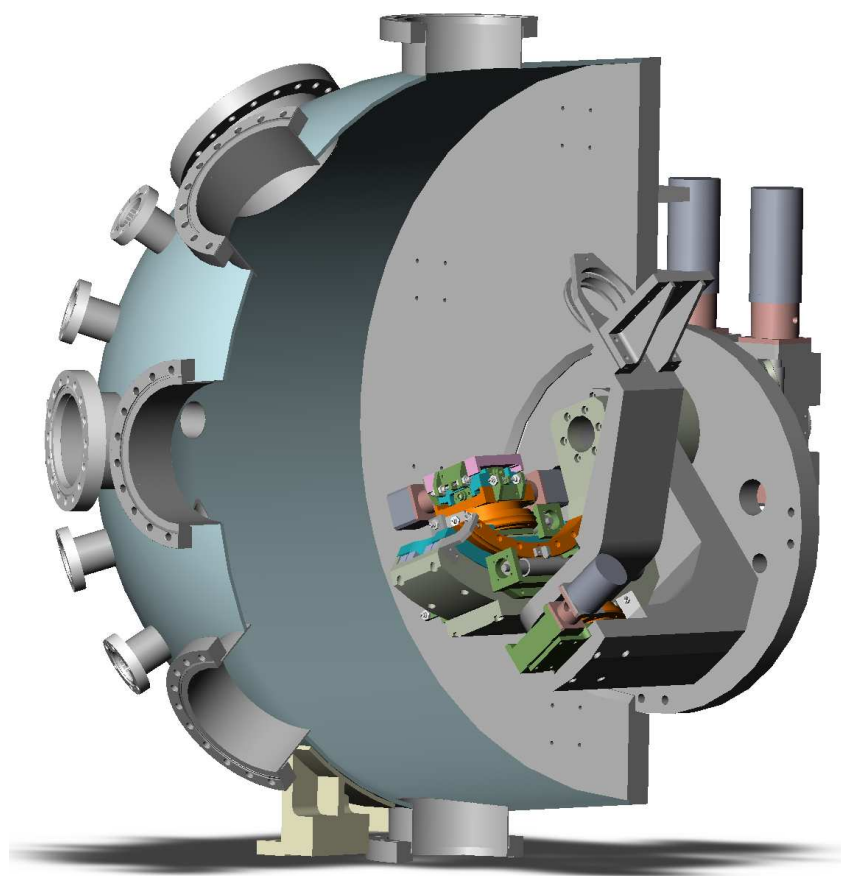


FIG. 5.3 – Schéma du diffractomètre de la ligne ID08, vu de 3/4 arrière (le faisceau vient du fond à gauche).

angulaires (2θ et χ). Les portées et résolutions des moteurs du diffractomètre sont répertoriées dans le Tableau 5.2.

Le bras détecteur porte une photodiode Silicium montée derrière un disque tournant portant des trous et des fentes horizontales et verticales de tailles diverses ($25\ \mu\text{m}$ à $100\ \mu\text{m}$ de diamètre pour les trous, $25\ \mu\text{m}$ à $1\ \text{mm}$ de largeur pour les fentes), ce qui permet de changer facilement de taille de fente et de direction, selon la nature du balayage.

Un jeu motorisé de fentes horizontales (25 à $100\ \mu\text{m}$ de largeur) et de trous (25 à $500\ \mu\text{m}$ de diamètre) est également monté à l'entrée du diffractomètre.

Le goniomètre réside dans une chambre conçue pour l'ultra-vide (UHV). Son pompage lui permet de descendre dans la gamme 10^{-9} millibars. Un tel vide nécessite un environnement "propre", ce qui induit des contraintes sur les appareillages installés *in situ*, tels que les moteurs et la bobine de courant. Nos expériences ne nécessitaient cependant pas un tel vide, et nous avons travaillé aux alentours de 10^{-7} millibars.

Cette chambre possède de nombreuses brides, ce qui permet de l'adapter facilement aux besoins des utilisateurs. Nous avons ainsi pu monter simultanément 2 caméras CCD (une à 30° et une à 60° par rapport au faisceau incident) et un système portant un électroaimant et un porte-

Moteur	Description	Portée	Résolution
Angles échantillon			
θ	angle d'incidence	$-5^\circ - 100^\circ$	0.0005°
ζ	berceau	$\pm 10^\circ$	0.05°
ϕ	azimuth	$\pm 178^\circ$	0.1°
Translations échantillon			
x	translation transversale	± 2.5 mm	0.5 μ m
y	translation longitudinale	± 2.5 mm	0.5 μ m
z	translation verticale	± 2.5 mm	0.5 μ m
Angles détecteur			
2θ	angle dans le plan principal	$\pm 108^\circ$	0.0005°
χ	angle hors plan principal	$\pm 120^\circ$	0.01°
Translations du porte-diaphragmes			
X_p	translation horizontale	6 mm	0.25 μ m
Y_p	translation verticale	6 mm	0.25 μ m

TAB. 5.2 – Portée et résolutions des moteurs du diffractomètre.

diaphragmes motorisé sur la bride sommitale.

En outre, une chambre de préparation, avec bombardement ionique, four et cellules d'évaporation, est connecté à l'une de ses brides latérales.

Un système de refroidissement à l'Helium permettant de maintenir l'échantillon entre 21 K et 80 K peut être installé sur le porte-échantillon, mais nous n'avons pas utilisé cet équipement.

5.4 L'électroaimant

Le porte-échantillon du diffractomètre peut normalement être équipé d'un électroaimant planaire pouvant délivrer un champ de 2 kOe en statique. Nous n'avons pas utilisé ce dispositif car il était plus intéressant pour nos échantillons d'appliquer un champ perpendiculaire.

Nous avons donc conçu un système permettant d'appliquer un champ magnétique perpendiculaire à l'échantillon à l'intérieur de la chambre ultra-vide.

Il est constitué d'une bride adaptée à la bride sommitale de la chambre, sur laquelle est fixée un bras amenant l'électroaimant au-dessus de l'échantillon (Fig. 5.4). Le bras comprend une translation verticale micrométrique et un trépied de positionnement. La partie inférieure du bras est flexible, de sorte que l'on peut adapter l'angle de l'électro-aimant à l'angle de l'échantillon (cette partie est entièrement manuelle, et doit donc être réglée avant de mettre la chambre sous vide). On peut donc amener l'électroaimant jusqu'au ras de l'échantillon sans déplacer la table échantillon.

L'électroaimant lui-même est un noyau de fer doux entouré d'un bobinage de fil de cuivre, alimenté grâce à des connecteurs étanches dans la bride.

Le champ magnétique créé au niveau de l'échantillon a été calibré en fonction de la distance entre le noyau et l'échantillon (Fig. 5.5). En faisant circuler 7 Ampères, on obtient un champ de 2 kOe à 2 mm du noyau. Le diamètre du fil de cuivre ne permet malheureusement pas de faire circuler un courant intense très longtemps. Celui-ci chauffe rapidement et dégaze. Outre les

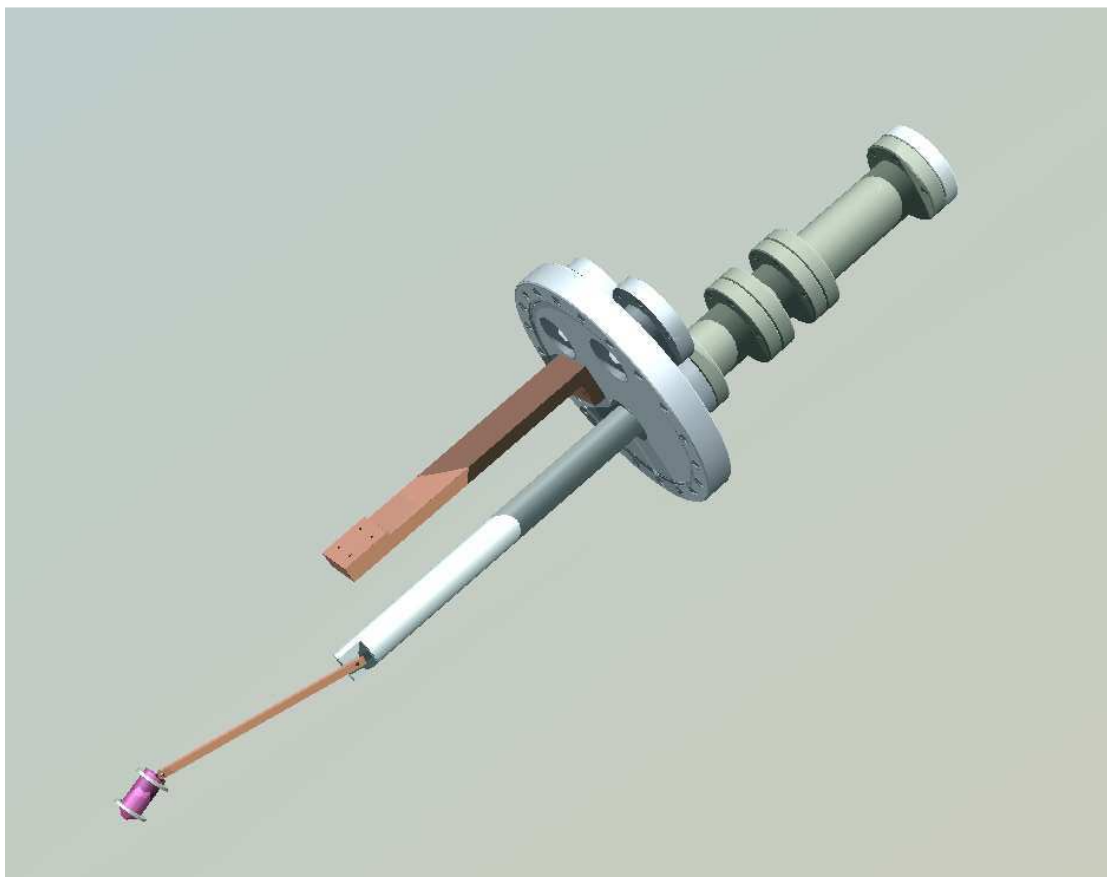


FIG. 5.4 – Schéma du dispositif portant l'électro-aimant. Ce dispositif se monte sur la bride sommitale du diffractomètre. Le bras supportant l'électroaimant est alors vertical. L'autre tige, en forme d'équerre, est destinée à supporter les moteurs des diaphragmes, dans la première configuration décrite ci-après.

problèmes liés à l'ultra-vide et la pollution de l'enceinte, le chauffage peut entraîner un déplacement appréciable du diaphragme, compte-tenu de l'important bras de levier sur le système qui le supporte, ce qui se reflète dans la structure des speckles. On doit donc l'utiliser de manière pulsée, avec des impulsions d'une à deux secondes, ce qui est beaucoup trop court pour mesurer des speckles sous champ. Nous avons pu toutefois mesurer l'évolution sous champ de l'intensité du faisceau spéculaire avec la photodiode.

5.5 Le porte-diaphragmes motorisé

Nous avons également dû concevoir un système pour amener les diaphragmes devant l'échantillon. Plusieurs paramètres étaient à prendre en compte lors de la conception :

- Nous voulions pouvoir mettre plusieurs diaphragmes, d'une part pour pouvoir disposer de plusieurs diamètres, d'autre part pour disposer de diaphragmes de rechange si l'un d'entre eux était obstrué ou de mauvaise qualité (ce qui est arrivé).
- Il était nécessaire que le porte-diaphragmes dispose d'au moins 2 translations (transverse et verticale) indépendantes de celles de l'échantillon, afin de placer le diaphragme voulu

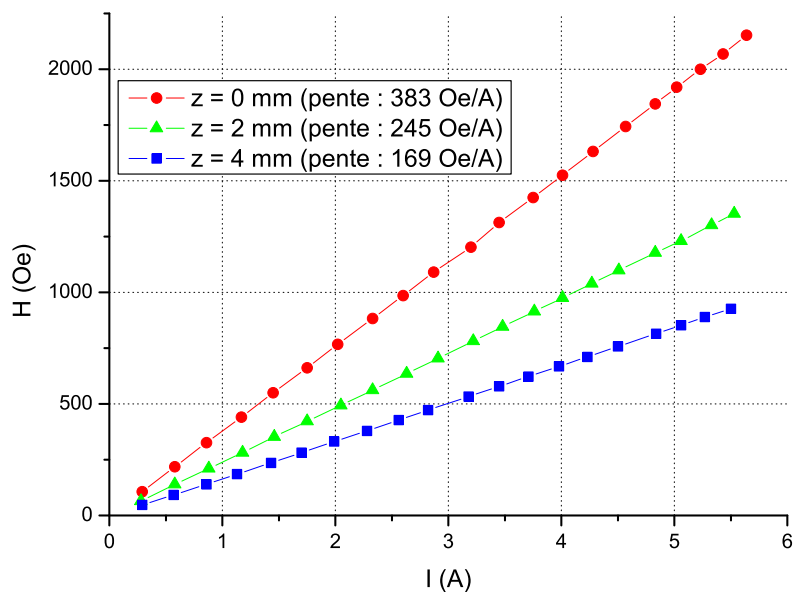


FIG. 5.5 – Calibration du champ délivré par l'électroaimant.

dans le faisceau et face à la zone d'intérêt de l'échantillon. La motorisation de ces translations était souhaitable.

- Il fallait réduire au maximum la distance entre les diaphragmes et l'échantillon, sans entraver les degrés de liberté de l'échantillon, afin d'assurer des conditions aussi bonnes que possible du champ proche : ce critère est important pour les simulations et la reconstruction, comme nous le verrons plus loin.
- La stabilité du porte-diaphragme était un enjeu majeur, afin de toujours éclairer exactement la même zone de l'échantillon, avec la même répartition d'amplitude.

Nous avons donc conçu successivement 2 porte-diaphragmes.

Le premier système, utilisé lors de 3 des 4 campagnes de mesures du projet, était fixé sur la même bride que l'électro-aimant, par l'intermédiaire d'un bras en aluminium (Fig. 5.6). Pour la première campagne de mesures, les translations étaient contrôlées manuellement à l'aide de vis micrométriques. Puis 2 moteurs micrométriques traités pour le vide ont été ajoutés en remplacement des vis micrométriques. Leur alimentation était assurée grâce à des connecteurs étanches placés dans la bride. Les déplacements des diaphragmes étaient ainsi pilotés comme les autres moteurs par le logiciel de contrôle de la ligne (SPEC). Deux diaphragmes circulaires (un de diamètre 10 microns et un de diamètre 20 microns) étaient maintenus sur leur support par des petits ressorts.

Ce système permettait de placer un des diaphragmes dans le faisceau, à 2.5 cm devant l'échantillon, ou de retirer le porte-diaphragme pour laisser passer tout le faisceau. Etant donné la faible course des moteurs, il est arrivé que l'un des diaphragmes ne puisse pas être placé devant la zone d'intérêt de l'échantillon. Concernant la stabilité du système, nous n'avons pas observé de signes de dérive ou de vibrations, malgré le bras de levier relativement important entre la bride et les diaphragmes, sauf pendant une application prolongée du champ magnétique causant

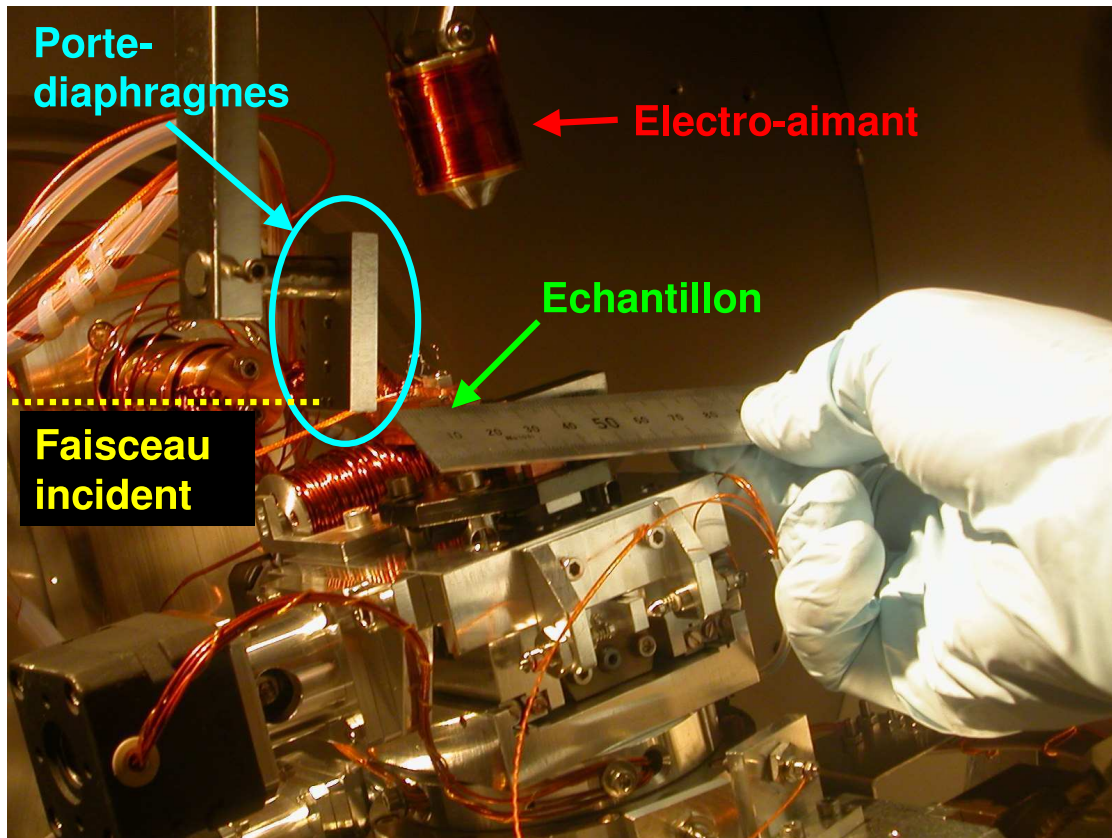


FIG. 5.6 – Photo du premier dispositif utilisé pour positionner les diaphragmes.

un échauffement du dispositif.

Dans le deuxième système, nous avons choisi de placer les diaphragmes dans un support solidaire de la table-échantillon du diffractomètre (Fig. 5.7). Ce support portait 2 diaphragmes et un trou large entre les deux pour pouvoir laisser passer le faisceau direct. Ce sont donc les moteurs du goniomètre qui contrôlaient les diaphragmes. La forme du support était adaptée pour compenser l'angle d'incidence de la table-échantillon. L'échantillon était collé sur un support supplémentaire lié à la table échantillon par les deux moteurs micrométriques utilisés précédemment pour les diaphragmes, de sorte que l'on pouvait déplacer l'échantillon relativement aux diaphragmes.

Avec ce système, les diaphragmes étaient environ 7 millimètres devant la zone éclairée sur l'échantillon.

Les conditions de champ proche sont respectées si $2\lambda d / (2a)^2 \ll 1$, où d est la distance entre l'échantillon et le diaphragme et $2a$ est le diamètre du diaphragme. Avec le premier dispositif, $\lambda d \sim 4 \mu\text{m}^2$, donc on vérifie bien les conditions de champ proche avec le diaphragme de 20 microns, mais mal avec le diaphragme de 10 microns. Avec le deuxième dispositif, $\lambda d \sim 1 \mu\text{m}^2$, donc on vérifie les conditions de champ proche avec ces deux tailles de diaphragme. Ce critère est important pour modéliser l'amplitude de l'onde diffusée par le diaphragme au niveau de l'échantillon.

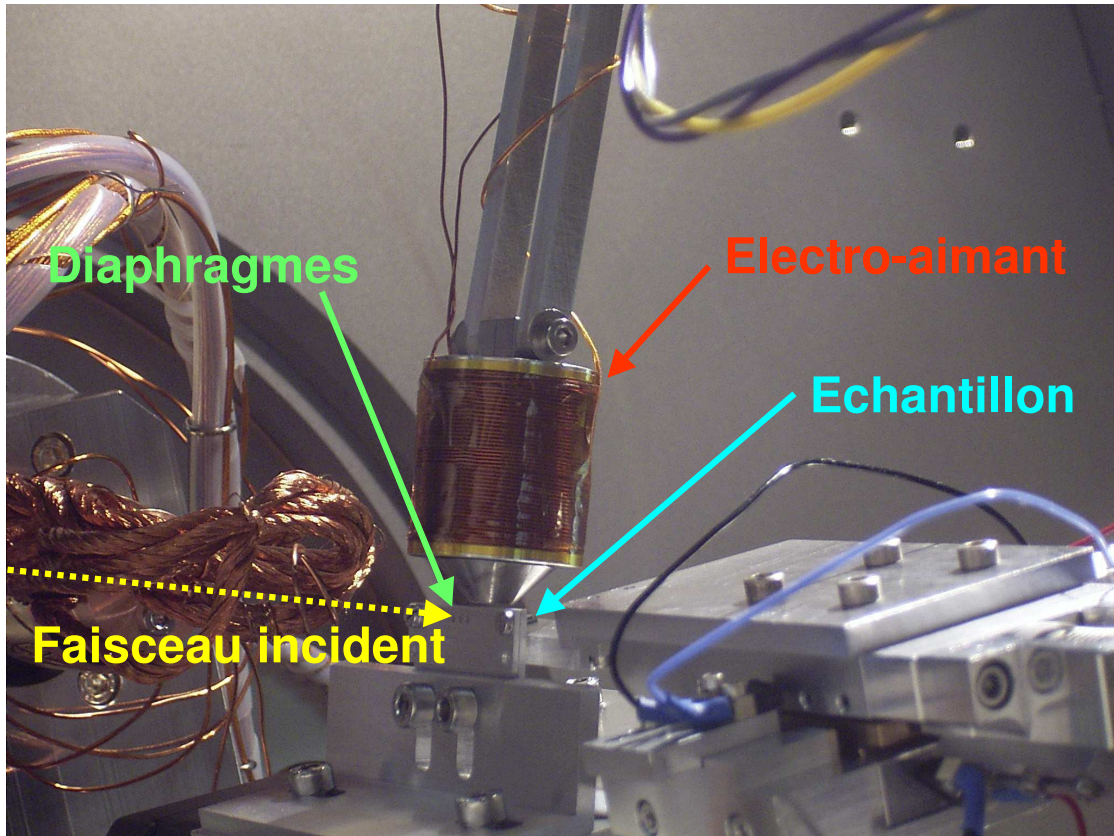


FIG. 5.7 – Photo du deuxième dispositif utilisé pour positionner les diaphragmes.

5.6 Les diaphragmes

Les diaphragmes que l'on place devant l'échantillon ont deux rôles :

- ils servent de filtre de cohérence, en ne laissant passer qu'une fraction de faisceau bien plus cohérente que le faisceau entier. Cela impose de choisir une taille de diaphragme inférieure aux longueurs de cohérence transverses du faisceau.
- ils déterminent la forme de l'onde qui éclaire l'échantillon, et en particulier son extension spatiale.

Le choix de la taille $2a$ du diaphragme est également lié à la résolution de la détection. Avec un détecteur bidimensionnel de taille de pixel $\sim 20\mu\text{m}$ placé à environ 50 cm de l'échantillon, comme c'était le cas pour nos expériences, on dispose d'une résolution angulaire d'environ $40\ \mu\text{rad}$. Or la taille angulaire des speckles est déterminée par la diffraction du diaphragme, de l'ordre de $\lambda/2a$. Avec une longueur d'onde de l'ordre de 1.6 nm, on doit utiliser des diaphragmes de taille au moins inférieure à $30\ \mu\text{m}$.

Ce deuxième rôle explique l'importance qu'il faut accorder à la forme du diaphragme. En effet, les effets de diffraction du diaphragme sont sensibles et l'onde incidente sur l'échantillon n'est plus assimilable à une onde plane. Toutefois, dans le champ lointain du diaphragme ($2\lambda d/(2a)^2 \gg 1$), l'onde est quasi sphérique et peut être localement approximée par une onde plane, si l'échantillon est suffisamment petit. Dans le champ proche, l'amplitude de l'onde est assimilable à une onde plane en face du diaphragme et son module chute très rapidement en s'excentrant. Les variations de phase au voisinage de ce bord franc sont très "rapides" à l'échelle

des nanostructures que nous étudions, ce qui se modélise par une phase aléatoire. Cette situation de champ proche est donc adaptée aux objets de taille inférieure à l'ouverture. Dans les situations intermédiaires, l'amplitude de l'onde a une forme complexe déterminée par la forme et les dimensions du diaphragme. On conçoit alors l'intérêt d'utiliser un diaphragme de forme simple, si l'on veut pouvoir modéliser l'onde diffusée par le diaphragme. Et même dans ce cas là, il est utile de vérifier la qualité du diaphragme (propreté, rugosité des bords...) et ses dimensions.

Les diaphragmes que nous avons utilisés, fournis par Eloïse S.A.R.L., étaient tous en alliage Pt/Ir, de forme circulaire, et de diamètre nominal 10 ou 20 microns. Deux de ces diaphragmes ont été imagés avec un microscope à balayage FEG (Fig. 5.8). Cette image atteste de la qualité du diaphragme, dont la rugosité est inférieure à la limite de résolution. Le diamètre est également mesuré avec une bonne précision. On s'attend donc à pouvoir modéliser correctement l'amplitude qu'il diffracte.

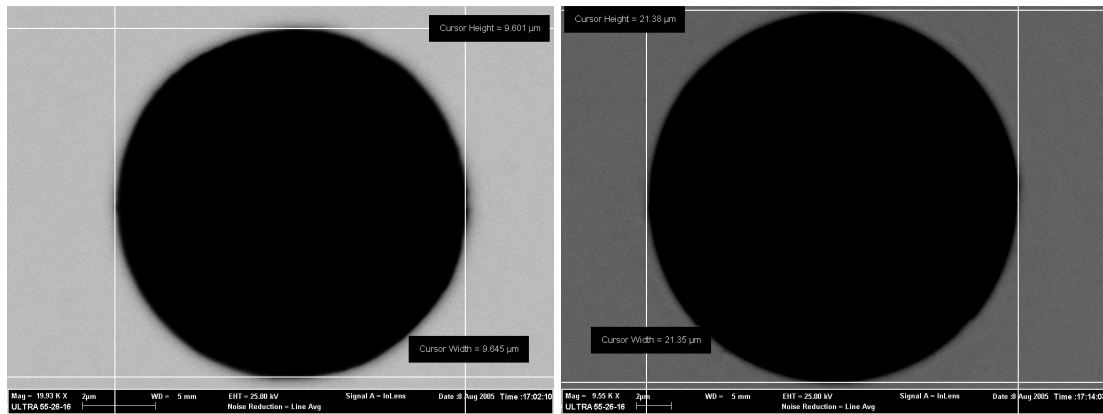


FIG. 5.8 – Images FEG de diaphragmes circulaires de diamètre $\sim 10 \mu\text{m}$ (gauche) et $\sim 20 \mu\text{m}$ (droite).

Lorsqu'un diaphragme est parfaitement circulaire et éclairé par une onde plane cohérente, l'amplitude, et donc l'intensité, qu'il diffracte en champ lointain est décrite par une fonction de Bessel (voir le chapitre Modélisation). Celle-ci a la forme d'oscillations concentriques qui deviennent périodiquement espacées lorsqu'on s'éloigne de leur centre. Ces oscillations sont observables avec des rayons X mous (voir le chapitre sur les résultats expérimentaux), mais également dans le domaine visible, avec un laser.

Nous avons pu évaluer la qualité de nos diaphragmes en mesurant leur diffraction de la lumière aux petits angles (Small Angle Light Scattering, SALS), en collaboration avec C. Rochas (Laboratoire de Spectroscopie Physique de Grenoble). L'expérience consiste à éclairer le diaphragme avec un laser optique et à enregistrer sa diffusion aux petits angles sur une caméra CCD. La qualité des oscillations enregistrées correspond à la circularité du diaphragme. La Figure 5.9 présente quelques résultats obtenus sur les diaphragmes que nous avons utilisés. On voit que l'un d'entre eux est probablement bouché par une poussière. Ceux dont l'image FEG atteste de la qualité produisent effectivement des cercles concentriques presque parfaits, alors que le troisième diaphragme, dont les bords sont mal définis, donne des cercles déformés.

Nous avons pu observer qualitativement les mêmes franges d'interférences avec des rayons X mous.

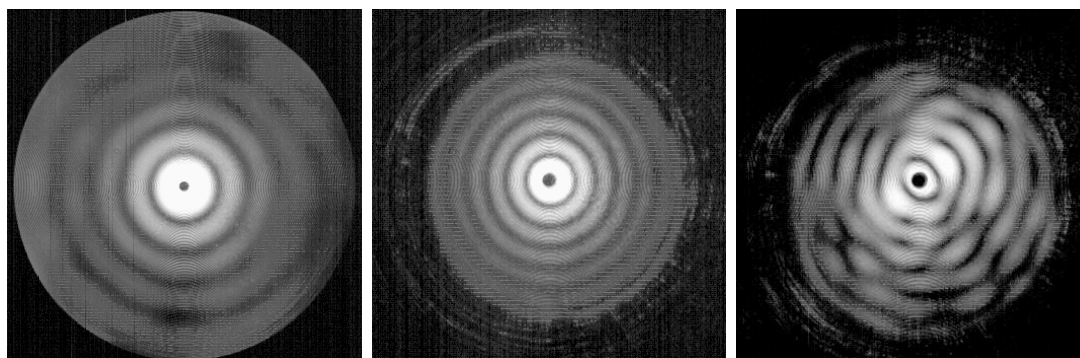


FIG. 5.9 – Spectres SALS de quelques diaphragmes utilisés lors de notre projet. De gauche à droite : le spectre des diaphragmes imagés au FEG (Fig. 5.8) de diamètre 10 et 20 μm respectivement, et le spectre d'un diaphragme de diamètre 20 μm , probablement partiellement bouché.

5.7 La caméra CCD

Pour observer des variations spatiales et/ou temporelles d'intensité, il est important d'utiliser un détecteur performant, qui combine une bonne résolution spatiale, une bonne dynamique et une forte sensibilité afin de mesurer les faibles intensités avec précision. Dans l'état actuel de la technologie, les caméras "CCD" (Charge Coupled Device) sont les détecteurs les plus couramment utilisés pour ce type d'expériences. Ce type de détecteur couvre une zone bidimensionnelle relativement étendue avec une résolution de l'ordre de la taille des pixels, soit de une à quelques dizaines de microns. Leur très bonne sensibilité permet de compter les photons un par un dans les cas favorables. La contrepartie de ce type de détecteur est le temps de lecture de la caméra, qui limite la gamme temporelle des phénomènes qu'on peut étudier : avec une fréquence de lecture typique de 1 MHz, il faut environ 4 secondes pour lire une image de 2048×2048 pixels. On peut éventuellement augmenter la fréquence de lecture, mais au détriment du bruit électronique. Une autre solution pour réduire le temps de lecture est de se limiter à une zone d'intérêt. Dans tous les cas, on descend difficilement en dessous d'une seconde de temps de lecture.

5.7.1 Caractéristiques du détecteur

Nous avons utilisé deux caméras CCD. Nous ne disposons pour nos premières expériences que d'une caméra CCD "classique", à détection directe, comportant 1242×1152 pixels de 22.5 μm de côté. L'éclairage "frontal" dans le domaine des rayons X mous s'est avéré assez destructeur pour toutes les implantations électroniques, qui ne sont pas protégées du rayonnement dans ce type de caméra.

Nos collaborateurs anglais du Magnetic Spectroscopy Group de Daresbury ont par la suite acquis une caméra CCD à illumination arrière ("back illuminated") de marque Andor. Nous en présentons ici une étude.

La puce de la caméra (modèle 42-40 de "e2v") est composée de 2048×2048 pixels de 13.5 microns de côté. Son efficacité quantique atteint 70% à 95% dans la gamme des rayons X mous (400-1500 eV, Fig. 5.10). L'électronique code l'image en entiers de 2 octets, ce qui donne une gamme de 65536 valeurs par pixel.

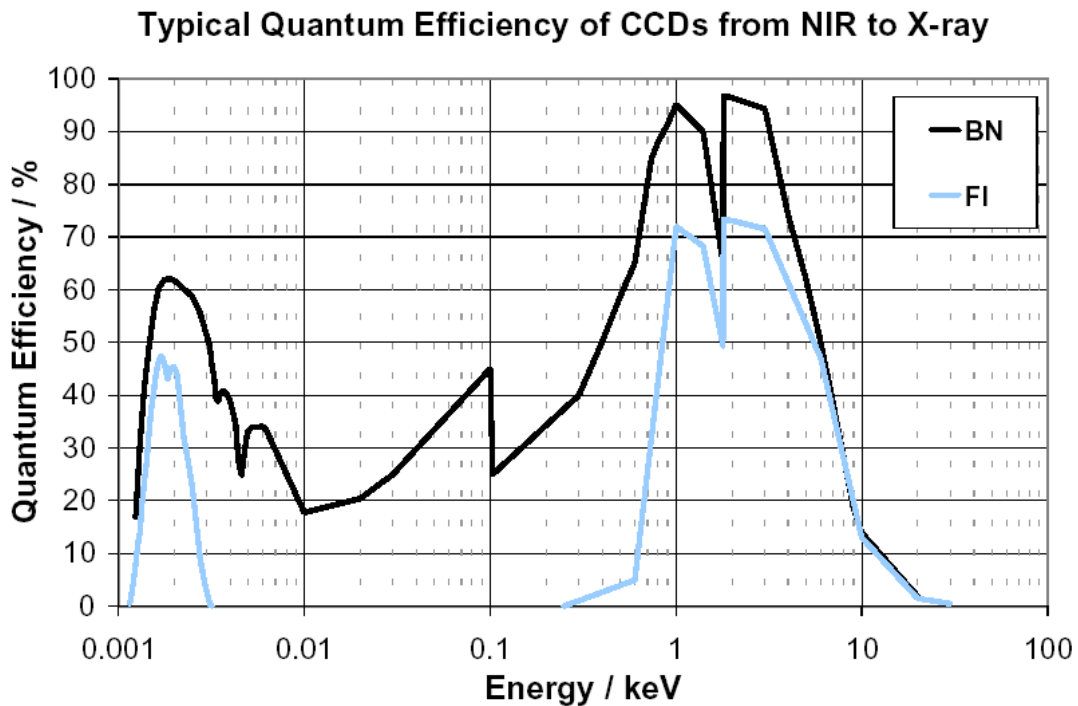


FIG. 5.10 – Efficacité quantique typique du modèle de CCD DO436. En bleu : modèle à illumination frontale ; en noir : modèle à illumination arrière.

La caméra est dite "back illuminated" car les photons arrivent sur la camera par l'arrière, où ils rencontrent directement une couche de silicium d'une centaine de microns d'épaisseur. Cette couche absorbe la quasi-totalité des photons dans la gamme des X mous. L'absorption des photons libère des électrons qui sont drainés sur la face avant vers une électronique adaptée. Le nombre d'électrons libérés par photon dépend de l'énergie du photon et suit une loi bien connue pour le silicium : $n = E(eV)/3.62$. Cela fait plusieurs centaines d'électrons par photon, ce qui permet de détecter chaque photon individuellement. L'électronique transforme le nombre d'électrons en une intensité exprimée en ADU (Analog Digital Units), selon un taux de conversion propre à l'électronique de la chaîne de détection.

Chaque cellule du CCD est un petit condensateur qui sature vers 200000 électrons. Lorsque la saturation est atteinte, les charges en excès se répartissent sur les pixels voisins de la même colonne, ce qui est à éviter. Il convient de choisir le temps d'acquisition en conséquence. Sur la ligne ID08 de l'ESRF, la saturation est atteinte en 1 à 10 secondes environ dans le faisceau cohérent réfléchi par un échantillon métallique.

Remarquons que le taux de conversion des électrons en ADU, qui est une valeur codée en entiers à 2 octets (de 0 à 65536 ADU), est adaptée pour que la saturation électronique d'un pixel corresponde à peu près à la "saturation" du codage numérique.

5.7.2 Etude du bruit de fond du détecteur

Afin d'extraire correctement les photons des images, il faut soustraire du signal enregistré un bruit de fond moyen, pixel par pixel. Il est donc important de caractériser au mieux le bruit de fond du détecteur. Nous en avons donc fait une étude statistique à partir d'une série d'acquisitions

sans faisceau. Il faut que toutes les acquisitions de la série soient réalisées dans des conditions identiques : la distribution du bruit de fond dépend en particulier de la durée d'acquisition et de la température du détecteur.

La distribution des intensités enregistrées $I(i, j, k)$ d'une série (où i et j repèrent les pixels et k est le numéro de l'acquisition dans la série) est caractérisée principalement par sa moyenne μ et sa variance σ^2 , qui seront des données utiles pour le traitement des images. Le coefficient d'asymétrie (*skewness* en Anglais) γ_1 et le coefficient d'excès d'aplatissement (*kurtosis excess* en Anglais) γ_2 permettent en plus d'évaluer l'écart de la distribution à la distribution gaussienne.

On calcule une estimation de ces grandeurs de la manière suivante [104] :

$$\begin{aligned}\mu(i, j) &= \bar{I}(i, j) = \frac{1}{n} \sum_{k=1}^n I(i, j, k) \\ \sigma^2(i, j) &= \frac{1}{n-1} \sum_{k=1}^n [I(i, j, k) - \bar{I}(i, j)]^2 \\ \gamma_1(i, j) &= \frac{n}{(n-1)(n-2)\sigma^3(i, j)} \sum_{k=1}^n [I(i, j, k) - \bar{I}(i, j)]^3 \\ \gamma_2(i, j) &= \frac{(n-1)(n+1)}{(n-2)(n-3)} \left[n \frac{\sum_{k=1}^n [I(i, j, k) - \bar{I}(i, j)]^4}{(\sum_{k=1}^n [I(i, j, k) - \bar{I}(i, j)]^2)^2} - 3 \frac{n-1}{n+1} \right]\end{aligned}$$

La moyenne μ est le bruit de fond que nous cherchons. On utilise son estimation \bar{I} pour corriger les intensités enregistrées avec faisceau. Elle permet en particulier de repérer les pixels chauds, qui ont un bruit de fond plus élevé, et sur lesquels le seuil d'intensité correspondant à l'absorption d'un photon est plus élevé que sur les autres pixels. Une fois ces points identifiés, les autres pixels de forte intensité, qui n'apparaissent que dans une seule image de la série, sont généralement dus aux particules cosmiques. On les élimine afin de recalculer plus précisément les moments statistiques.

La variance σ^2 permet de quantifier l'incertitude sur notre estimation.

Le coefficient d'asymétrie γ_1 quantifie comme son nom l'indique l'asymétrie de la distribution par rapport à la moyenne. Il est nul quand la distribution est parfaitement symétrique. Comme on attend que la distribution soit symétrique, une valeur trop forte de l'asymétrie nous permet de repérer un problème dans la série d'acquisitions, par exemple l'occurrence d'une particule cosmique de forte énergie.

Le coefficient d'excès d'aplatissement γ_2 décrit la finesse du pic de la distribution. Il vaut 0 dans le cas d'une distribution gaussienne ; il est plus grand quand le pic de la distribution est plus aigüe. C'est un critère supplémentaire de la qualité de l'estimation.

Nous avons donc effectué une étude détaillée du fond en prenant des séries de 5 images sans faisceau, en utilisant tout le champ de la caméra (2048x2048 pixels), lue à une fréquence de 1 Mhz, avec différentes durées d'acquisition Δt (1 s, 2 s, 5 s, 10 s, 20 s et 50 s), et à différentes températures T (-45°C, -35°C, -25°C, -15°C, 20°C). Etant donné le faible nombre d'images par série, les estimations des grandeurs statistiques pixel par pixel ont une grande erreur. Nous avons donc étudié leurs moyennes sur l'ensemble des pixels (notation " $\langle \rangle$ ") et supposé qu'elles sont représentatives du comportement de chaque pixel.

Les coefficients d'asymétrie et d'excès d'aplatissement moyens $\langle \gamma_1 \rangle$ et $\langle \gamma_2 \rangle$ sont de l'ordre de 10^{-3} à 10^{-4} pour les séries d'images de température inférieure ou égales à -25°C, quelle que soit la durée d'acquisition, ce qui signifie que les distributions d'intensité peuvent être considérées

comme gaussiennes dans ces cas.

La moyenne \bar{I} et la variance σ^2 , calculées sur une série d'images de même temps d'acquisition Δt et à température T constante, se modélisent assez bien à partir des équations :

$$\begin{aligned}\bar{I}(i, j) &= I_0 + \alpha n(T, i, j) \Delta t \\ \sigma^2(i, j) &= \sigma_0^2 + \alpha^2 n(T, i, j) \Delta t\end{aligned}$$

- I_0 est une constante fixée par le voltage de référence de l'électronique de la caméra et n'a pas de signification physique.
- σ_0^2 est le bruit de l'amplificateur. Il est assez élevé, même prépondérant à basse température, et d'autant plus élevé que la fréquence de lecture est haute (1 MHz dans notre cas).
- α est le taux de conversion des électrons en ADU.
- $n(T, i, j)$ est le courant de fuite, en électrons par unité de temps. Le comportement en température du courant de fuite est assez bien représenté par une loi d'Arrhenius où E_a est l'énergie d'activation du processus :

$$n(T, i, j) = n_0(i, j) \exp\left(-\frac{E_a(i, j)}{k_b T}\right)$$

Les paramètres I_0 , σ_0^2 , α et $n(T, i, j)$ peuvent être obtenus par un ajustement linéaire pour chaque température. La connaissance de $n(T, i, j)$ pour plusieurs températures permet d'estimer $n_0(i, j)$ et $E_a(i, j)$. En pratique, le nombre réduit d'acquisitions (5 par jeu de paramètres $T, \Delta t$) ne nous permettait pas d'obtenir une évaluation raisonnable pixel par pixel. Nous avons donc calculé les moyennes spatiales de ces grandeurs. Il faut dans ce cas rajouter à l'expression de $\langle \sigma^2 \rangle$ un terme quadratique en Δt qui prend en compte la variation pixel à pixel. Les ajustements, à partir de la Figure 5.11, conduisent aux estimations suivantes :

- $I_0 = 334.84 \pm 1.84$ ADU
- $\sigma_0^2 = 12.89 \pm 0.87$ ADU²
- $\alpha = 0.43 \pm 0.09$ ADU/électron
- $\langle n_0 \rangle = 5.57 \cdot 10^{14} \pm 4.86 \cdot 10^{14}$ électrons/s
- $\langle E_a \rangle = 0.737 \pm 0.019$ eV

La barre d'erreur indiquée pour I_0 , σ_0^2 et α est l'écart type des valeurs calculées aux températures -45°C , -35°C , -25°C et -15°C . On voit qu'elle est relativement petite, ce qui confirme que ces paramètres sont indépendants de la température.

Sur la Figure 5.11, qui montre la dépendance du bruit de fond par rapport au temps d'acquisition et à la température, on voit l'importance de refroidir la caméra. En effet, à basse température (-45°C et -35°C), le bruit dû au courant de fuite est négligeable par rapport au bruit de l'amplificateur, pour des temps d'acquisition jusqu'à la cinquantaine de seconde. La distribution de $\sigma^2(i, j)$ à basse température ou avec un faible temps d'acquisition donne donc une bonne représentation de la distribution de $\sigma_0^2(i, j)$ (Fig. 5.13).

A basse température et pour des temps d'acquisition courts, l'intensité due au courant de fuite est négligeable. Le bruit de fond mesuré à $T = -45^\circ\text{C}$ avec $t = 1\text{s}$ est une bonne cartographie de $I_0(i, j)$ (Fig. 5.14). Sa distribution spatiale d'intensité est très proche de la distribution gaussienne. On sait que, à basse température et pour les temps d'acquisition courts, la variance est dominée par le bruit d'amplificateur, indépendant du pixel, ce qui donne un bruit gaussien. Pour des températures plus hautes ou des acquisitions longues (50 secondes), la distribution des intensités moyennes s'écarte de la distribution gaussienne, et devient asymétrique : cette asymétrie est due à la distribution des courants de fuite à travers les pixels, qui ne sont plus négligeables.

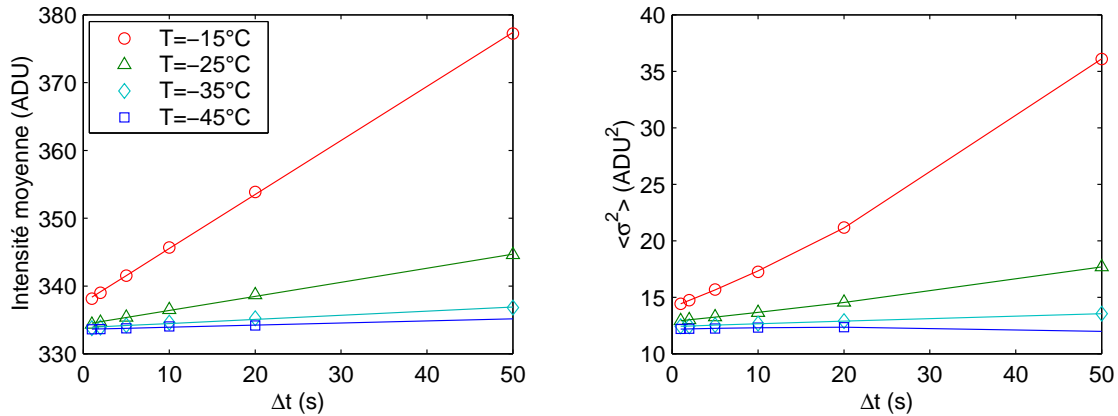


FIG. 5.11 – Moyenne ($\langle \bar{I} \rangle$) et variance ($\langle \sigma^2 \rangle$) des distributions d'intensités sur des mesures de bruit de fond. Les données expérimentales sont représentées par les symboles, les ajustements par des lignes pleines.

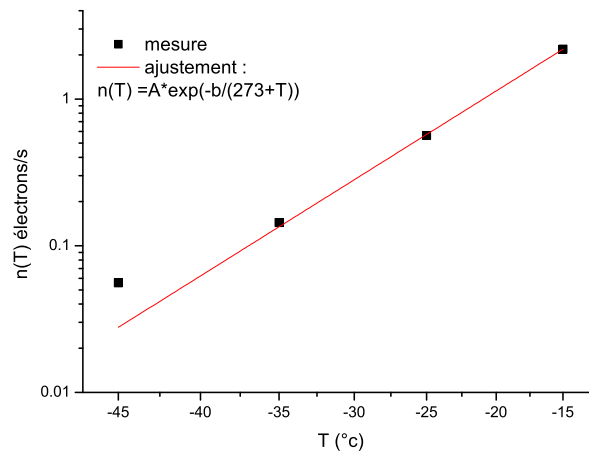


FIG. 5.12 – Courant de fuite en fonction de la température.

La distribution des variances $\sigma^2(i, j)$ est peu dépendante de la température et du temps d'acquisition, comme le montre la Figure 5.13. En supposant que la distribution d'intensité d'un pixel est gaussienne, sa variance doit alors suivre une loi du χ^2 à 4 mesures indépendantes (5 mesures, moins la détermination de la moyenne), qui s'exprime comme :

$$p(x) = \frac{x}{4\sigma} \exp\left(-\frac{x}{2\sigma}\right)$$

En caractérisant ainsi le comportement du détecteur, on calcule une cartographie du fond moyen du détecteur et on évalue l'erreur que l'on peut commettre en retranchant ce fond moyen des images avec faisceau. Nos expériences ont toutes été réalisées à -35°C ou -45°C . A ces températures, l'écart type moyen du bruit de fond est de l'ordre de 3.6 ADU (soit 9 électrons) pour une série de 5 images de 50 secondes (et même moins si on diminue la fréquence de lecture). On verra par la suite que c'est suffisamment petit par rapport à l'intensité créée par l'absorption d'un photon X.

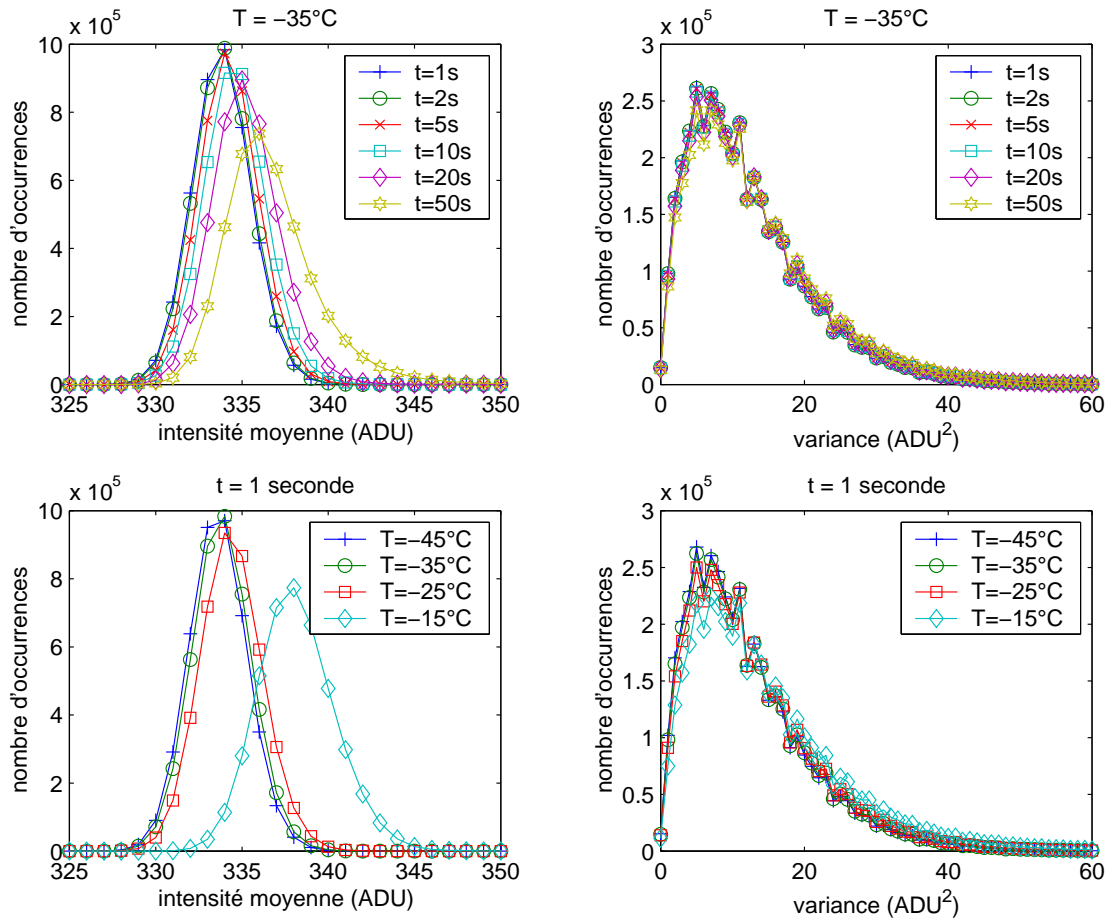


FIG. 5.13 – Distributions de $\bar{I}(i, j)$ et de $\sigma^2(i, j)$. En haut, à température constante $T = -35^\circ\text{C}$ pour différents temps d'acquisition ; en bas, à différentes températures pour un temps d'acquisition de 1 seconde.

5.8 L'algorithme de gouttelettes

Dans cette section, nous allons décrire les principes de fonctionnement d'un algorithme qui permet de compter les photons un par un à partir de la répartition d'intensité enregistrée par l'électronique de la caméra. Cet algorithme est décrit plus précisément dans [105].

5.8.1 Principe de l'algorithme

Le principe de comptage photon par photon consiste à prendre une série d'images dans des conditions identiques, avec un temps d'acquisition pas trop élevé, de telle sorte que le nombre de photons incidents dans la zone d'intérêt du détecteur soit assez petit pour pouvoir les séparer. Dans les cas que nous avons étudiés, le signal magnétique est séparé du signal de charge dans l'espace réciproque, et leur rapport d'intensité garantit que le signal magnétique est formé de photons bien individualisés tant que l'on ne sature pas le signal de charge.

On extrait alors les photons de chaque image, puis on les somme afin d'obtenir une image avec une bonne statistique. Cette méthode permet un comptage précis des photons dans les faibles taux de comptage, ce qui est très important pour analyser un spectre de diffraction co-

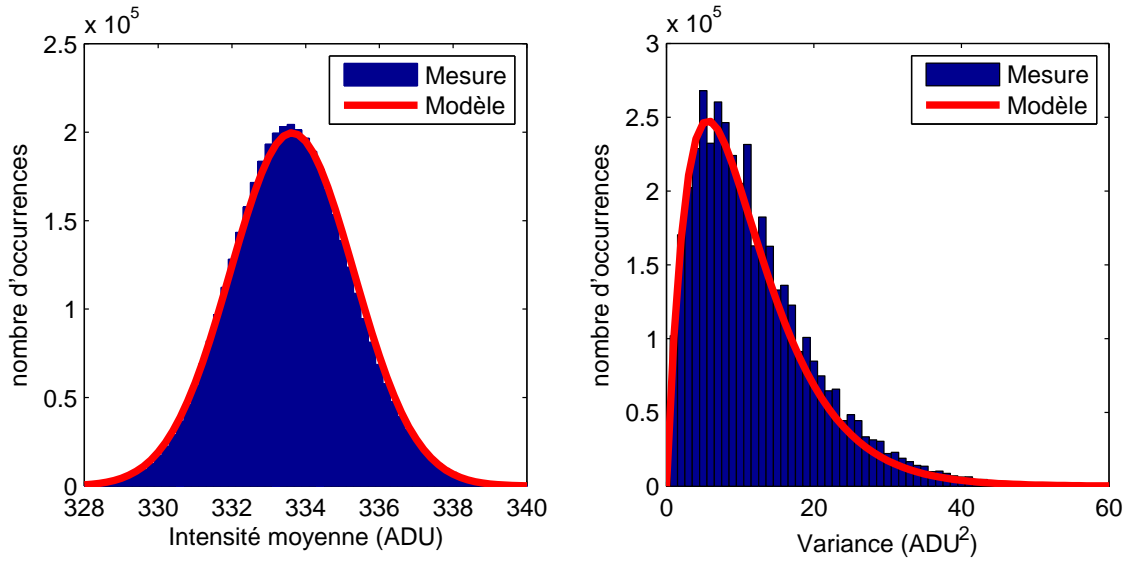


FIG. 5.14 – Fond moyen résultant de l'acquisition de 5 images d'1 seconde à -45°C , et sa distribution d'intensité. Le modèle est une distribution gaussienne de moyenne et d'écart type égaux à ceux de la distribution expérimentale ($\bar{I} = 333.63 \text{ ADU}$ et $\sigma = 1.80 \text{ ADU}$).

hérente, dans la mesure où les faibles intensités sont aussi importantes que les fortes intensités. Au contraire, si on somme plusieurs images brutes ou si l'on prend une image avec un trop long temps d'acquisition, de faibles intensités dues au bruit du détecteur peuvent devenir suffisamment importantes pour se confondre avec les coups utiles.

On travaille donc à partir d'images contenant peu de photons dans la zone d'intérêt. La première étape consiste à corriger chaque image en lui soustrayant un fond moyen que l'on aura caractérisé comme expliqué ci-dessus et mesuré dans un temps proche de l'expérience. On élimine ainsi les effets de "pixels chauds", ainsi qu'une partie des fluctuations à long terme de la ligne de base du convertisseur Analogique / Digital que l'on observe souvent.

Le rôle de l'algorithme de gouttelettes consiste alors à extraire les photons un par un dans une image corrigée. Son principe est le suivant : on balaie les pixels du détecteur jusqu'à rencontrer une intensité supérieure à un certain seuil. Il faut que ce seuil soit suffisamment supérieur au bruit de fond du détecteur. Quand ce seuil est atteint, on a potentiellement détecté un photon. On balaie alors les pixels premiers voisins pour voir lesquels dépassent également le seuil critique, puis les premiers voisins de ceux-ci et ainsi de suite, de proche en proche, afin de déterminer une zone connexe de pixels où le seuil critique est dépassé. On appelle cette zone une "gouttelette". L'intensité totale qu'elle porte permet de déterminer le nombre exact de photons qu'elle comprend, quand celui-ci est suffisamment bas. La répartition de cette intensité permet de déterminer précisément dans quel pixel chaque photon est arrivé, en conservant ainsi la résolution du pixel.

5.8.2 Distribution d'intensité des gouttelettes

Quand tous les pixels de l'image ont été balayés, on dispose d'une cartographie des gouttelettes avec leur position et leur intensité. Le résultat dépend en particulier de 2 paramètres de l'algorithme : la valeur d'un photon en ADU et le seuil de détection. On détermine ces paramètres à partir de la courbe de distribution des intensités des gouttelettes (Fig. 5.15).

Celle-ci présente des oscillations périodiques dont la période est l'intensité moyenne créée

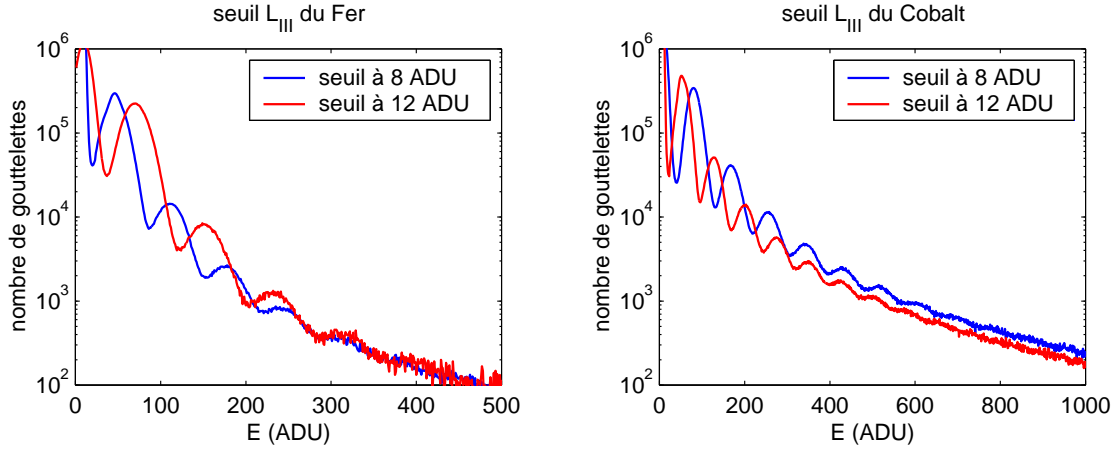


FIG. 5.15 – Distributions d'intensités des gouttelettes en ADU. A gauche, au seuil L_{III} du Fer (707.7 eV), un photon donne 76 ADU ; à droite, au seuil L_{III} du Cobalt (778.9 eV), un photon donne 87 ADU. Les courbes rouges sont calculées avec un seuil de détection trop haut : les oscillations sont décalées.

par un photon X. Le premier pic correspond à l'absorption d'un photon. Nous avons déterminé ainsi la valeur des photons à 708 eV (seuil L_{III} du Fer) et 778 eV (seuil L_{III} du Cobalt) à respectivement à 76 ADU et 87 ADU. Le taux de conversion d'un photon en électrons dans le silicium étant connu ($n = E(\text{eV})/3.62$), on obtient ainsi une estimation du taux de conversion α d'un électron en ADU : $\alpha \approx 0.40 \pm 0.01$ ADU/électron. Cette estimation est compatible avec celle déterminée plus haut, d'après la Figure 5.11 ($\alpha \approx 0.43$ ADU/électrons). Cette dernière valeur est déterminée à partir d'un ajustement de quelques points, et nous pensons que la valeur déterminée à partir des oscillations dans la distribution d'intensité des gouttelettes est plus précise.

De plus, si les oscillations de la courbe de distribution des intensités des gouttelettes sont décalées par rapport à l'origine, cela signifie que le seuil de détection est mal choisi. Avec la CCD que nous avons utilisée, il faut utiliser un seuil de détection assez bas (8 ADU), car l'intensité des photons est étalée sur plusieurs pixels : avec un seuil plus haut, on perd une partie de l'intensité des gouttelettes. Ce seuil est assez bas, alors que l'écart type du bruit de fond de la caméra est de l'ordre de 3.6 ADU, mais on élimine les gouttelettes dont l'intensité totale est inférieure à un certain seuil (ici 40 ADU) bien inférieur à la valeur d'un photon.

Si les paramètres de l'algorithme sont bien réglés, on est capable de déterminer le nombre de photons contenus dans chaque gouttelette, si ceux-ci sont peu nombreux.

Cas des gouttelettes à 1 photon

Voyons d'abord le cas des gouttelette issues de l'absorption d'un seul photon.

Pour chaque gouttelette G_k , on établit son centre de gravité (x_k, y_k) et sa taille $(\Delta x_k^2, \Delta y_k^2)$ en pixels :

$$(x_k, y_k) = \frac{1}{N_{\text{pixels}}} \sum_{i,j \in G_k} I(i, j)(i, j)$$

$$(\Delta x_k^2, \Delta y_k^2) = \frac{1}{N_{\text{pixels}}} \sum_{i,j \in G_k} I(i, j)((i, j) - (x_k, y_k))^2$$

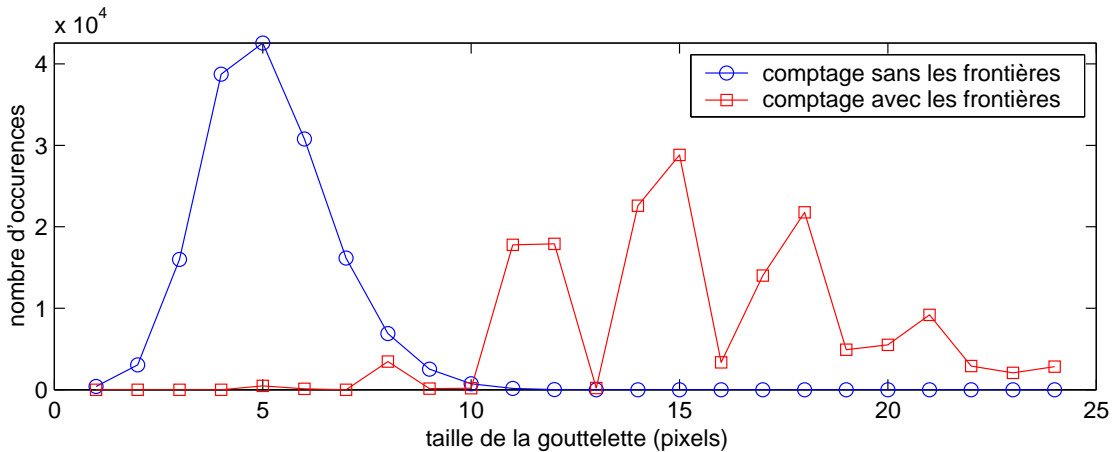


FIG. 5.16 – Distributions de taille des gouttelettes à 1 photon en ADU, pour une série de 100 images au seuil L_3 du Cobalt. Cette distribution dépend de la manière donc on identifie les gouttelettes, selon que l'on inclut leur frontière ou non.

La distribution du nombre de pixels contenus dans les gouttelettes à 1 photon est montrée Figure 5.16, pour deux manières différentes de définir les gouttelettes. L'une s'en tient aux pixels connexes dont l'intensité est supérieure au seuil de détection, alors que la deuxième inclut aussi leurs premiers voisins (la "frontière" de la gouttelette), pour prendre en compte la dispersion des charges : en effet, les électrons libérés par l'absorption d'un photon se dispersent légèrement en traversant la couche de silicium jusqu'à l'électronique, ce qui explique que les gouttelettes à un photon s'étalent généralement sur plus qu'un pixel.

La distribution du nombre de pixels contenus dans les gouttelettes à 1 photon définies sans les frontières présente un pic bien défini vers 4-5 pixels. Nous avons en effet observé que la forme la plus courante des gouttelettes sans leur frontière est un carré de 2×2 pixels, avec parfois un pixel supplémentaire.

Le nombre de pixels inclus dans les gouttelettes à 1 photon comptées avec leur frontière est plus varié, mais proche de la situation d'un carré central de 2×2 pixels entouré de ses 8 pixels frontières (12 pixels en tout), ou de la situation d'un ensemble de $2 \times 2 + 1$ pixels avec leurs 9 pixels frontières (14 pixels en tout).

Nous avons choisi, pour traiter les images avec une forte dynamique des intensités, d'inclure les frontières dans le traitement des gouttelettes.

Le nombre moyen de pixels par gouttelette contribue à la largeur des oscillations dans la distribution des intensités des gouttelettes (Figure 5.15) : le bruit de chaque pixel étant essentiellement celui de l'amplificateur $\sigma_0^2 \sim 13 \text{ ADU}^2$, la contribution de 16 pixels à la largeur à mi-hauteur des pics de distribution est $2.35 \times \sqrt{16 \times 13} \approx 34 \text{ ADU}$: c'est environ la largeur à mi-hauteur que l'on observe dans le cas d'un photon individuel, ce qui montre que l'étalement des photons est la cause principale de la dispersion statistique de l'intensité des gouttelettes.

Cas des gouttelettes à plusieurs photons

On peut étudier "l'étalement" d'un photon à partir de la distribution de taille des gouttelettes en fonction du nombre de photons qu'elles contiennent, en déterminant une taille moyenne des

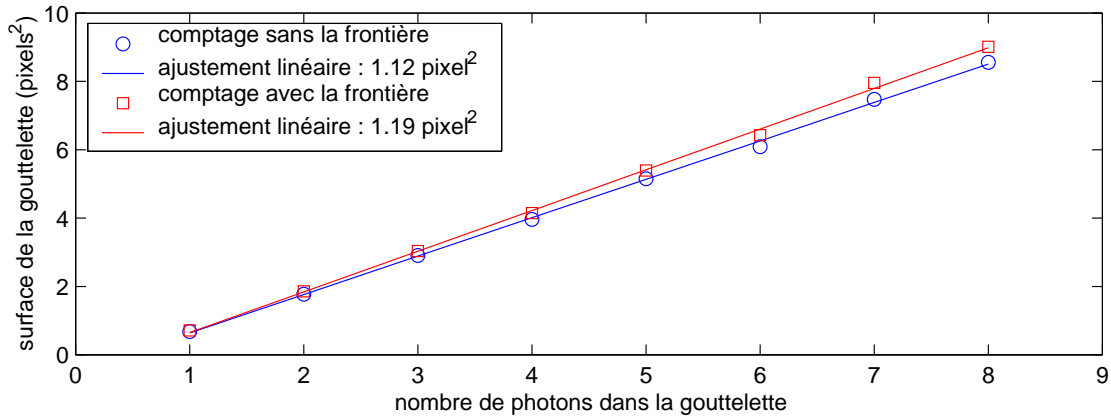


FIG. 5.17 – Taille moyenne des gouttelettes en pixels², en fonction du nombre de photons qu'elles contiennent, pour une série de 100 images au seuil L_3 du Cobalt.

gouttelettes en fonction du nombre de photons :

$$\langle \Delta r^2 \rangle_n = \langle \Delta x^2 + \Delta y^2 \rangle_n$$

où la moyenne se fait sur les gouttelettes contenant n photons. Un ajustement linéaire permet d'en tirer l'étalement d'un photon (Fig. 5.17). Cet étalement est de l'ordre de 0.7 pixel en écart type, donc de l'ordre de 2 pixels en terme de largeur à mi-hauteur. C'est assez étalé, mais le calcul du centre de gravité de la gouttelette nous permet d'estimer la position de l'impact avec une résolution du pixel.

Comme le nombre de pixels inclus par gouttelette augmente rapidement avec le nombre de photons, la largeur de la distribution des charges augmente aussi, ce qui limite la visibilité des oscillations à environ 5 rayons X dans le cas de la figure 5.15.

Dans le cas où l'intensité devient grande, l'algorithme revient à diviser l'intensité sur chaque pixel par la valeur en ADU du photon.

5.8.3 Efficacité de l'algorithme

Nous présentons ici un exemple concret montrant l'efficacité de l'algorithme. L'image que nous avons étudiée est issue d'une série de 1000 mesures avec faisceau suivie d'une série de 100 mesures sans faisceau, qui permettent de caractériser le bruit de fond du détecteur. Nous avons étudié 3 zones assez différentes de cette image, et nous allons montrer l'apport du traitement par l'algorithme de gouttelettes pour ces 3 cas.

Respect de la dynamique

La Figure 5.18 représente les anneaux de diffraction d'un diaphragme circulaire de diamètre 10 μm , observés en réflexion sur l'échantillon. L'intensité suit une fonction de Bessel d'ordre 1 en fonction du vecteur de diffusion planaire q_r , et décroît asymptotiquement à la fonction $1/q_r^3$.

Les anneaux de diffraction apparaissent clairement sur 6 ordres de grandeurs, et la décroissance en q_r^3 est régulière. La courbe $I(q_r) \times q_r^3$ montre que l'algorithme de gouttelettes n'induit pas de distortion entre les différents ordres de grandeurs.

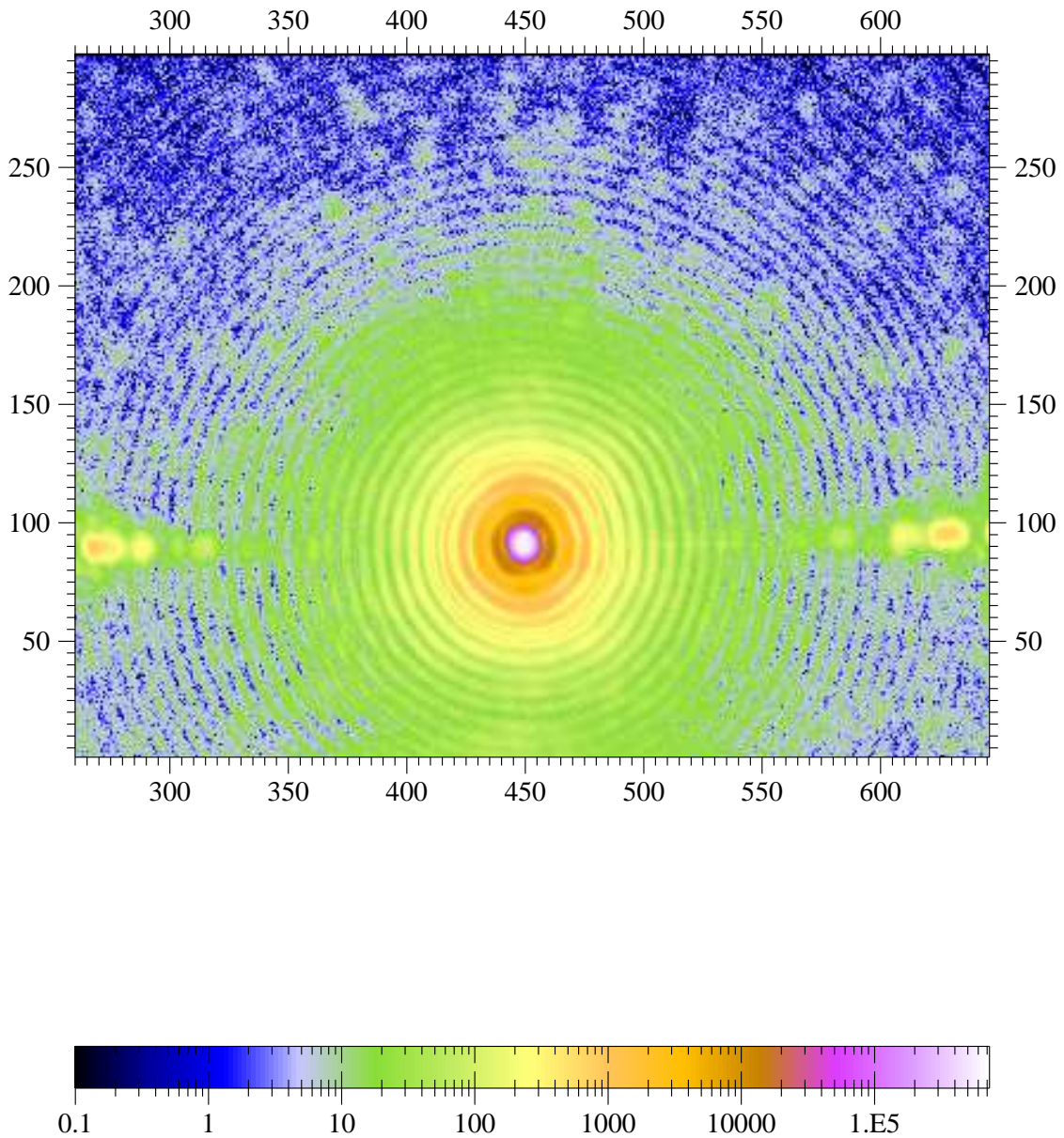


FIG. 5.18 – Anneaux de diffraction d'un diaphragme circulaire de diamètre $10\ \mu\text{m}$, observés en réflexion sur l'échantillon.

Dans les zones de forte intensité, l'effet de l'algorithme est marginal, car les fluctuations statistiques sont naturellement moyennées et le bruit négligeable. Seul l'effet de l'étalement des photons demeure, mais il n'induit pas d'erreur significative si le contraste d'intensité "réelle" est faible de pixel à pixel. Nous allons montrer maintenant l'intérêt de l'algorithme pour les zones de faible intensité.

Remarque

A partir de la Figure 5.19, on retrouve le rayon a du diaphragme par les oscillations qu'il engendre : leur période est $\Delta q_r = 2\pi/a$. Ici, on a 28 oscillations sur 200 pixels. Connaissant la distance entre l'échantillon et le détecteur ($D \approx 61\ \text{cm}$), la taille des pixels ($t = 13.5\ \mu\text{m}$) et la

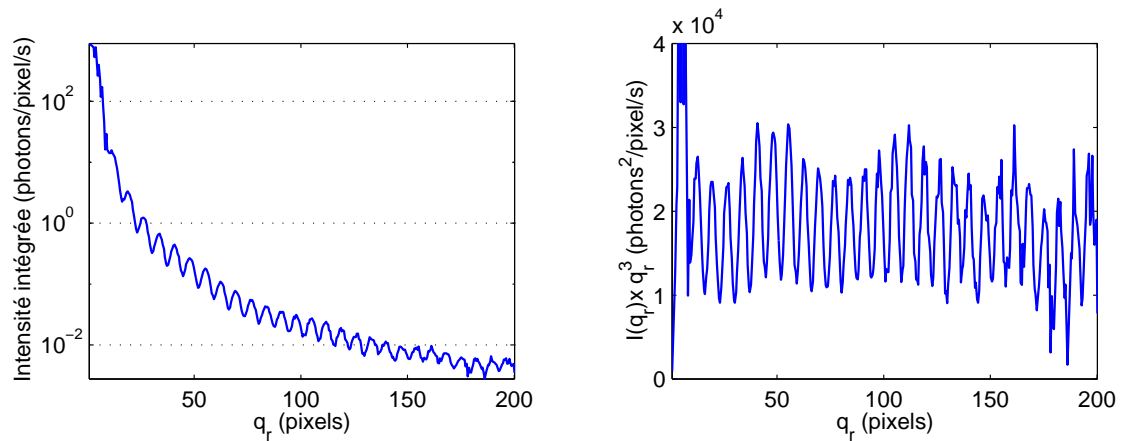


FIG. 5.19 – A gauche, l'intensité intégrée angulairement ; à droite, l'intensité intégrée angulairement multipliée par q_r^3 .

longueur d'onde ($\lambda = 1.59$ nm), on vérifie (et c'est bien le cas) :

$$\frac{2\pi}{a} \approx \frac{2\pi}{\lambda} \frac{200}{28} \frac{t}{D}$$

Zones de faible intensité

La Figure 5.20 montre l'efficacité de l'algorithme pour les zones de faible intensité : il permet de diminuer considérablement le bruit. Il permet aussi de corriger les artefacts d'intensité qui ne sont pas dus à des photons utiles. Par exemple, sur la Figure 5.20, on élimine une traînée induite par la saturation d'un pixel lointain (plus de 1000 pixels à gauche de cette zone).

Etude quantitative du bruit

Etudions maintenant quantitativement la variance de la distribution des intensités enregistrées en ADU sur une zone de faible intensité. L'exemple que nous allons présenter (Figure 5.21) est tiré de la même série d'acquisitions que la Figure 5.20, mais concerne une zone sans traînée de saturation, et où le fond diffus est constant, afin de simplifier le calcul. Cette zone comporte 23700 pixels. La série d'acquisitions comprend 1000 images de 0.8 secondes avec faisceau et 100 images de 0.8 secondes sans faisceau (Fig. 5.21).

Considérons une image calculée à partir de N_m mesures avec faisceau corrigées par un bruit de fond moyen déterminé à partir de N_d mesures sans faisceau. On note respectivement I et n_X l'intensité calculée en ADU et le nombre moyen de photons sur un pixel donné. Les principales contributions à la variance totale, moyennées sur la zone d'intérêt, sont les suivantes :

- Le bruit de Poisson sur le nombre de coups : n_X
- La variance due à la cohérence du faisceau : βn_X^2 . Le coefficient β mesure le degré de cohérence et est compris entre 0 et 1. Les méthodes permettant d'évaluer ce coefficient sont détaillées dans le chapitre suivant. Ici, il est de l'ordre de 0.6.
- Ces deux contributions sont augmentées du facteur multiplicatif G qui rend compte de la dispersion du nombre d'électrons libérés par photon absorbé et de la dispersion spatiale

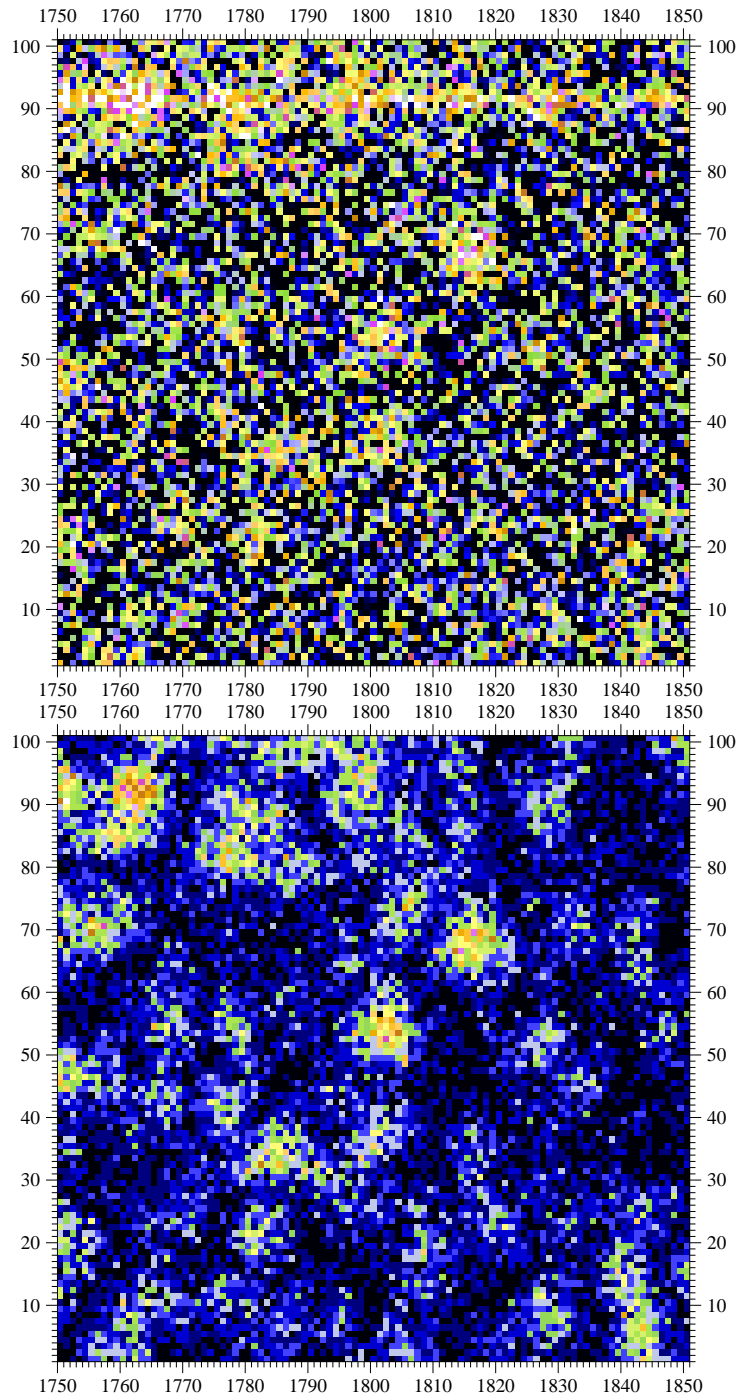


FIG. 5.20 – Zone de faible intensité (100×100 pixels). En haut, image obtenue en sommant 1000 images corrigées avec 100 fonds équivalents. En bas, image obtenue avec l'algorithme de gouttelettes à partir des 1000 mêmes images et 100 mêmes fonds. Les échelles ont été choisies pour que les intensités soient équivalentes, selon le taux de conversion du photon en ADU (ici, 87 ADU/photon). L'intensité maximale sur ces images est de 18 photons.

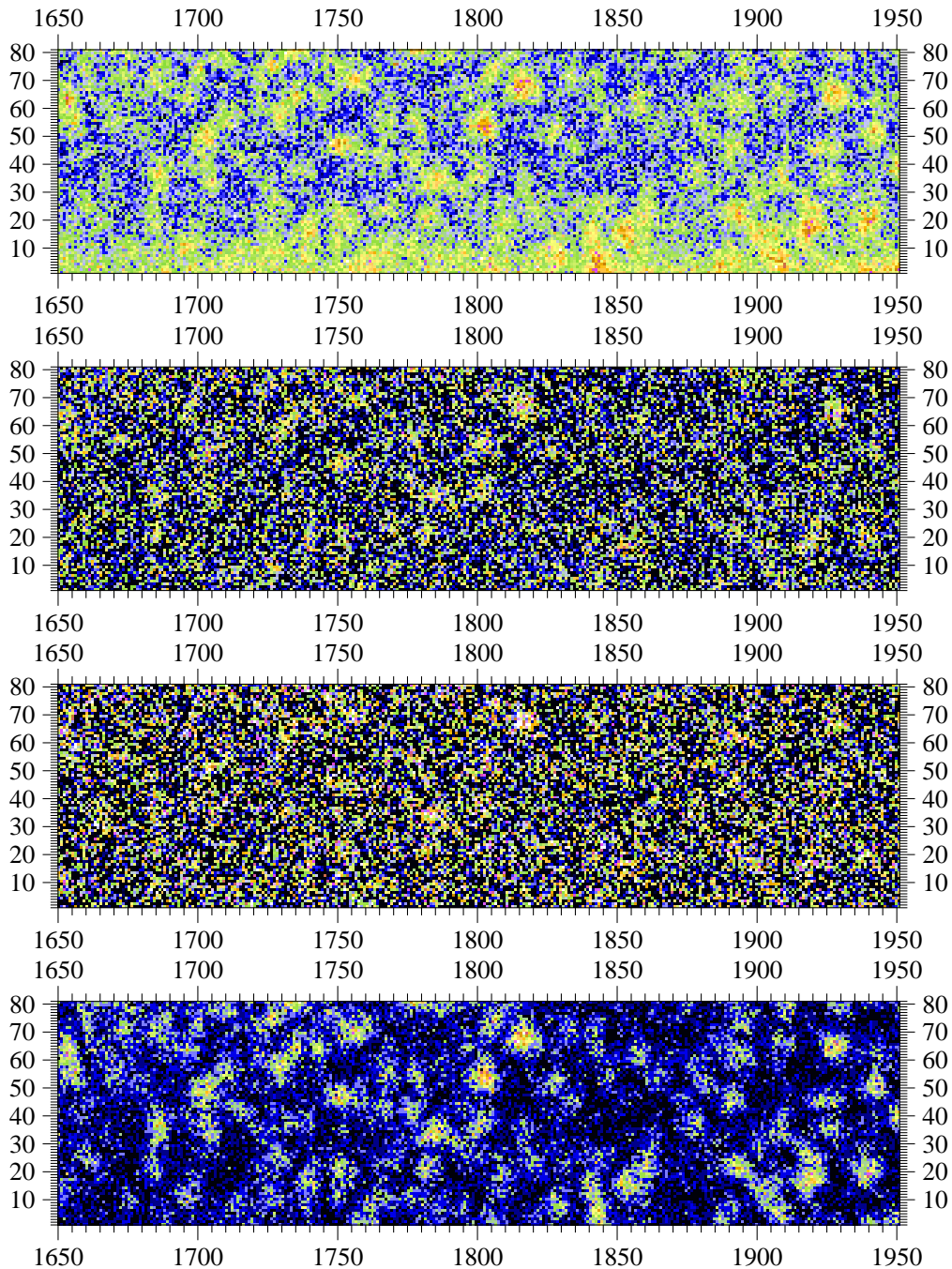


FIG. 5.21 – Zone de faible intensité. De haut en bas : 1) somme de 1000 images brutes, 2) somme de 1000 images corrigées de 100 images du bruit de fond (comptées 10 fois chacune), 3) somme de 100 images corrigées de 100 images du bruit de fond, 4) somme de 1000 images traitées par l'algorithme de gouttelettes. L'intensité maximale sur ces figure est 14 photons sur le même pixel. On voit ici l'efficacité de l'algorithme, qui élimine presque entièrement le bruit dû au détecteur. On remarque également que la correction du bruit de fond induit énormément de bruit, au point de masquer les speckles que l'on aperçoit sur l'image brute.

de ces électrons :

$$G = \sum_{E,\Delta} E^2 g(E, \Delta)$$

E est l'énergie en ADU associée à l'absorption du photon, Δ est la distance entre un pixel et le centre d'impact, $g(E, \Delta)$ est la réponse du détecteur à un rayon X.

$$\bar{E} = \sum_{E,\Delta} E g(E, \Delta)$$

\bar{E} est le taux de conversion moyen du photon en ADU, que nous avons déterminé plus haut à 87 ADU/photon au seuil L_3 du Cobalt. On peut déterminer la valeur de G à partir des résultats de l'algorithme de gouttelettes. Nous l'avons évalué ici à $G = 1800 \pm 100 \text{ ADU}^2$ [106].

- Le bruit propre σ_{CCD}^2 du détecteur. A basse température et pour les temps d'acquisitions courts, il est essentiellement dû au bruit de l'amplificateur σ_0^2 (on néglige les courants de fuite). Le bruit sur les N_m mesures est donc $N_m \sigma_0^2$. On détermine $N_d \sigma_0^2$ à partir de N_d mesures du bruit de fond, et une règle de trois nous donne une évaluation de $N_m \sigma_0^2$. Si le nombre d'images sans faisceau est différent du nombre d'images avec faisceau, on doit les remettre à l'échelle pour calculer l'image corrigée. Le bruit résultant de la correction du bruit de fond est donc $(N_m/N_d)^2 N_d \sigma_0^2$. Le bruit total dû au détecteur est donc :

$$\sigma_{CCD}^2 = \left(\frac{N_m}{N_d} + \left(\frac{N_m}{N_d} \right)^2 \right) N_d \sigma_0^2$$

La variance totale s'écrit donc :

$$\overline{I^2 - \bar{I}^2} = G (n_X + \beta n_X^2) + \sigma_{CCD}^2$$

Nous avons choisi une région du détecteur où l'intensité diffuse est constante (les seules variations significatives d'intensité sont dues au speckles), afin de pouvoir approximer les moyennes statistiques par des moyennes spatiales calculées sur la région choisie :

$$\langle I^2 - \langle I \rangle^2 \rangle = G (\langle n_X \rangle + \beta \langle n_X \rangle^2) + \sigma_{CCD}^2$$

On a négligé les variations pixel à pixel du bruit de fond du détecteur et du nombre de rayons X enregistrés, et on a supposé que G est uniforme sur le détecteur.

La partie utile du signal, que l'on souhaite maximiser, est le terme $G\beta n_X^2$. On peut exprimer le rapport signal sur bruit comme :

$$SNR = \frac{G\beta n_X^2}{G n_X + \sigma_{CCD}^2}$$

L'analyse des $N_d = 100$ images sans faisceau nous a permis de déterminer le bruit intrinsèque moyen du détecteur : $N_d \sigma_0^2 \approx 1304 \text{ ADU}^2$.

Le nombre moyen de rayons X enregistrés est calculé à partir de l'intensité moyenne et du taux de conversion photon/ADU : $\langle I \rangle = 87 \langle n_X \rangle$

Prenons 2 exemples tirés de la Figure 5.21 :

1. Si l'on ne considère que 100 images avec faisceau et les 100 images sans faisceau, les différentes contributions sont :

- $\langle n_X \rangle = \langle I \rangle / 87 \approx 0.203$
- $G \langle n_X \rangle \approx 365 \text{ ADU}^2$
- $G\beta \langle n_X \rangle^2 \approx 37 \text{ ADU}^2$
- $\sigma_{CCD}^2 \approx 2 \times 1304 = 2608 \text{ ADU}^2$

On estime donc la variance totale à environ 3010 ADU^2 , ce qui est très proche de la variance que l'on mesure sur l'image corrigée : 2973 ADU^2 . L'écart est de l'ordre de 1%.

Le rapport signal sur bruit est ici très faible, de l'ordre de 1%. Il serait de 10% sans le bruit du détecteur.

2. Si l'on prend les 1000 images avec faisceau et les 100 images sans faisceau, les différentes contributions sont :

- $\langle n_X \rangle = \langle I \rangle / 87 \approx 2.06$
- $G \langle n_X \rangle \approx 3708 \text{ ADU}^2$
- $G\beta \langle n_X \rangle^2 \approx 3819 \text{ ADU}^2$
- $N_m \sigma_0^2 \approx 10 \times N_d \sigma_0^2 = 13040 \text{ ADU}^2$
- $\left(\frac{N_m}{N_d}\right)^2 N_d \sigma_0^2 = 100 \times 1304 = 130400 \text{ ADU}^2$
- $\sigma_{CCD}^2 = 143440 \text{ ADU}^2$

On estime donc la variance totale à 150967 ADU^2 , ce qui est encore très proche de la variance que l'on mesure sur l'image corrigée : 154174 ADU^2 . L'écart est de l'ordre de 2%.

Le rapport signal sur bruit est ici environ de 2.6% seulement, alors qu'il serait d'environ 1 sans le bruit du détecteur.

Les estimations précédentes sont faites sur un nombre relativement modeste de pixels (23700), en considérant l'intensité diffuse sous-jacente aux speckles constante et en négligeant les variations de bruit de l'amplificateur pixel à pixel. Cela explique les faibles différences entre nos estimations et les valeurs mesurées.

On constate que dans les deux cas, le bruit intrinsèque du détecteur est largement dominant, par sa contribution à la fois sur les images avec faisceau et les images sans faisceau : il représente 87% de la variance totale dans le premier cas et 95% dans le deuxième cas. De plus, on amplifie considérablement ce bruit si on n'enregistre pas autant d'images sans faisceau qu'avec faisceau. Dans le deuxième exemple, la variance due au bruit est 5.5 fois plus élevée que si on avait partagé le temps de mesure également entre mesure du signal et mesure du bruit de fond.

On constate ici l'intérêt de l'algorithme de gouttelettes, qui élimine presque entièrement le bruit électronique et augmente le contraste des rayons X en supprimant l'effet d'étalement des rayons X. La variance n'est donc due qu'au bruit poissonien et à la cohérence du faisceau :

$$\langle (n_X - \langle n_X \rangle)^2 \rangle = (n_X + \beta n_X^2)$$

Le rapport signal sur bruit est alors $\beta \langle n_X \rangle$, soit respectivement 10% et 1 pour les deux exemples.

Chapitre 6

Diffraction cohérente de domaines magnétiques périodiques

Au cours de nos 4 campagnes de mesures, nous avons étudié principalement deux types d'échantillons : des couches minces de FePd formant des domaines en rubans, telles que celles présentées dans le chapitre 2, et des nanolignes parallèles gravées dans le silicium et recouvertes d'une multicouche de Co/Pt. Pour ces deux types d'échantillon, nous avons étudié le cas du support infini (échantillon bien plus grand que le faisceau défini par le diaphragme) et le cas du support fini (échantillon plus petit que le faisceau). Nous présentons dans cette section les principaux résultats expérimentaux obtenus sur ces échantillons, en terme de corrélations de speckles. La modélisation et la reconstruction de configurations magnétiques concerne les deux sections suivantes.

6.1 Diffraction magnétique cohérente de films minces de FePd

Dans le chapitre 2, nous avons étudié des couches minces de FePd présentant des rubans magnétiques alignés. Nous avons vu que la diffraction magnétique de ses domaines donne lieu à des pics dans l'espace réciproque dont la position correspond à la période magnétique moyenne et la largeur au désordre de ces rubans. Eclairés en faisceau cohérent, ces pics diffus se fragmentent en une figure contrastée de speckles propre à la configuration particulière des rubans éclairés par le faisceau [3].

Les résultats présentés ici ont été obtenus lors de notre première campagne de mesures, au cours de laquelle nous ne disposions pas encore de la caméra CCD décrite plus haut, mais d'une caméra CCD à illumination frontale, disposant d'un champ de 1242×1152 pixels de $22.5 \mu\text{m}$ de côté. Cette caméra couvre donc à peu près la même étendue de l'espace réciproque que celle décrite plus haut, mais avec une résolution moindre.

Nous avons utilisé ici un diaphragme de diamètre $20 \mu\text{m}$ positionné 2.5 cm devant l'échantillon grâce au premier dispositif décrit plus haut (Fig. 5.6).

6.1.1 Description de l'échantillon

L'échantillon est une couche mince de FePd de faible anisotropie magnéto-cristalline. Ce type de système permet la formation de domaines en rubans particulièrement bien alignés et dont l'aimantation oscille autour du plan de la couche sans jamais attendre la direction perpendiculaire (cf. Chapitre 1). La composante de l'aimantation parallèle à l'axe des rubans est donc la seule à

avoir un moment net non-nul, les deux autres composantes ayant en première approximation tous leurs coefficients de Fourier pairs nuls. La période magnétique de l'échantillon, évaluée d'après les images de Microscopie à Force Magnétique (Fig 6.1), est de 101 nm.

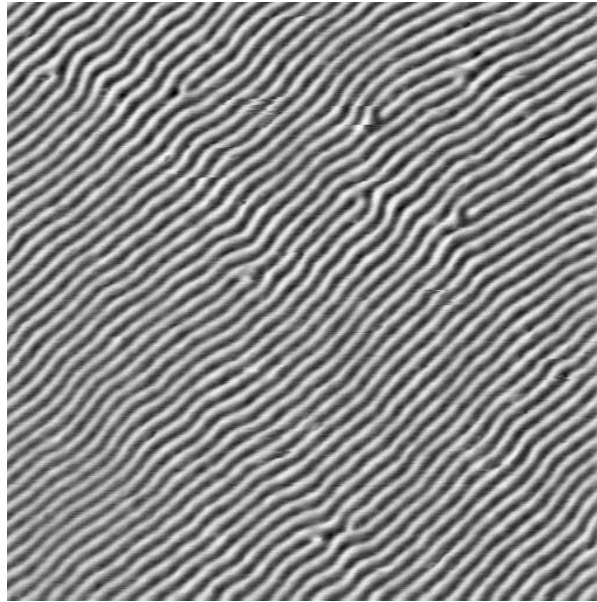


FIG. 6.1 – Image MFM de $4 \times 4 \mu\text{m}$ de la couche mince de FePd. Les rubans magnétiques sont alignés selon une direction cristalline $[1\ 0\ 0]$, à 45° de l'image. La période magnétique est de 101 nm.

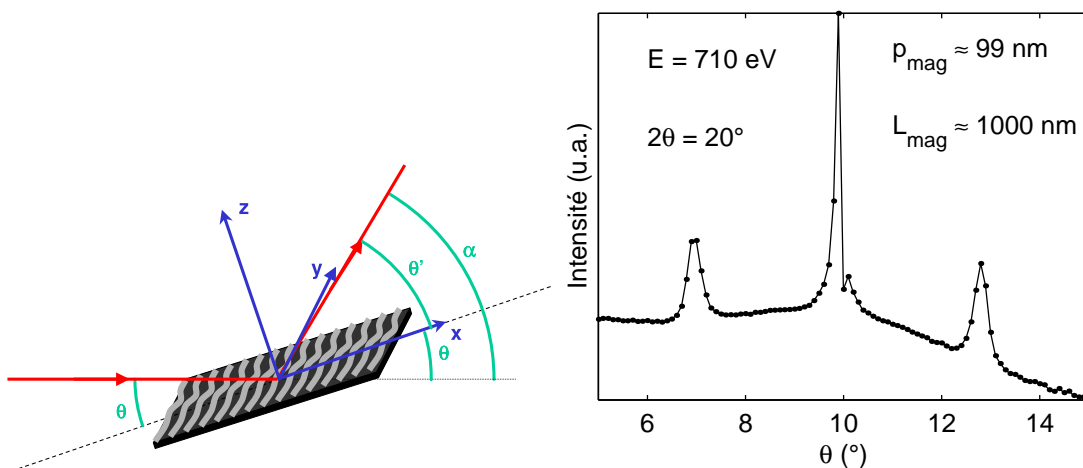


FIG. 6.2 – Rocking curve en géométrie transverse (schéma à gauche) mesurée à la photodiode. La position des pics magnétiques correspond à une période de 99 nm, leur largeur à une longueur de corrélation de $1 \mu\text{m}$ environ.

Une "rocking curve" en géométrie transverse au seuil L_3 du Fer confirme l'ordre de grandeur de la période magnétique (~ 99 nm) et la bonne périodicité des domaines (la longueur de corrélation de la périodicité magnétique est de l'ordre du micron, Fig. 6.2).

6.1.2 Quelques résultats connus

Diffraction en géométrie longitudinale

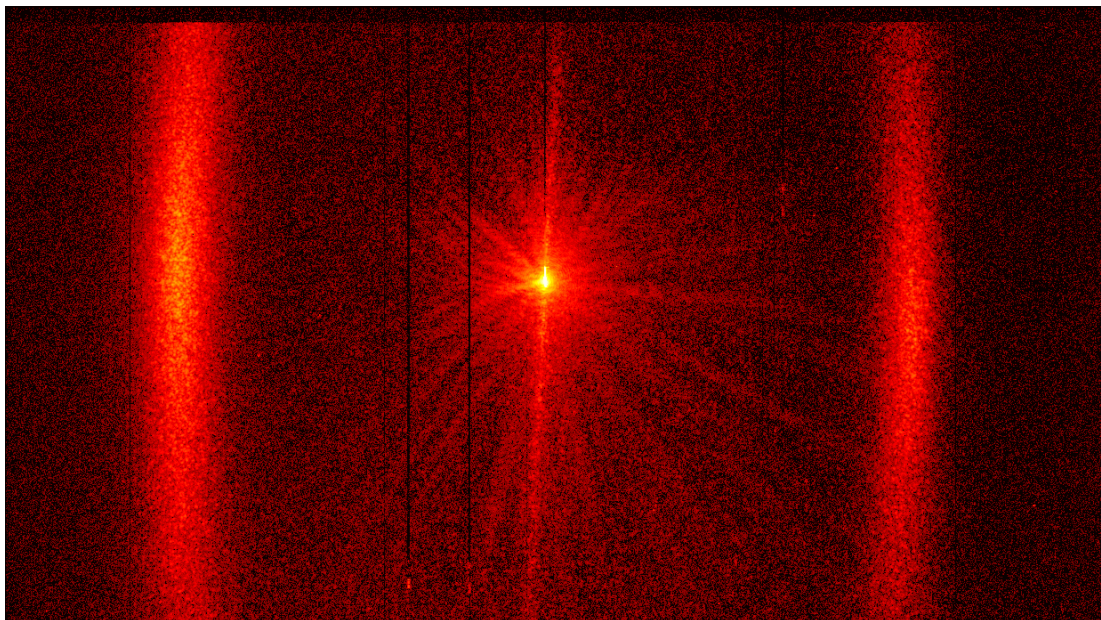


FIG. 6.3 – Spectre SXRMS de l'échantillon obtenu en géométrie longitudinale et en polarisation circulaire à 708 eV (Echelle d'intensité logarithmique).

En géométrie longitudinale, cet échantillon diffracte deux satellites magnétiques en forme de bananes de part et d'autre du faisceau réfléchi spéculairement (Fig. 6.3). Leur finesse témoigne de la bonne périodicité magnétique. La largeur des domaines étant très bien définie, le désordre prépondérant est donc le défaut d'orientation, qui explique l'extension longitudinale des satellites. Ceux-ci s'inscrivent sur une ellipse dont le rapport d'aspect est $1/\sin\theta \approx 3.9$.

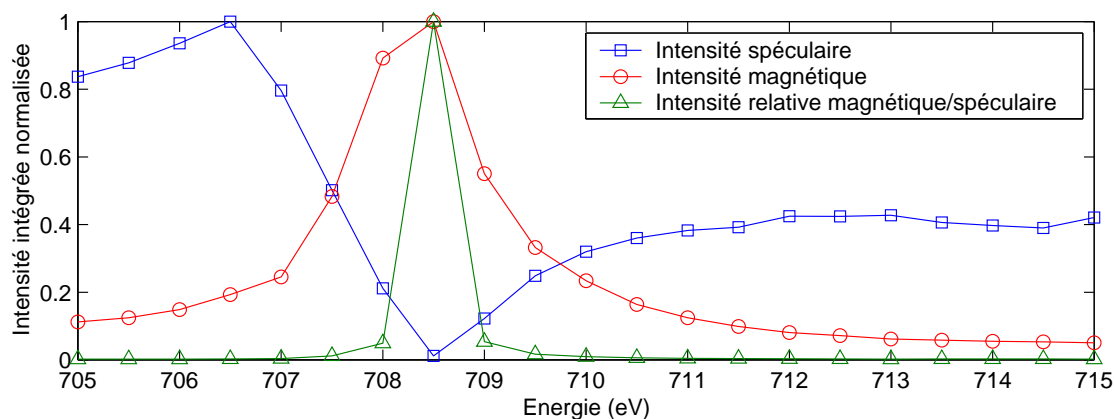


FIG. 6.4 – Dépendance en énergie de l'intensité spéculaire et de l'intensité "magnétique" (intégrée sur les deux satellites), en polarisation circulaire.

En intégrant l'intensité des satellites magnétiques d'une part et du spéculaire d'autre part,

on peut mesurer leur dépendance en énergie autour du seuil L_3 du Fer (Fig. 6.4), ce qui permet d'optimiser le rapport d'intensité en faveur de l'intensité diffractée hors spéculaire par les domaines magnétiques. C'est important car l'intensité "magnétique" est plus faible que l'intensité spéculaire d'au moins 2 ou 3 ordres de grandeurs. Or il faut une intensité suffisante pour observer des speckles, dont l'intensité individuelle est très faible.

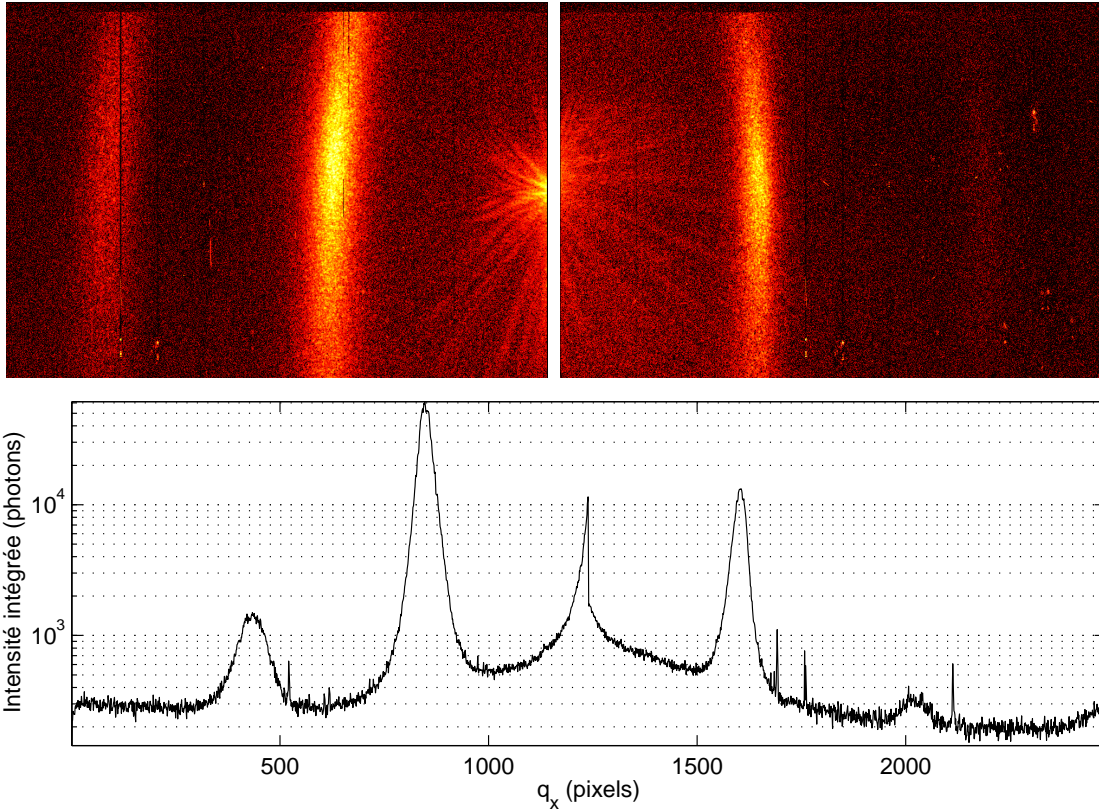


FIG. 6.5 – Pics magnétiques d'ordre 1 et 2 de part et d'autre du spéculaire (Echelle d'intensité logarithmique). L'ordre 2 côté droit n'apparaît qu'en sommant les pixels sur les colonnes. L'effet dichroïque s'observe sur les pics d'ordre 1 et d'ordre 2. Le bruit est dû principalement aux colonnes endommagées de la caméra.

La géométrie longitudinale permet d'observer plus facilement les satellites magnétiques d'ordre 2 (Fig. 6.5), essentiellement dus à la composante longitudinale de l'aimantation, qui est mesurée par les canaux $\sigma \rightarrow \pi$ et $\pi \rightarrow \sigma$ avec un coefficient géométrique $\sim \cos \theta \approx 0.97$, alors qu'en géométrie transverse, on la mesure par le seul canal $\pi \rightarrow \pi$ avec le coefficient géométrique $\sim \sin 2\theta = 0.5$ (cf. §3.2.2). En terme d'intensité, on a donc un facteur $2 \cos^2 \theta / \sin^2 2\theta \approx 8$ en faveur de la géométrie longitudinale. L'effet dichroïque, qui n'est possible qu'en géométrie longitudinale, permet en plus de renforcer l'un des 2 satellites.

Pour mesurer les pics d'ordre 2 avec la caméra CCD, qui est fixe, on doit incliner le berceau de l'échantillon (angle ζ). Le faisceau n'étant probablement pas exactement au centre de rotation, la zone éclairée varie, d'autant plus que le faisceau filtré par le diaphragme est très fin. Toutefois, avec un diaphragme de diamètre $20 \mu\text{m}$, le faisceau éclaire plus de 200 périodes magnétiques, de sorte que l'on peut estimer que les effets des défauts magnétiques sont correctement moyennés

en intégrant l'intensité des satellites. Nous avons par ailleurs pu vérifier que la forme générale des satellites d'ordre 1 changeait peu lorsque l'on translate l'échantillon (Fig. 6.6).

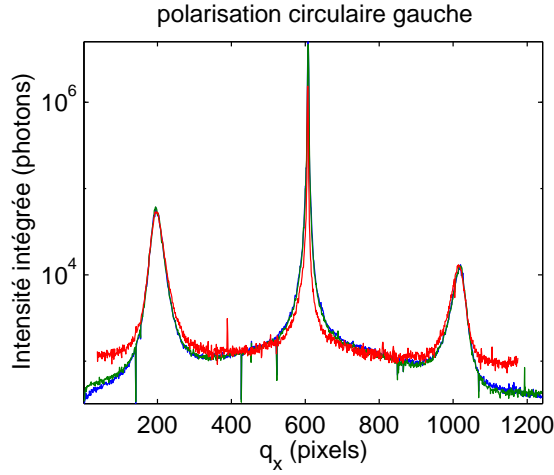


FIG. 6.6 – Intensité intégrée sur les colonnes, mesurée en polarisation circulaire gauche pour 3 zones différentes de l'échantillon. Les trois courbes se superposent bien, ce qui prouve que la zone éclairée par le faisceau est suffisamment grande pour que les propriétés moyennes soient représentatives de l'échantillon entier. Le fond de la courbe rouge est plus élevé car le temps d'acquisition était moins long.

Dichroïsme circulaire et asymétrie

En polarisation incidente circulaire, on observe un effet dichroïque très important (Fig. 6.7), que l'on mesure par le rapport dichroïque δ_c (Eq. 3.18). Cet effet s'exprime sur le pic spéculaire et très fortement sur les satellites magnétiques d'ordre 1. Nous ne l'avons pas mesuré sur les satellites d'ordre 2, mais leur très forte asymétrie est certainement due en partie à un effet dichroïque.

Le dichroïsme sur le pic spéculaire, calculé à partir des intensités intégrées sur la région du spéculaire, est de 4.9%. Si l'on suppose que seule la composante m_y (parallèle à la direction principale des rubans) a un moment net non-nul, d'après l'Equation 3.23, le dichroïsme spéculaire s'écrit :

$$\delta_c = \frac{\Delta I^c}{I^0} = \frac{2 \cos^3 \theta \Re \{ F_0 F_1^* \tilde{\rho} M_y^* \}}{|F_0|^2 |\tilde{\rho}|^2 \frac{1 + \cos^2 2\theta}{2} + |F_1|^2 |M_y|^2 \cos^2 \theta}$$

Le dichroïsme sur les satellites magnétiques est beaucoup plus fort : 74% sur le satellite gauche et 54% sur le satellite droit. Si l'on suppose que la densité électronique ρ est uniforme à cette échelle et que m_y a tous ses coefficients de Fourier impairs nuls, d'après les Equations 3.23 et 3.22, le dichroïsme des satellites vaut :

$$\delta_c = \frac{\Delta I^c}{I^0} = \frac{2 \cos \theta \Im \{ M_x M_z^* \}}{2 \cos^2 \theta |M_x|^2 + |M_z|^2}$$

On constate que le dichroïsme (en intensité absolue) n'est pas identique sur les deux satellites magnétiques, ce qui signifie que les transformées de Fourier M_x et M_z des composantes m_x et m_z

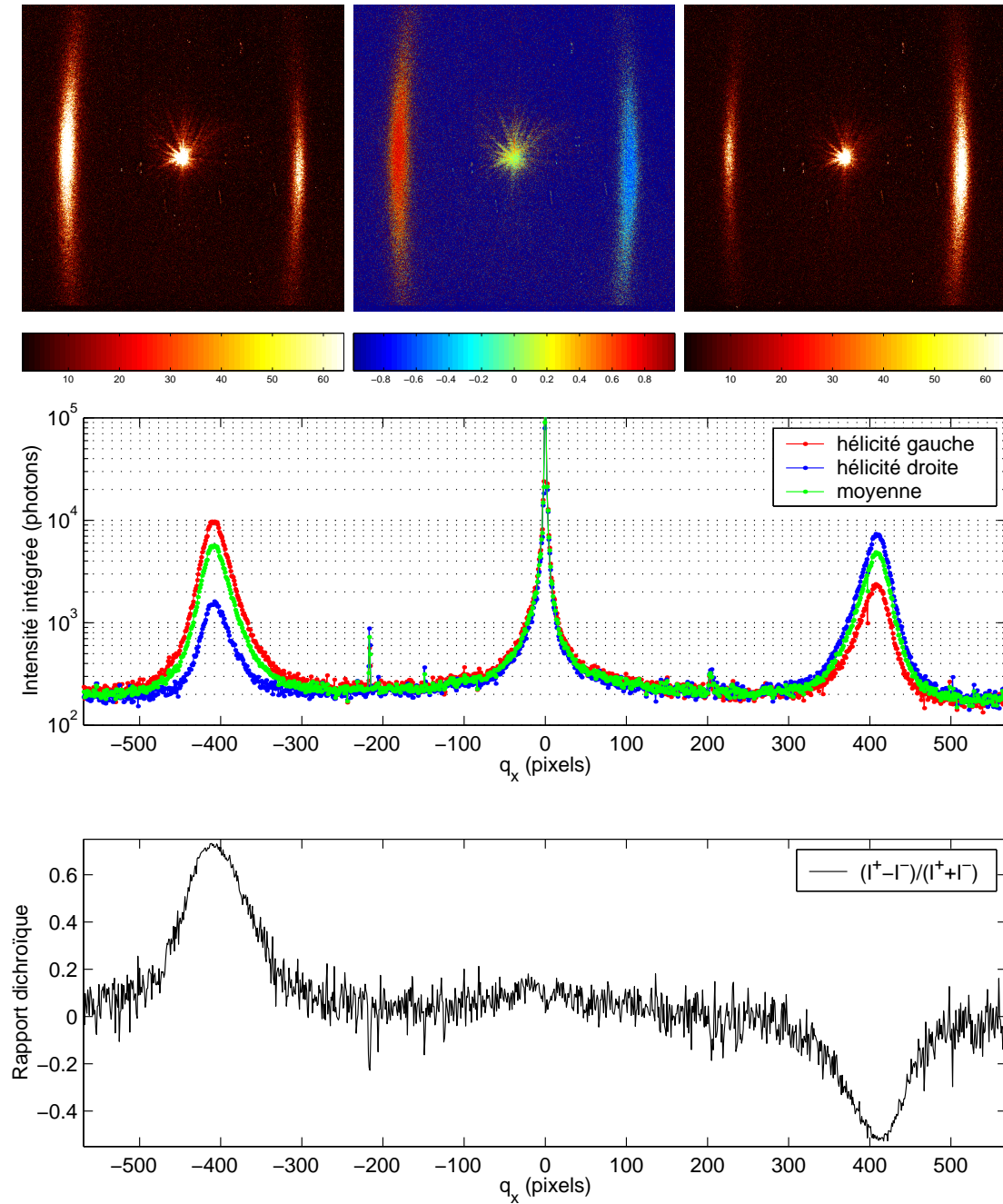


FIG. 6.7 – Effet dichroïque en polarisation circulaire. En haut, images 2D prises en polarisation circulaire gauche et droite, et l'image du rapport dichroïque au milieu. Au milieu, les intensités de ces images sont intégrées colonne par colonne. En bas, rapport dichroïque calculé à partir des intensités intégrées sur les colonnes.

des moments magnétiques ne vérifient pas $M_x(q_x, q_y, q_z) = M_x(-q_x, -q_y, q_z)$ et $M_z(q_x, q_y, q_z) = M_z(-q_x, -q_y, q_z)$. Cette rupture de symétrie montre que la transformée de Fourier que l'on mesure n'est pas la transformée de Fourier d'une fonction réelle. En effet, deux effets interviennent et modifient la transformée de Fourier de \hat{m} :

1. Le premier effet est l'absorption, qui brise la symétrie en q_z . Comme nous l'avons vu dans le chapitre §3.3.3, tout se passe comme si on mesurait une transformée de Fourier de \hat{m} étendue pour les valeurs de q_z dans le plan complexe.
2. Le second effet est celui du diaphragme, qui éclaire une petite zone de l'échantillon avec une onde non-plane très cohérente. \vec{M} n'est donc pas directement la transformée de Fourier de \vec{m} , mais de son produit avec l'amplitude complexe $A(\vec{r})$ de l'onde :

$$\vec{M}(\vec{q}) = \int A(\vec{r}) \vec{m}(\vec{r}) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} d\vec{r}$$

Le calcul de l'amplitude de l'onde est détaillé dans la section B.1. Cet effet brise la symétrie en q_x et q_y .

Cet effet d'onde non-plane se voit également sur la somme des intensités obtenues avec les 2 polarisations circulaires, car les satellites devraient être symétriques. Il intervient aussi sur les satellites d'ordre 2, mais on ne peut pas le séparer de l'effet dichroïque sans mesurer les deux polarisations circulaires, ce qui n'a pas été fait.

6.1.3 Apport de la cohérence

Grâce à la forte cohérence du faisceau, les speckles constituant les satellites apparaissent clairement, avec un fort contraste (Fig. 6.8). L'intensité varie très rapidement dans l'espace réciproque de quelques dizaines de photons à plus de 1000.

Ces variations représentent l'exacte transformée de Fourier de la configuration magnétique, et contiennent toute l'information sur le désordre magnétique. Chaque figure de speckles est le reflet d'un état magnétique particulier, ce qui permet d'étudier l'évolution magnétique du système en suivant l'évolution des speckles, en fonction de paramètres extérieurs (temps, température, champ magnétique). L'autre possibilité offerte par la diffraction cohérente est de permettre de reconstruire une image exacte du système, grâce à des algorithmes de reconstruction qui compensent la perte de la phase de la transformée de Fourier par le suréchantillonnage.

Pour ces deux types d'applications, il est nécessaire d'avoir le faisceau le plus cohérent possible. Nous allons donc essayer de quantifier la cohérence du faisceau.

Quelques définitions

Historiquement, l'utilisation de la diffraction cohérente de la lumière a été développée pour les phénomènes fluctuants, pour lesquels on étudie la corrélation des figures de speckles en fonction du temps, définie par :

$$Corr(\tau) = \frac{\overline{I(t)I(t+\tau)}}{\overline{I(t)}^2}$$

L'opérateur "barre" désigne ici la moyenne sur la variable temporelle t . La cohérence se caractérise alors par la limite de cette corrélation normalisée quand τ tend vers 0. Si cette limite est $1 + \beta$, on dit que β est "l'intercept" de la corrélation et quantifie la cohérence.

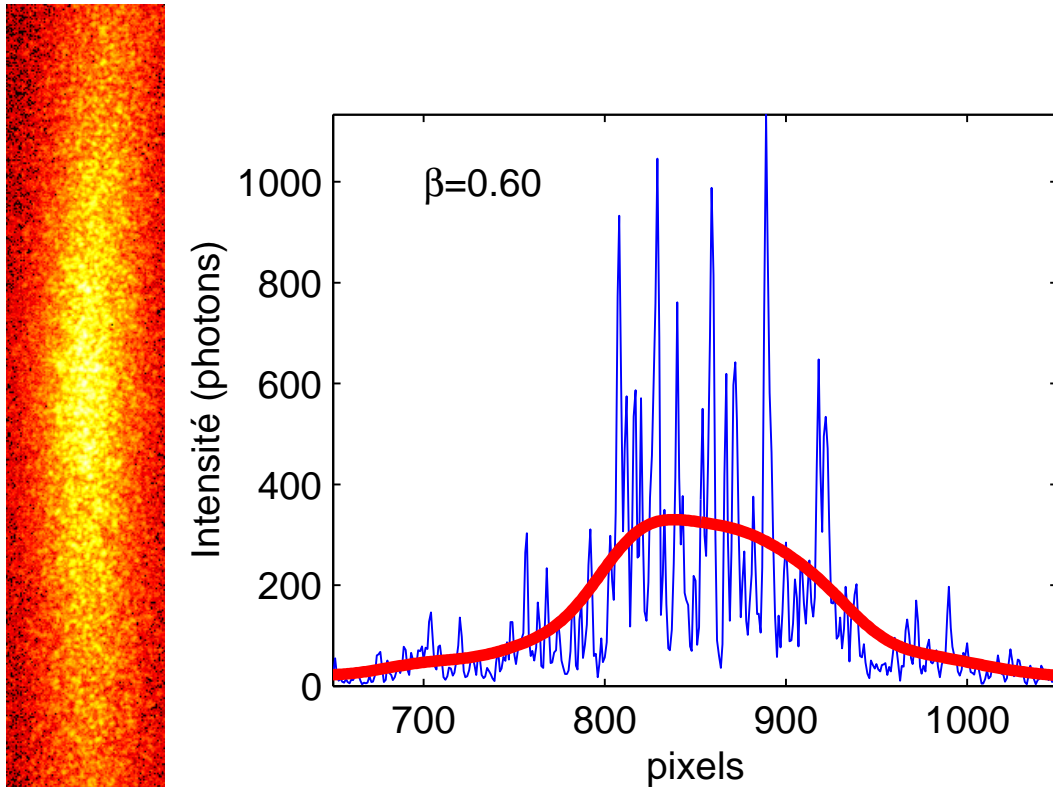


FIG. 6.8 – Détail du satellite magnétique gauche de la Figure 6.3. A droite, coupe longitudinale du satellite et son lissage.

Comme notre système ne présente pas de fluctuations temporelles à l'échelle de la mesure, nous allons transposer la méthode en remplaçant les fluctuations temporelles du système par les variations de configuration magnétique.

Par la suite, l'opérateur "barre" (exemple : \bar{X}) désignera la moyenne sur les états magnétiques m du système. La moyenne inclut une pondération en fonction de la probabilité $p(m)$ de ces états. Donc, pour une grandeur X du système, on a :

$$\bar{X} = \sum_m p(m)X(m)$$

Dans le cas de notre couche mince de FePd, les états les plus probables (sous champ nul) sont ceux qui respectent la période magnétique moyenne et la densité de défauts d'alignement moyens.

En pratique, on ne peut pas mesurer cette moyenne idéale car on ne dispose que d'un nombre N fini de mesures X_k , à partir desquels on en fait une estimation, que l'on notera \tilde{X} :

$$\tilde{X} = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N X_k$$

Bien sûr, \tilde{X} s'approche d'autant plus de \bar{X} que N est grand.

L'opérateur $\langle \rangle$ reste associé à la moyenne sur les pixels d'une région d'intérêt du détecteur.

Pour un état magnétique m donné, on note $I(\vec{q}, m)$ l'intensité mesurée sur un pixel du détecteur correspondant à un vecteur \vec{q} de l'espace réciproque.

On définit également :

$$B(\vec{q}) = \overline{I(\vec{q}, m)} \quad (6.1)$$

En faisceau incohérent, l'intensité que l'on mesure est moyennée sur un grand nombre de configurations magnétiques, et dans ce cas la mesure elle-même est assimilable à $\overline{I(\vec{q}, m)}$. C'est bien ce que l'on observe quand on utilise tout le faisceau : la moyenne se fait naturellement grâce au faisceau qui est incohérent sur l'ensemble de la zone éclairée. $B(\vec{q})$ est donc l'intensité incohérente de référence que nous allons utiliser par la suite.

L'intensité incohérente $B(\vec{q})$ ne porte pas d'information sur la configuration magnétique particulière mesurée par $I(\vec{q}, m)$. Cette information est contenue dans la fonction de speckles $S(\vec{q}, m)$ que l'on définit par :

$$I(\vec{q}, m) = B(\vec{q})S(\vec{q}, m) \quad (6.2)$$

Une conséquence directe de cette définition est :

$$\overline{S(\vec{q}, m)} = 1 \quad (6.3)$$

Par analogie avec les systèmes dynamiques, nous allons quantifier la cohérence du faisceau à partir de l'écart quadratique moyen (moyenné sur les configurations magnétiques) entre l'intensité cohérente et l'intensité incohérente, exprimées en nombre de photons mesurés :

$$\overline{(I(\vec{q}, m) - B(\vec{q}))^2} = \beta B(\vec{q})^2 + B(\vec{q}) \quad (6.4)$$

$$\overline{I^2(\vec{q}, m)} = (1 + \beta) B^2(\vec{q}, m) + B(\vec{q}, m) \quad (6.5)$$

$$\overline{S^2(\vec{q}, m)} = (1 + \beta) + \frac{1}{B(\vec{q})} \quad (6.6)$$

Ces 3 expressions sont strictement équivalentes.

Le paramètre β , appelé facteur de cohérence, est un paramètre intrinsèque au faisceau et à la mesure, et, dans notre cas, ne dépend pas du pixel considéré. Il représente bien la cohérence du faisceau, car plus le faisceau est cohérent, plus les variations d'intensité par rapport à la moyenne sont importantes. (Le terme supplémentaire $B(\vec{q}, m)$ rend compte du bruit de Poisson sur l'ensemble de mesures.)

Nous allons voir différentes manières d'évaluer le facteur de cohérence β à partir de figures de speckles.

Moyenne sur les configurations magnétiques

En remplaçant $B(\vec{q})$ par sa définition (Eq. 6.1) dans l'équation 6.4, on obtient :

$$\overline{(I(\vec{q}, m) - \overline{I(\vec{q}, m)})^2} = \beta \overline{I(\vec{q}, m)^2} + \overline{I(\vec{q}, m)} \quad (6.7)$$

On voit que le degré de cohérence β est défini à partir de la moyenne et de la variance statistiques de l'intensité, calculées sur les états magnétiques du système. Son évaluation dépend donc de l'échantillon statistique des états magnétiques que l'on a mesurés.

Si l'on dispose de N figures de speckles $I_k(\vec{q})$ correspondant à un échantillon d'états magnétiques, les meilleurs estimateurs non-biaisés de la moyenne et de la variance sont :

$$\begin{aligned}\overline{I(\vec{q}, m)} &\approx \widetilde{I(\vec{q}, m)} = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N I_k(\vec{q}) \\ \overline{I(\vec{q}, m)^2} &\approx \frac{1}{1 + \frac{\beta}{N}} \widetilde{I(\vec{q}, m)^2} \\ \overline{\left(I(\vec{q}, m) - \overline{I(\vec{q}, m)} \right)^2} &\approx \frac{1}{N-1} \sum_{k=1}^N \left(I_k(\vec{q}) - \widetilde{I(\vec{q}, m)} \right)^2\end{aligned}$$

Le degré de cohérence β est donc évalué de manière non biaisée par :

$$\left(I(\vec{q}, m) - \widetilde{I(\vec{q}, m)} \right)^2 = \frac{\beta}{1 + \frac{\beta}{N}} \widetilde{I(\vec{q}, m)^2} + \widetilde{I(\vec{q}, m)} \quad (6.8)$$

Par rapport à l'équation 6.7, l'effet de la statistique sur un échantillon fini de mesures est l'apparition d'un facteur correctif $\beta/(1 + \beta/N)$ qui est important quand on dispose de peu de mesures.

En pratique, N est petit et il est rare de disposer de suffisamment de mesures pour faire une bonne estimation pixel par pixel. Cependant, on peut évaluer β si le nombre de pixels de la région d'intérêt est assez grand. En effet β est supposé indépendant des pixels du détecteur. En moyennant sur les pixels, on minimise l'erreur faite sur les autres quantités de l'équation 6.8 :

$$\left\langle \left(I(\vec{q}, m) - \widetilde{I(\vec{q}, m)} \right)^2 \right\rangle = \frac{\beta}{1 + \frac{\beta}{N}} \left\langle \widetilde{I(\vec{q}, m)^2} \right\rangle + \left\langle \widetilde{I(\vec{q}, m)} \right\rangle \quad (6.9)$$

On peut montrer que l'erreur statistique que l'on fait en évaluant β par cette méthode est dépendante du nombre de speckles indépendants N_S de la mesure. Si le bruit de Poisson est négligeable, elle s'évalue comme :

$$\Delta\beta \sim \frac{1}{\sqrt{N_S}}$$

Expérimentalement, on a essentiellement deux possibilités pour sonder l'espace des états magnétiques :

1. En appliquant un "pulse" de champ magnétique de direction et d'intensité adaptée au système, on peut le mettre brièvement hors-équilibre. Il est probable que la nouvelle configuration d'équilibre soit différente de la configuration initiale, tout en gardant les mêmes propriétés moyennes, ce qui a pour effet de changer radicalement la figure de speckles. Dans le cas de la couche mince de FePd que nous présentons ici, un champ perpendiculaire de 0.8 Teslas sature l'aimantation, et le retour à l'équilibre mène à une configuration où les défauts de périodicité et d'orientation des rubans magnétiques sont probablement différents. Nous n'avons cependant pas appliqué cette méthode, faute de champ magnétique assez fort.
2. Si l'échantillon est suffisamment homogène latéralement, ses propriétés magnétiques moyennes ne varient pas d'une zone à une autre : la période des domaines, leur orientation, la qualité de leur alignement et la densité de défauts dans l'alignement (fourches, coins...) restent

identiques, mais l'agencement des défauts change. Le translater par rapport au faisceau revient à mesurer le même système dans un état magnétique différent. On peut ainsi moyenner sur les positions pour évaluer la moyenne sur les états magnétiques.

Sur cet échantillon, nous ne disposons que de deux figures de speckles prises dans les mêmes conditions expérimentales avec des états magnétiques différents. Nous avons choisi une région d'intérêt de $64 \times 256 = 16384$ pixels, centrée sur l'un des deux satellites magnétiques d'ordre 1 (Figure 6.9). Ces 2 figures de speckles sont très différentes, bien qu'ayant la même intensité totale à 0.1% près (soit environ 1.25 millions de photons pour chaque figure). Elles ne sont pas corrélées (nous le montrerons plus loin), ce qui est très important dans le cas où l'on n'a que très peu de figures pour faire la statistique. L'équation 6.9 mène à l'estimation $\beta \sim 0.55$.

On peut évaluer l'incertitude sur β en estimant que la taille des speckles est inférieure à 10 pixels, et qu'il y en aurait donc environ 1600 sur la région d'intérêt, soit une erreur $\Delta\beta \sim 2.5\%$.

Estimation de l'intensité incohérente

La méthode précédente nécessite de disposer d'au moins deux mesures avec des états magnétiques différents, ce qui n'est pas toujours le cas. Nous allons montrer une autre méthode de détermination de β à partir d'une seule figure de speckles.

Les moyennes sur les configurations magnétiques sont difficiles à évaluer, mais on profite de l'indépendance de β par rapport au pixel pour faire des moyennes sur une région du détecteur. Ainsi, à partir de l'équation 6.4, on obtient :

$$\langle \overline{I^2(\vec{q}, m)} \rangle = (1 + \beta) \langle B^2(\vec{q}) \rangle + \langle B(\vec{q}) \rangle \quad (6.10)$$

Nous allons évaluer $\langle \overline{I^2(\vec{q}, m)} \rangle$, $\langle B(\vec{q}) \rangle$ et $\langle B^2(\vec{q}) \rangle$. Pour cela, il faut faire 2 hypothèses :

1. $S(\vec{q}, m)$ varie très rapidement à la fois avec \vec{q} et avec la configuration magnétique. Nous avons effectivement observé que la structure des speckles était très sensible à la configuration magnétique, car une translation micrométrique de l'échantillon par rapport au faisceau la bouleverse complètement. Si la moyenne sur \vec{q} s'étend sur une zone de l'espace réciproque assez large, c'est-à-dire beaucoup plus grande que la taille caractéristique des speckles, il est équivalent de moyennner $S(\vec{q}, m)$ et $S^2(\vec{q}, m)$ sur \vec{q} et sur les configurations magnétiques :

$$\langle S(\vec{q}, m) \rangle = \overline{S(\vec{q}, m)} = 1$$

$$\langle S^2(\vec{q}, m) \rangle = \overline{S^2(\vec{q}, m)}$$

2. Les échelles de variation en \vec{q} de $B(\vec{q})$ et de $S(\vec{q}, m)$ sont très différentes, de sorte que $B(\vec{q})$ et $S(\vec{q}, m)$ d'une part, $B^2(\vec{q})$ et $S^2(\vec{q}, m)$ d'autre part, sont décorrélés et que l'on a :

$$\langle B(\vec{q})S(\vec{q}, m) \rangle = \langle B(\vec{q}) \rangle \langle S(\vec{q}, m) \rangle$$

$$\langle B^2(\vec{q})S^2(\vec{q}, m) \rangle = \langle B^2(\vec{q}) \rangle \langle S^2(\vec{q}, m) \rangle$$

Cette hypothèse est vérifiée dans l'exemple de la Figure 6.9

On a alors :

$$\begin{aligned} \langle B(\vec{q}) \rangle &= \langle I(\vec{q}, m) \rangle \\ \langle \overline{I^2(\vec{q}, m)} \rangle &= \langle B^2(\vec{q}) \overline{S^2(\vec{q}, m)} \rangle = \langle B^2(\vec{q}) S^2(\vec{q}, m) \rangle = \langle I^2(\vec{q}, m) \rangle \end{aligned}$$

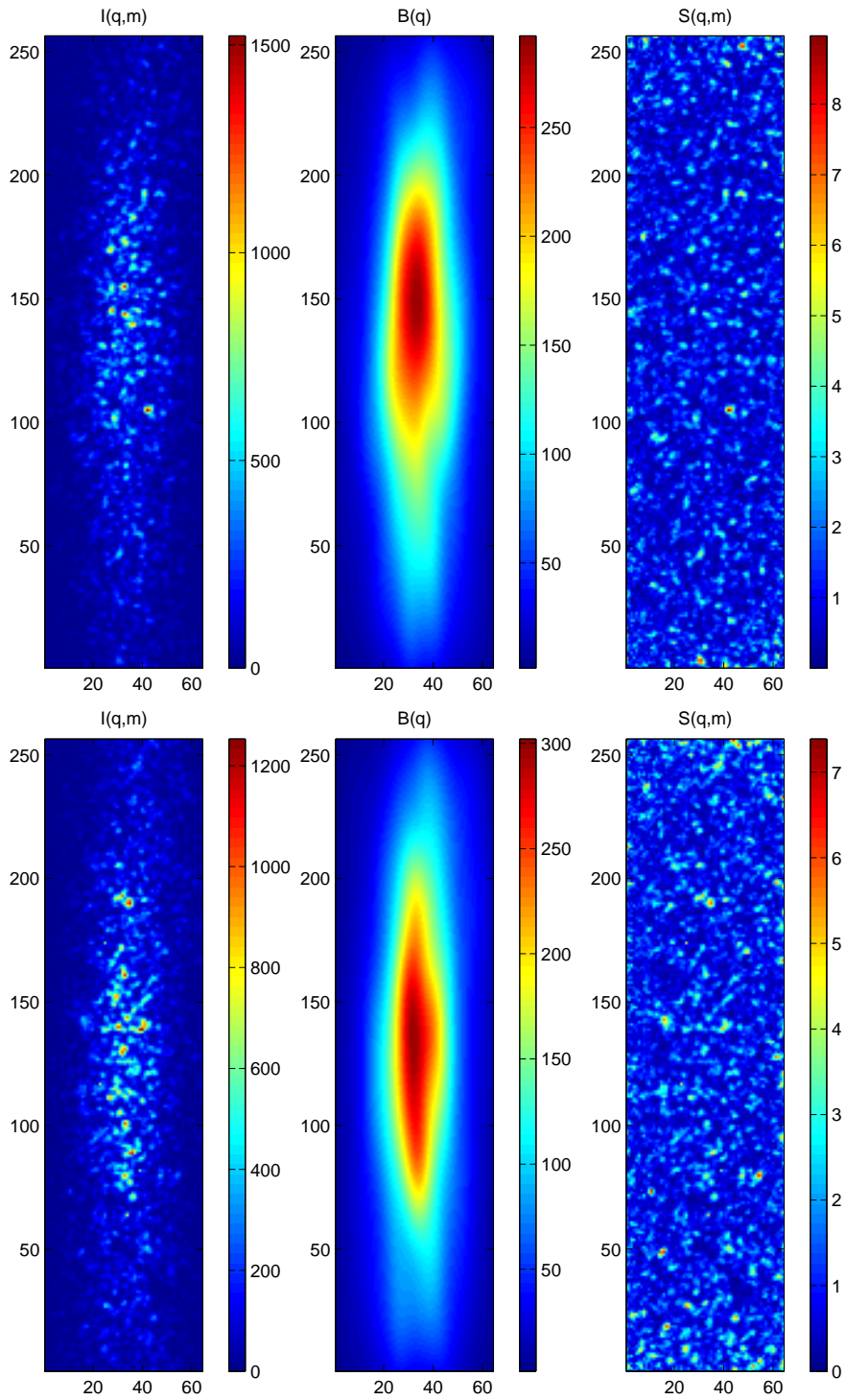


FIG. 6.9 – A gauche, deux figures de speckles $I(\vec{q},m)$; au centre, leurs fonctions enveloppes $B(\vec{q})$ obtenu par un lissage gaussien avec $\sigma_x = 3$ pixels et $\sigma_y = 5.7 \sigma_x$; à droite, les fonctions de speckles $S(\vec{q},m)$. On peut vérifier sur cet exemple que les intensités lissées correspondent assez bien à la même diffraction incohérente $B(\vec{q})$, alors que les structures de speckles, issus de configurations magnétiques différentes, ne se ressemblent pas.

Avec ces 2 hypothèses, une estimation satisfaisante du facteur de cohérence est finalement :

$$\beta = \frac{\langle I^2(\vec{q}, m) - I(\vec{q}, m) \rangle}{\langle B^2(\vec{q}) \rangle} - 1 \quad (6.11)$$

D'après l'équation 6.11, l'évaluation de β est le rapport de deux moyennes sur une certaine région de l'espace réciproque. Celle du numérateur se calcule directement à partir d'une seule figure de speckles $I(\vec{q}, m)$. Celle du dénominateur n'est en revanche *a priori* pas connu, et il faut donc l'évaluer à son tour.

Lissage de l'intensité cohérente

La méthode la plus évidente pour évaluer $\langle B^2(\vec{q}) \rangle$ est d'évaluer la fonction $B(\vec{q})$ sur tous les pixels de la région d'intérêt.

Dans le cas, comme le nôtre, où l'on ne dispose pas d'assez d'images différentes pour faire une moyenne raisonnable, on peut évaluer la fonction $B(\vec{q})$ en lissant la figure de speckles. Cela donne une estimation correcte, dans la mesure où les échelles de variation de $B(\vec{q})$ et de $S(\vec{q}, m)$ sont très différentes. Ainsi, un lissage approprié permet de moyenner $S(\vec{q}, m)$ sans moyenner $B(\vec{q})$.

Nous avons utilisé des méthodes classiques de lissage, par exemple par convolution avec une gaussienne, ou par un algorithme itératif qui moyenne les pixels de proche en proche, ce qui est à peu près équivalent. Il est important que le lissage respecte l'anisotropie générale du satellite magnétique (Fig. 6.10).

La Figure 6.11 montre que l'évaluation de β , calculée selon l'équation 6.7, dépend des écarts-types σ_x et σ_y de la gaussienne par laquelle on convolve $I(\vec{q}, m)$. La transition de valeurs très faibles (~ 0.2) à des valeurs très hautes (~ 1) est régulière. On remarque toutefois un palier entre $\beta = 0.5$ et $\beta = 0.6$ (Fig. 6.11, $\sigma_y = 5 \sigma_x$). Ainsi, l'estimation de β est biaisée par la qualité du lissage de $I(\vec{q}, m)$: si le lissage n'est pas suffisant, on sous-estime la cohérence, alors que s'il est trop fort, on la sur-estime.

On peut toutefois estimer la qualité du lissage par exemple grâce à deux figures de speckles mesurées sur des zones différentes de l'échantillon, car elles correspondent à la même intensité incohérente. Les deux lissages doivent donc donner des résultats semblables (Fig. 6.9).

Avec cette méthode, nous avons évalué le facteur de cohérence β à environ 0.60 pour cette expérience. Cette valeur est en accord avec celle trouvée par la méthode précédente.

On peut évaluer la cohérence d'une manière légèrement différente si l'on dispose d'une zone où l'on sait que l'intensité incohérente varie peu. Dans ce cas, on peut remplacer l'intensité lissée par la moyenne de l'intensité sur la zone choisie. On évite ainsi le biais dû au lissage, mais on introduit celui du choix de la zone, qui est aussi subjectif. De plus, dans le cas des satellites magnétiques, les régions où l'intensité incohérente est à la fois homogène et forte (pour réduire le bruit de Poisson) sont généralement peu étendues. Le nombre de speckles indépendant qu'elles comportent est plus faible et peuvent induire une erreur statistique importante.

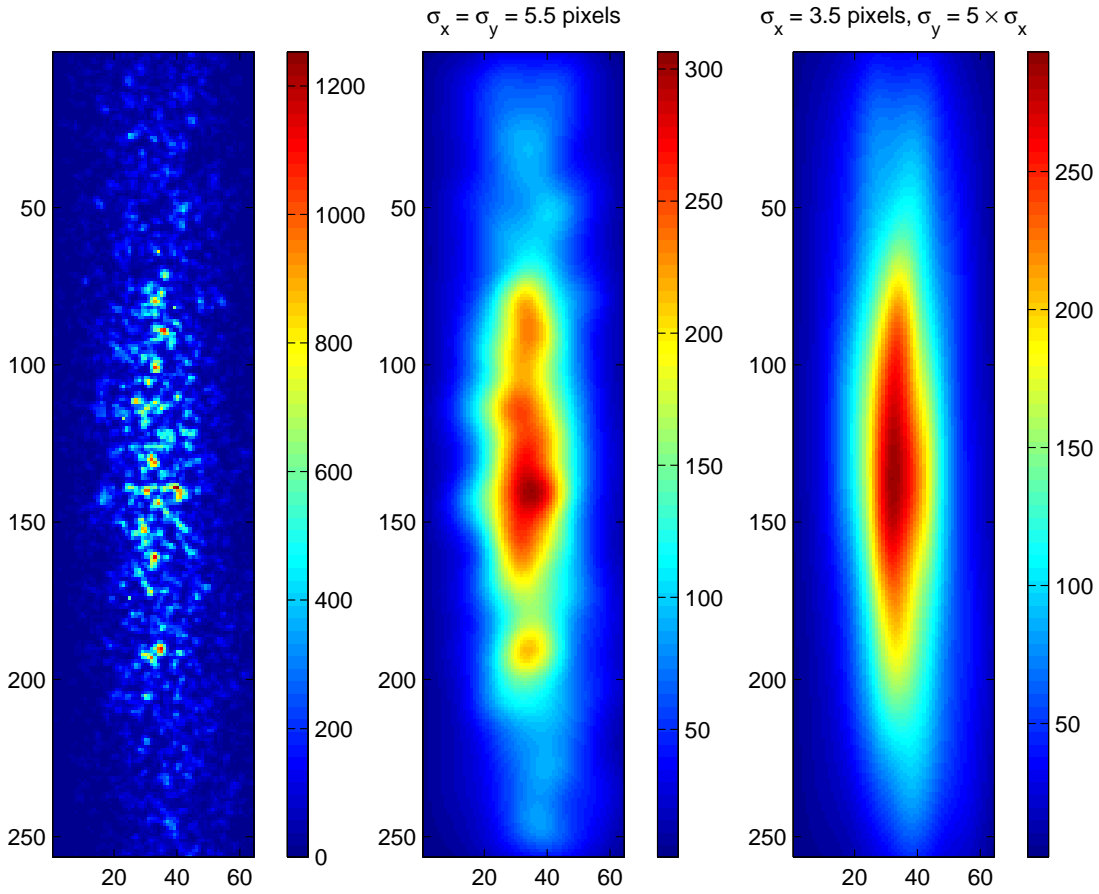


FIG. 6.10 – La figure de speckles de référence et deux lissages gaussiens menant au même facteur de cohérence : un lissage isotrope et un respectant le rapport d'aspect du satellite.

Autocorrélation

Nous allons caractériser une figure de speckles $I(\vec{q}, m)$ par sa fonction d'autocorrélation :

$$A(\delta\vec{q}) = \sum_{\vec{q}} I(\vec{q})I(\vec{q} + \delta\vec{q}) \quad (6.12)$$

La fonction d'autocorrélation (Fig. 6.12) de la figure de speckles 6.8 est caractéristique de la diffraction cohérente [96]. Elle se compose d'une base large surmontée d'un pic central très fin.

La base large correspond à la diffusion incohérente et possède l'asymétrie de forme du satellite magnétique. Dans le cas présent, elle a la forme d'une gaussienne à base ellipsoïde, dont on peut calculer le rapport d'aspect à partir des largeurs à mi-hauteur (5.7 dans le cas présent).

Le pic central est dû aux speckles. Il donne une idée de leur forme et de leur taille moyennes. Le faible nombre de points qui le constituent ne permet pas de remonter précisément à la forme des speckles, mais il est clairement isotrope. Nous allons assimiler sa largeur à mi-hauteur (~ 3 pixels) à celle des speckles, comme pour une distribution gaussienne. La surface moyenne des speckles est donc de l'ordre de $\pi(3/2.35)^2 = 5$ pixels.

On peut montrer que la taille et la forme moyennes des speckles sont déterminées par le diaphragme. Le pic central isotrope de la fonction d'autocorrélation correspond bien à la forme

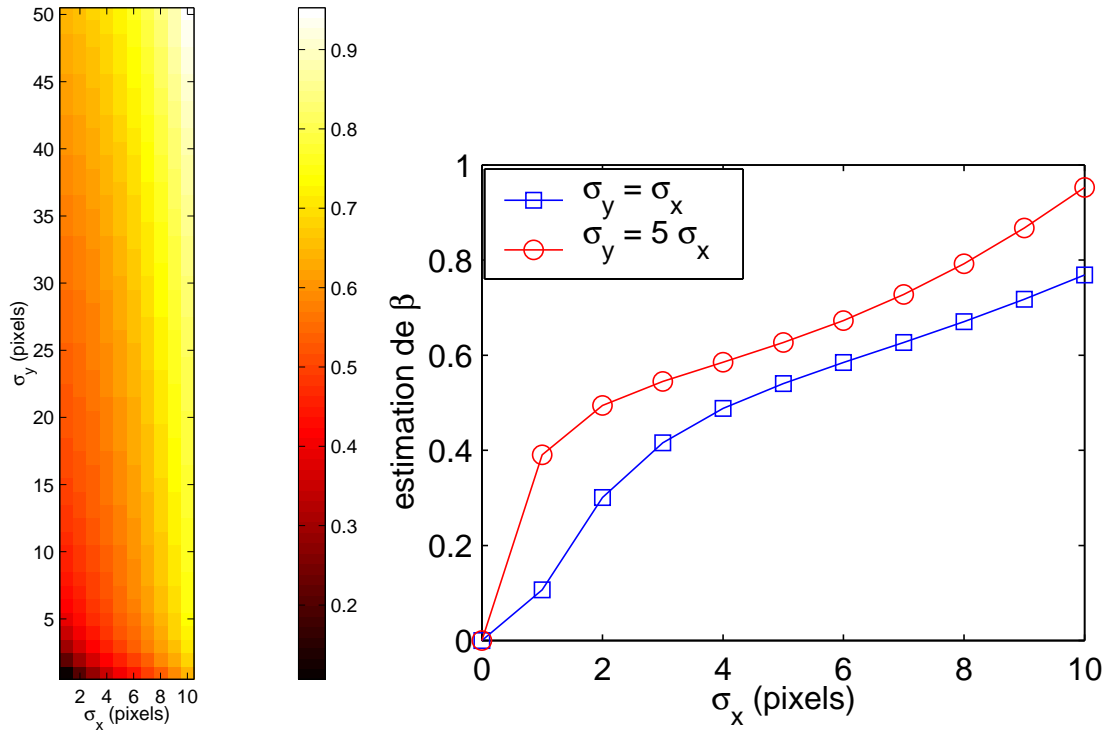


FIG. 6.11 – A gauche, variation du facteur de cohérence β estimé par le biais d'un lissage gaussien, en fonction des écart-types de la gaussienne de lissage. La coupe à droite montre les valeurs de 2 situations particulières : un lissage isotrope ($\sigma_x = \sigma_y$) et un lissage qui respecte le rapport d'aspect du satellite magnétique ($\sigma_y = 5 \times \sigma_x$).

circulaire du diaphragme. La fonction d'autocorrélation de l'intensité diffractée par une ouverture circulaire de rayon a s'écrit en première approximation :

$$A(\delta\vec{q}) \approx 1 - \frac{\delta q^2 a^2}{16}$$

On peut donc retrouver le rayon du diaphragme à partir de la largeur à mi-hauteur du pic d'autocorrélation. Ici, à partir de notre estimation grossière de la largeur à mi-hauteur du pic, on trouve $a \approx 12 \mu\text{m}$, contre une valeur nominale de $10 \mu\text{m}$. On verra par la suite d'autres exemples obtenus avec un diaphragme de diamètre $10 \mu\text{m}$ au lieu de 20 , ce qui génère des speckles bien plus grands.

Sur cette image de 64×256 pixels, nous avons donc environ 3200 speckles, et l'incertitude sur β et de l'ordre de 2%.

Nous allons montrer que l'on peut évaluer $\langle B^2(\vec{q}) \rangle$ grâce à la base diffuse de la fonction d'autocorrélation.

Réécrivons l'intensité sous la forme $I(\vec{q}) = B(\vec{q}) + \Delta(\vec{q})$ (la dépendance par rapport à la configuration magnétique m est implicite). La cohérence du faisceau crée des interférences qui redistribuent l'intensité à l'intérieur d'une région de l'espace réciproque, le satellite magnétique dans notre cas. Si la moyenne est faite sur une région suffisamment grande de l'espace réciproque, les moyennes de l'intensité incohérente et de l'intensité cohérente sont égales, soit $\langle \Delta(\vec{q}) \rangle = 0$.

Pour $\delta\vec{q} = 0$, on a simplement $A(0) = \sum_q I^2(\vec{q}, m)$.

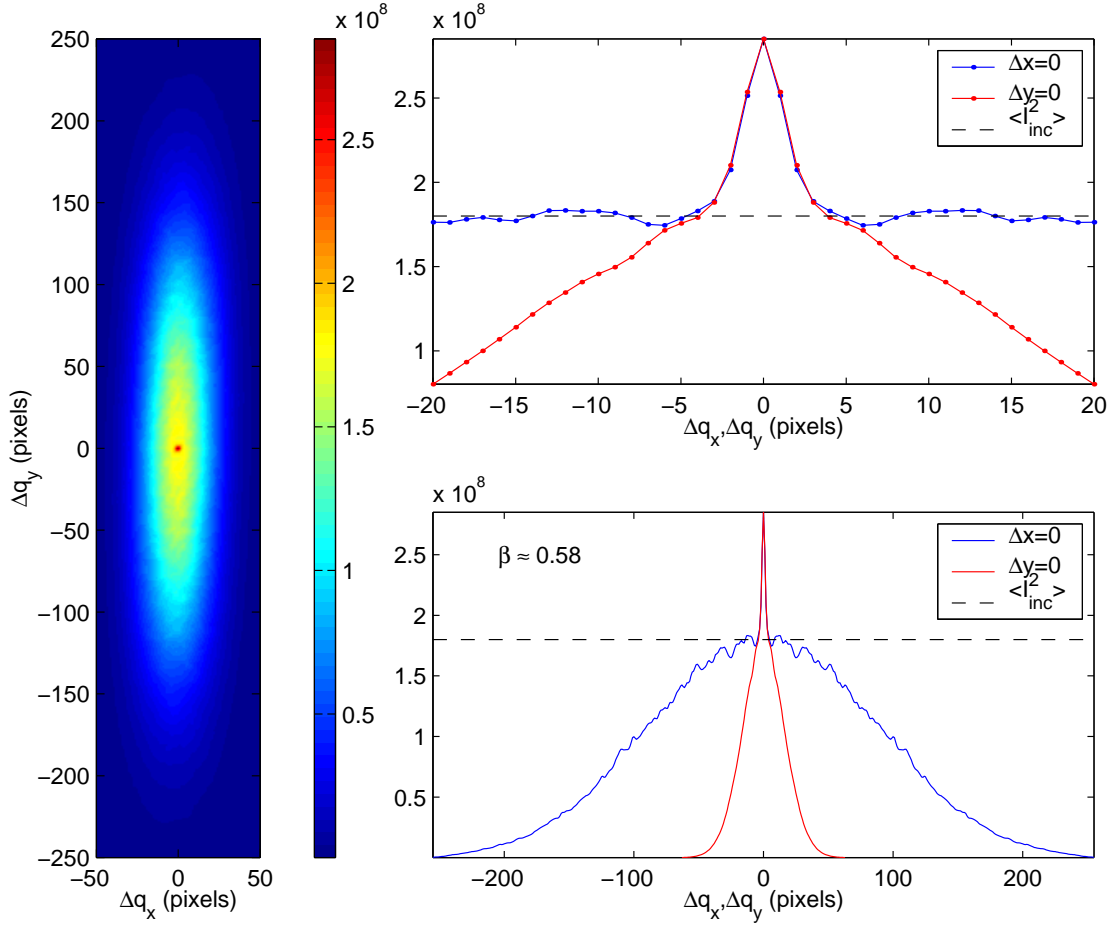


FIG. 6.12 – Fonction d'autocorrélation de la Figure 6.8. En bas à droite, les coupes longitudinale et latérale en son milieu. En haut à droite, zoom de ces coupes autour de la partie centrale.

Sinon :

$$\begin{aligned}
 A(\delta\vec{q}) &= \sum_{\vec{q}} I(\vec{q})I(\vec{q} + \delta\vec{q}) \\
 &= \sum_{\vec{q}} [B(\vec{q})B(\vec{q} + \delta\vec{q}) + \Delta(\vec{q})\Delta(\vec{q} + \delta\vec{q}) \\
 &\quad + B(\vec{q})\Delta(\vec{q} + \delta\vec{q}) + \Delta(\vec{q})B(\vec{q} + \delta\vec{q})]
 \end{aligned}$$

$B(\vec{q})$ et $\Delta(\vec{q})$ sont décorrélés, l'un exprimant les variations lentes et l'autre les variations rapides, donc la moyenne des deux termes mixtes est nulle. De plus, tant que $|\delta\vec{q}|$ est plus grand que la taille caractéristique des speckles, $\Delta(\vec{q})$ et $\Delta(\vec{q} + \delta\vec{q})$ sont décorrélés, donc $\langle \Delta(\vec{q})\Delta(\vec{q} + \delta\vec{q}) \rangle = 0$.

Il ne reste donc que le premier terme, qui s'identifie à l'autocorrélation de $B(\vec{q})$, dont la limite vers $\delta\vec{q} = 0$ est $\sum_{\vec{q}} B^2(\vec{q})$.

A partir de la fonction d'autocorrélation, on a donc $\langle I^2(\vec{q}) \rangle$ au sommet du pic central et $\langle B^2(\vec{q}) \rangle$ comme limite vers $\delta\vec{q} = 0$ de la base diffuse. On peut alors estimer β avec la formule 6.4.

Ceci nous conduit à une estimation de β de ~ 0.58 , ce qui est du même ordre que l'évaluation obtenue par lissage. Cette méthode d'évaluation de β est bien plus fiable que la méthode par lissage, trop dépendante des paramètres du lissage.

6.1.4 Corrélation de figures de speckles

La spectroscopie de fluctuation d'intensité (XPCS) permet d'étudier les fluctuations du système en fonction d'un paramètre extérieur. Dans notre cas, on souhaite étudier les changements de configuration magnétique en fonction principalement du champ magnétique appliqué, mais aussi de la température et du temps (pour étudier le trainage). Bien que nous n'ayons pas pu appliquer de champ magnétique ni faire varier la température lors de cette première campagne de mesures, l'échantillon couche mince de FePd est un système modèle pour étudier la dépendance de la figure de speckles en fonction de certains paramètres intrinsèques à la mesure, tels que l'énergie du faisceau et sa polarisation.

A cette fin, nous allons définir quelques critères utiles pour caractériser la ressemblance ou la différence entre deux répartitions de speckles. Un bon critère tiendra compte de la cohérence partielle du faisceau et du bruit de Poisson, mais se montrera coûteux en temps de calcul. Il est donc utile de définir aussi des critères simples, qui ne tiennent pas compte de la cohérence partielle du faisceau et du bruit de Poisson, mais qui permettent d'évaluer rapidement la corrélation entre deux images.

Fonction de corrélation

Soient donc $I_1(\vec{q})$ et $I_2(\vec{q})$ les deux figures de speckles que l'on veut comparer.

On décompose comme précédemment les intensités en partie incohérente et partie cohérente :

$$I_1(\vec{q}) = B_1(\vec{q}) + \Delta_1(\vec{q})$$

$$I_2(\vec{q}) = B_2(\vec{q}) + \Delta_2(\vec{q})$$

La fonction de corrélation s'écrit :

$$\begin{aligned} \text{Corr}(I_1, I_2, \delta\vec{q}) &= \sum_{\vec{q}} I_1(\vec{q}) I_2(\vec{q} + \delta\vec{q}) \\ &= \sum_{\vec{q}} B_1(\vec{q}) B_2(\vec{q} + \delta\vec{q}) + \sum_{\vec{q}} \Delta_1(\vec{q}) \Delta_2(\vec{q} + \delta\vec{q}) \\ &\quad + \sum_{\vec{q}} B_1(\vec{q}) \Delta_2(\vec{q} + \delta\vec{q}) + \sum_{\vec{q}} \Delta_1(\vec{q}) B_2(\vec{q} + \delta\vec{q}) \end{aligned}$$

Quelle que soit la corrélation des deux figures de speckles, les parties cohérentes Δ_i et incohérentes B_j sont non-corrélées. Les termes croisés $\sum \Delta_i B_j$ sont donc équivalents à $\sum \Delta_i \langle B_j \rangle$, où $\langle B_j \rangle$ est nul. Il reste :

$$\text{Corr}(I_1, I_2, \delta\vec{q}) = \text{Corr}(B_1, B_2, \delta\vec{q}) + \text{Corr}(\Delta_1, \Delta_2, \delta\vec{q})$$

Si les configurations 1 et 2 sont complètement indépendantes, le deuxième terme est nul et la figure de corrélation est similaire à la Figure 6.12, sans le pic central.

Nous définissons le critère de ressemblance suivant :

$$\rho(I_1, I_2) = \frac{\sum \Delta_1(\vec{q}) \Delta_2(\vec{q})}{\sqrt{\sum \Delta_1^2(\vec{q}) \sum \Delta_2^2(\vec{q})}} \quad (6.13)$$

$$= \frac{\sum I_1(\vec{q}) I_2(\vec{q}) - \sum B_1(\vec{q}) B_2(\vec{q})}{\sqrt{(\sum I_1^2(\vec{q}) - \sum B_1^2(\vec{q})) (\sum I_2^2(\vec{q}) - \sum B_2^2(\vec{q}))}} \quad (6.14)$$

$$\approx \frac{\sum \Delta_1(\vec{q}) \Delta_2(\vec{q})}{\sqrt{\beta_1 \sum B_1^2(\vec{q}) \beta_2 \sum B_2^2(\vec{q})}} \quad (6.15)$$

Les sommes se font sur les pixels de la région d'intérêt.

Ce critère est semblable à celui proposé par Pierce *et al* [96], mais nous prenons les valeurs à $\delta\vec{q} = 0$, au lieu de sommer les fonctions de corrélation sur la taille des speckles. Notre critère accorde donc toute l'importance à la position des speckles, et non à leur forme et leur taille. En effet, la forme et la taille des speckles sont déterminées par le diaphragme, alors que leurs positions dépendent de l'objet diffractant.

L'avantage d'un tel critère est qu'il est très robuste. En particulier, il permet de comparer des figures d'intensités moyennes différentes. Il tient également compte d'un éventuel décalage de pixels entre deux images corrélées.

C'est l'expression 6.14 qui permet de calculer $\rho(I_1, I_2)$ le plus facilement. Les intensités sont connues et les termes $\sum B_i(\vec{q}) B_j(\vec{q})$ s'évaluent en mesurant la base diffuse des fonctions d'autocorrélation et de corrélation mutuelle, comme pour l'évaluation de β .

L'expression 6.15 relie le critère de ressemblance aux facteurs de cohérence des mesures I_1 et I_2 , en négligeant le bruit de Poisson.

Dans la plupart des cas, on comparera des figures de speckles du même système, mesuré avec les mêmes conditions de faisceau, où seul l'état magnétique local sera différent, ce qui signifie que leurs intensités incohérentes seront identiques ($B_1(\vec{q}) = B_2(\vec{q}) \equiv B(\vec{q})$), ainsi que les facteurs de cohérence ($\beta_1 = \beta_2 = \beta$). Dans ce cas, le critère de ressemblance s'exprime ainsi :

$$\rho(I_1, I_2) = \frac{1}{\beta} \frac{\sum \Delta_1(\vec{q}) \Delta_2(\vec{q})}{\sum B^2(\vec{q})} = 1 - \frac{\alpha(I_1, I_2)}{\beta}$$

où $\alpha(I_1, I_2)$ est le critère de variation que nous avons utilisé dans [107], à savoir :

$$\alpha(I_1, I_2) = \frac{1}{2} \frac{\sum (I_1(\vec{q}) - I_2(\vec{q}))^2 - I_1(\vec{q}) - I_2(\vec{q})}{\sum B^2(\vec{q})} \quad (6.16)$$

Remarquons que $\rho(I_1, I_2)$ est compris entre 0 (aucune corrélation) et 1 (figures de speckles identiques, à un facteur multiplicatif près), alors que $\alpha(I_1, I_2)$ est compris entre 0 (aucune différence) et β (images identiques). En effet, ρ et α mesurent la ressemblance ou la différence entre deux figures de speckles, et non entre les deux états magnétiques qui les génèrent. La différence est due au fait que la cohérence du faisceau n'est pas parfaite, ce qui a pour effet d'atténuer les fluctuations d'intensité, qui sont les signatures des états magnétiques. Ainsi deux états magnétiques assez différents peuvent avoir des figures de speckles assez proches si la cohérence est mauvaise.

Les critères ρ et α sont très fiables, car ils prennent en compte la cohérence du faisceau et le bruit de Poisson, mais ils sont peu pratiques car ils nécessitent l'évaluation des $\langle B_i B_j \rangle$, dont

l'évaluation la plus précise, par l'intermédiaire des fonctions d'autocorrélation et de corrélation mutuelle, ne peut se faire automatiquement.

Nous avons donc également utilisé le critère suivant :

$$\rho'(I_1, I_2) = \frac{\langle (I_1 - \langle I_1 \rangle)(I_2 - \langle I_2 \rangle) \rangle}{\sqrt{\langle (I_1 - \langle I_1 \rangle)^2 \rangle \langle (I_2 - \langle I_2 \rangle)^2 \rangle}}$$

ρ' est la covariance normalisée. Elle consiste simplement à considérer que $B_1(\vec{q})$ et $B_2(\vec{q})$ sont constants sur la région d'intérêt, afin de faire l'approximation $\overline{I(\vec{q})} = \langle I_i(\vec{q}) \rangle$. Cette approximation est généralement mauvaise, si bien que ρ et ρ' sont assez différents. Néanmoins, ρ' est également un critère de ressemblance. Il est pratique pour comparer des séries de figures de speckles.

6.1.5 Speckles de FePd en géométrie perpendiculaire

En tournant l'échantillon de 90° , la direction principale des rubans magnétiques se retrouve perpendiculaire au faisceau incident. Les satellites magnétiques se retrouvent dans le plan principal de diffraction, de part et d'autre du spéculaire. La caméra étant située à 30° du faisceau incident, la longueur d'onde du faisceau et la période magnétique de l'échantillon conduisent à un écart de $\sim 2^\circ$ entre le pic spéculaire et les satellites, ce qui est plus grand que la couverture angulaire de la caméra.

Nous avons donc enregistré le satellite magnétique situé sous le pic spéculaire (incidence $\theta \approx 17^\circ$ et émergence $\theta' \approx 13^\circ$), pour les 4 quatre polarisations incidentes habituelles (σ , π , c^+ et c^- : Figure 6.13). La largeur rms du satellite est environ 120×140 pixels, soit 6×7 mrad. Les speckles de forte intensité sont majoritairement compris dans la partie centrale de 64×128 pixels.

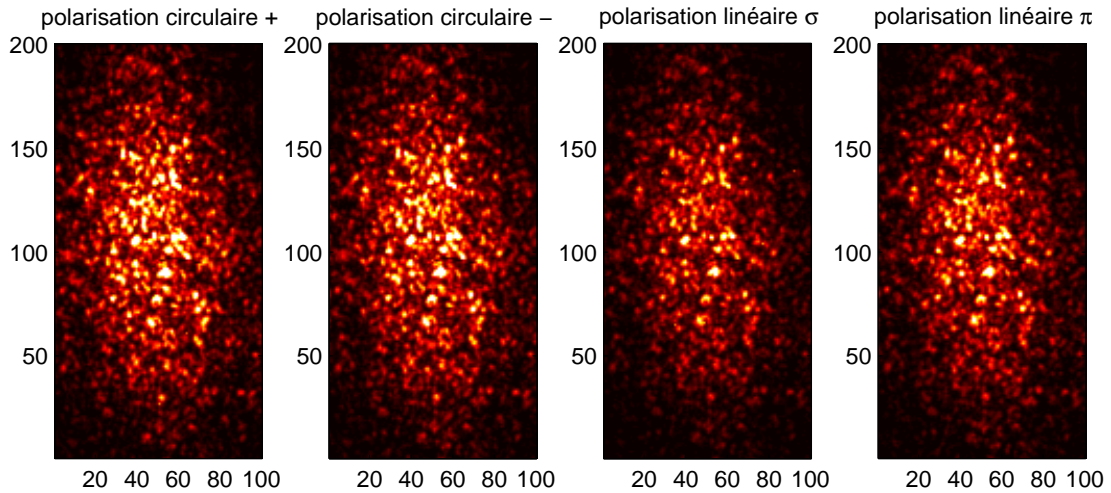


FIG. 6.13 – Détail du satellite magnétique obtenu en géométrie transverse, pour les 4 polarisations.

Le degré de cohérence de chaque image, évalué à partir de sa fonction d'autocorrélation, est respectivement (dans l'ordre des polarisations de la Figure 6.13) 0.55, 0.56, 0.53 et 0.53. Les différences entre ces valeurs ne sont pas significatives.

On calcule également le degré de ressemblance des images deux à deux à partir de leurs fonctions de corrélation mutuelle et d'autocorrélation. Les degrés de ressemblance sont récapitulés dans le Tableau 6.1.

Polarisation	c+	c-	σ	π
c+	$\beta = 0.55$	0.97	0.92	0.85
c-	0.97	$\beta = 0.56$	0.96	0.91
σ	0.92	0.96	$\beta = 0.53$	0.99
π	0.85	0.91	0.99	$\beta = 0.53$

TAB. 6.1 – Cohérences et ressemblances des images en géométrie transverse, calculées à partir des fonctions de corrélation mutuelle et d'autocorrélation.

On constate que les degrés de ressemblance sont très élevés, ce qui signifie que les images diffèrent très peu l'une de l'autre.

Evaluation du dichroïsme circulaire et du dichroïsme linéaire

Le degré de ressemblance entre les deux images obtenues avec des polarisations circulaires d'hélicité différente est très élevé (97%). Celui des deux images obtenues avec des polarisations linéaires orthogonales l'est aussi (99%). Nous allons vérifier que les effets dichroïques sont statistiquement uniformes sur tous les pixels du satellite.

On définit le rapport dichroïque circulaire au pixel \vec{q} et le rapport dichroïque circulaire global par :

$$\delta_c(\vec{q}) = \frac{I^+(\vec{q}) - I^-(\vec{q})}{I^+(\vec{q}) + I^-(\vec{q})}$$

$$\Delta_c = \frac{\langle I^+(\vec{q}) - I^-(\vec{q}) \rangle}{\langle I^+(\vec{q}) + I^-(\vec{q}) \rangle}$$

Par analogie avec le rapport dichroïque circulaire, on définit le rapport dichroïque linéaire au pixel \vec{q} et le rapport dichroïque linéaire global par :

$$\delta_l(\vec{q}) = \frac{I^\pi(\vec{q}) - I^\sigma(\vec{q})}{I^\pi(\vec{q}) + I^\sigma(\vec{q})}$$

$$\Delta_l = \frac{\langle I^\pi(\vec{q}) - I^\sigma(\vec{q}) \rangle}{\langle I^\pi(\vec{q}) + I^\sigma(\vec{q}) \rangle}$$

Le dichroïsme linéaire reflète normalement l'anisotropie magnétocristalline, mesuré par le terme $f^{(2)}$ du facteur de diffusion atomique résonant, qui est quadratique en fonction de la direction de quantification (l'aimantation dans notre cas) [61]. Ce terme quadratique n'intervient pas sur le satellite d'ordre 1. On mesure donc uniquement l'effet des facteurs géométriques sur le terme linéaire en fonction de l'aimantation.

Une cartographie des rapports dichroïques $\delta_c(\vec{q})$ et $\delta_l(\vec{q})$ sur la zone centrale de 64×128 pixels est représentée Figure 6.14.

Quelques grandeurs statistiques liées au dichroïsme circulaire et au dichroïsme linéaire sont répertoriées respectivement dans les Tableaux 6.2.

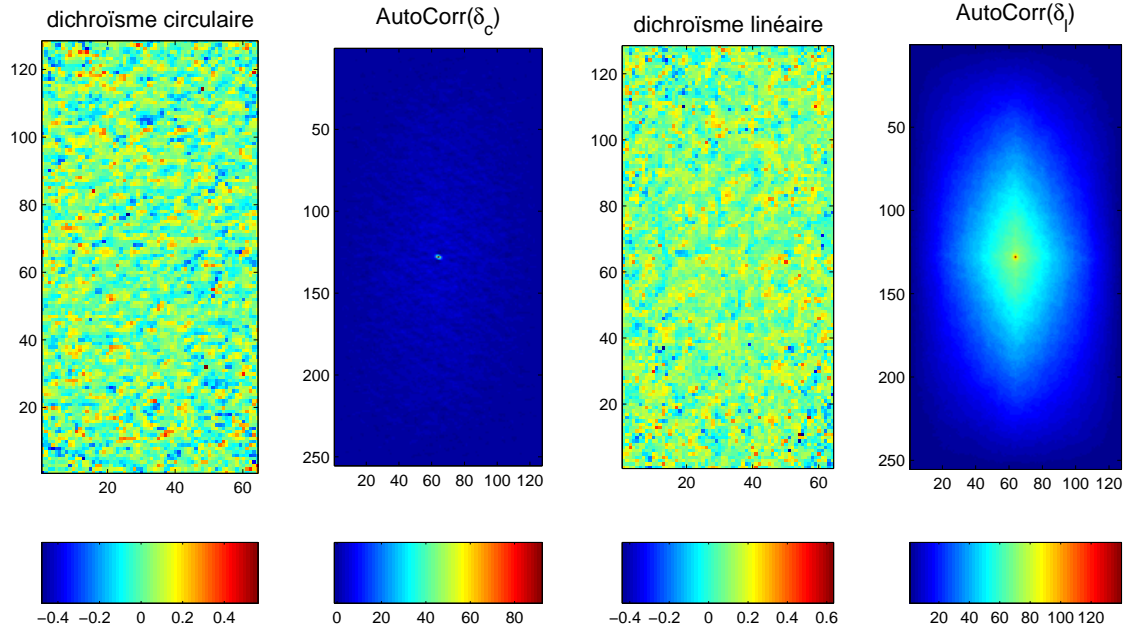


FIG. 6.14 – Cartographie du dichroïsme circulaire $\delta_c(\vec{q})$ (à gauche), et du dichroïsme linéaire $\delta_l(\vec{q})$ (à droite) sur la zone centrale du satellite magnétique. Leurs fonctions d'autocorrélation sont également représentées.

Le dichroïsme circulaire global Δ_c est assez faible (2.35%), mais néanmoins significatif. En effet, la moyenne des écarts quadratiques $\langle (I^+ - I^-)^2 \rangle$ est bien plus grande que le bruit de Poisson correspondant $\langle I^+ + I^- \rangle$, ce qui garantit que cette évaluation de Δ_c est statistiquement correcte. Il en est de même pour le dichroïsme linéaire global Δ_l (9.58%). Nous verrons plus loin une interprétation de ses valeurs globales.

On constate que la valeur moyenne de $\delta_c(\vec{q})$ est semblable à Δ_c :

$$\left\langle \frac{I^+(\vec{q}) - I^-(\vec{q})}{I^+(\vec{q}) + I^-(\vec{q})} \right\rangle \sim \frac{\langle I^+(\vec{q}) - I^-(\vec{q}) \rangle}{\langle I^+(\vec{q}) + I^-(\vec{q}) \rangle}$$

Cela signifie que $(I^+ - I^-)$ et $(I^+ + I^-)$ sont peu corrélés. Etant donnée la très forte corrélation entre I^+ et I^- , on en conclut que $(I^+ - I^-)$ est peu corrélé à I^+ et I^- .

C'est également le cas du dichroïsme linéaire.

Le fonction d'autocorrélation de $\delta_c(\vec{q})$ (Fig. 6.14), montre un pic central très fin sur une mer quasi-nulle. Le pic central est bien plus fin que le pic central d'autocorrélation des images, ce qui confirme que les variations de δ_c se font à une échelle bien plus petite que celles des speckles. Cette fonction d'autocorrélation est la signature d'un bruit aléatoire, et non d'un signal réel.

La fonction d'autocorrélation de $\delta_l(\vec{q})$ montre le même type de structure, mais le pic central surmonte une forme pyramidale. C'est la signature d'une fonction constante dont la fonction d'autocorrélation est calculée dans une "boîte" finie. Cet effet n'est pas visible sur la fonction d'autocorrélation de $\delta_c(\vec{q})$ car la partie constante du dichroïsme est plus faible.

En conclusion, les dichroïsmes circulaire et linéaire sont statistiquement uniformes sur l'étendue du satellite (ou du moins sa partie centrale).

$\langle I^+ \rangle$	$\langle I^- \rangle$	$\langle I^+ + I^- \rangle$	$\langle I^+ - I^- \rangle$	$\langle (I^+ - I^-)^2 \rangle$
362	346	708	16.61	6090
Δ_c	$\langle \delta_c \rangle$	$\langle \delta_c^2 \rangle$	$\sqrt{\langle \delta_c^2 \rangle - \langle \delta_c \rangle^2}$	$\left\langle \frac{(I^+ - I^-)^2}{I^+ + I^-} \right\rangle$
2.35×10^{-2}	2.12×10^{-2}	1.14×10^{-2}	10.4×10^{-2}	6.17
$\langle I^\sigma \rangle$	$\langle I^\pi \rangle$	$\langle I^\sigma + I^\pi \rangle$	$\langle I^\pi - I^\sigma \rangle$	$\langle (I^\sigma - I^\pi)^2 \rangle$
337	387	523	50.14	6367
Δ_l	$\langle \delta_l \rangle$	$\langle \delta_l^2 \rangle$	$\sqrt{\langle \delta_l^2 \rangle - \langle \delta_l \rangle^2}$	$\left\langle \frac{(I^\sigma - I^\pi)^2}{I^\sigma + I^\pi} \right\rangle$
9.58×10^{-2}	9.31×10^{-2}	1.72×10^{-2}	9.24×10^{-2}	7.85

TAB. 6.2 – *Caractéristiques statistiques liées au dichroïsme circulaire et au dichroïsme linéaire. Les intensités sont exprimées en photons. Les moyennes se font sur une région d'intérêt de 64×128 pixels*

Interprétation

On peut supposer que la transformée de Fourier de la densité électronique est nulle dans cette région de l'espace réciproque : on a vu en géométrie longitudinale que les satellites magnétiques et le diffus du spéculaire ne se recouvraient pas dans l'espace réciproque. Avec cette hypothèse, les rapports dichroïques circulaire et linéaire s'écrivent (d'après l'Equation 3.17) :

$$\delta_c(\vec{q}) = \frac{2\Im \left\{ \left[\hat{k}' \cdot \vec{M}(\vec{q}) \right] \left[(\hat{k} \wedge \hat{k}') \cdot \vec{M}^*(\vec{q}) \right] \right\}}{\left| \hat{k} \cdot \vec{M}(\vec{q}) \right|^2 + \left| \hat{k}' \cdot \vec{M}(\vec{q}) \right|^2 + \left| (\hat{k} \wedge \hat{k}') \cdot \vec{M}(\vec{q}) \right|^2}$$

$$\delta_l(\vec{q}) = \frac{\left| \hat{k} \cdot \vec{M}(\vec{q}) \right|^2 - \left| \hat{k}' \cdot \vec{M}(\vec{q}) \right|^2 + \left| (\hat{k} \wedge \hat{k}') \cdot \vec{M}(\vec{q}) \right|^2}{\left| \hat{k} \cdot \vec{M}(\vec{q}) \right|^2 + \left| \hat{k}' \cdot \vec{M}(\vec{q}) \right|^2 + \left| (\hat{k} \wedge \hat{k}') \cdot \vec{M}(\vec{q}) \right|^2}$$

On peut faire ici les approximations supplémentaires suivantes :

- Les facteurs géométriques dus à la polarisation sont constants sur l'ensemble du satellite, qui s'étend sur 6×7 mrad rms environ.
- Etant donné la position et la largeur du satellite sur la caméra CCD, on peut considérer que la diffraction a bien lieu dans le plan principal de diffraction. On a alors $\hat{k} \wedge \hat{k}' = -\sin 2\theta_0 \hat{\sigma}$.
- L'angle azimutal de l'échantillon est très proche de 90° (la direction principale des rubans magnétiques est perpendiculaire au faisceau incident), et les rubans sont très rectilignes, comme nous avons pu le vérifier en MFM. On estime donc qu'en tout point \vec{r} de l'échantillon, l'angle $\phi(\vec{r})$ entre la direction $\hat{\sigma}$ et la direction locale des rubans est petit. Pour des rubans parfaitement alignés, la composante de l'aimantation dans cette direction est de période moitié, et ne contribue donc pas au satellite magnétique d'ordre 1. Ces hypothèses permettent de négliger $\hat{k} \wedge \hat{k}' \cdot \vec{M}^*$ devant les autres contributions.

On aboutit aux expressions simplifiées :

$$\delta_c(\vec{q}) \approx 2 \sin 2\theta_0 \frac{\Im \left\{ (M_y \cos \theta' + M_z \sin \theta') (\mathcal{F} [m_x^* \cos \phi + m_y^* \sin \phi]) \right\}}{\left| M_y \cos \theta - M_z \sin \theta \right|^2 + \left| M_y \cos \theta' + M_z \sin \theta' \right|^2}$$

$$\delta_l(\vec{q}) \approx \frac{\left| M_y \cos \theta - M_z \sin \theta \right|^2 - \left| M_y \cos \theta' + M_z \sin \theta' \right|^2}{\left| M_y \cos \theta - M_z \sin \theta \right|^2 + \left| M_y \cos \theta' + M_z \sin \theta' \right|^2}$$

\mathcal{F} désigne la transformée de Fourier.

On a vu que δ_l est indépendant de \vec{q} . On peut montrer que cela implique que le rapport $\frac{M_z}{M_y}$ l'est aussi. De plus, on sait que dans le cas de rubans parfaitement périodiques, les composantes m_y et m_z sont déphasées d'un quart de période. Il semble raisonnable de définir

$$i\gamma = \frac{M_z(\vec{q})}{M_y(\vec{q})}$$

où γ est une constante réelle.

On a donc :

$$\Delta_l \approx \delta_l(\vec{q}) = \frac{(\sin^2 \theta - \sin^2 \theta')(\gamma^2 - 1)}{\cos^2 \theta + \cos^2 \theta' + \gamma^2(\sin^2 \theta + \sin^2 \theta')}$$

Ce qui permet de déterminer $\gamma \approx 3.13$ (avec $\langle \delta_l \rangle$) ou $\gamma \approx 3.20$ (avec Δ_l).

On pourrait aussi déterminer la moyenne de ϕ à partir de la valeur moyenne du dichroïsme circulaire, et ainsi retrouver l'écart angulaire entre la direction principale des rubans et la direction $\hat{\sigma}$.

Conclusion

On a donc montré que les défauts d'orientation et de périodicité des rubans magnétiques ne modifient pas significativement leur structure micromagnétique interne : les différentes composantes de l'aimantation "se suivent", et le rapport de leurs transformées de Fourier reste constant.

Cette situation est due à la très bonne qualité d'orientation et de périodicité des rubans. Il est probable que les effets dichroïques ne soient pas uniformes dans le cas de systèmes magnétiques très désordonnés.

6.2 Diffraction magnétique cohérente d'une microstructure de FePd

Nous avons vu que la diffraction cohérente était une sonde locale pour étudier les fluctuations du système, en comparant les structures de speckles. Nous verrons plus loin une illustration de l'observation des changements d'état magnétique sous l'effet d'un champ.

L'autre enjeu de la diffraction cohérente est l'imagerie, le but étant au final d'imager la zone sondée. Des résultats récents [101] ont confirmé cette possibilité, avec une méthode basée sur l'holographie.

Une première étape vers la reconstruction d'images est la simulation de l'intensité diffractée à partir d'un objet connu. C'est ce que nous avons entrepris dans l'exemple qui suit.

6.2.1 Description de l'échantillon

En diffraction magnétique cohérente, l'objet diffractant est une structure magnétique dont l'extension est limitée par l'empreinte du faisceau, dépendant de la taille du diaphragme. C'est donc un objet micrométrique, peu facile à repérer sur un échantillon continu : sans repère précis, on ne peut imaginer la même zone en microscopie de champ proche et en diffraction cohérente. Nous avons donc étudié des échantillons à support fini, plus petit que l'empreinte du faisceau.

Nous présentons ici un échantillon micrométrique lithographié dans une couche mince de FePd. L'échantillon souche est une bicouche de FePd de structure nominale identique à celle de l'échantillon B1 (cf. §1.2.4). Sa morphologie magnétique initiale présente des domaines en

rubans alignés. Nous avons choisi une forme de losange allongé, de taille approximative $10 \mu\text{m} \times 40 \mu\text{m}$ pour les raisons suivantes :

1. Le rapport d'aspect du losange est le même que celui de l'empreinte du faisceau, et sa taille permet d'en intercepter une partie importante. C'est important car la diffraction magnétique cohérente est un signal faible. Comme nous allons le voir, même cette taille diffracte des speckles de relativement faible intensité.
2. La forme et l'orientation du losange sont choisies pour que les bords diffractent dans une zone de l'espace réciproque différente des satellites magnétiques.

Procédé de gravure

L'échantillon a été gravé par lithographie électronique par Jean-Luc Thomassin (CEA) : de la résine UV3 est déposée sur l'échantillon, puis gravée au microscope électronique selon les motifs choisis. On dépose ensuite du Titane par pulvérisation cathodique. Le "lift-off" retire toute la résine, avec le titane déposé dessus, et ne laisse donc que le titane déposé dans les trous de résines, qui recouvre les motifs. La gravure se fait ensuite au canon à argon, qui retire l'alliage sur les zones non recouvertes et le Titane sur la zone recouverte. Cette opération a été effectuée par Laurent Ranno (Laboratoire Louis Néel).

L'idéal est de déposer la quantité de titane adéquate pour graver exactement tout le titane sur les zones couvertes et tout l'alliage sur les zones découvertes. Les temps de gravure pour le FePd n'étant pas connus, et en choisissant de retirer toute la couche de Titane, notre échantillon n'a pas été gravé jusqu'au substrat de MgO, et il reste une partie de la couche tampon de Palladium. Cette couche métallique résiduelle ne génère pas de diffraction magnétique, mais réfléchit le faisceau bien plus intensément que ne l'aurait fait le substrat de MgO. De plus, le procédé de gravure rend cette couche très rugueuse, ce qui peut occasionner de la diffusion diffuse gênante pour observer les satellites magnétiques.

6.2.2 Observation en microscopie de champ proche

L'échantillon a été imagé en champ proche. Sa configuration magnétique est présentée Figure 6.15.

La nécessité de décrire les domaines avec au moins 2 pixels par domaine, et les limitations de l'appareil à 512 pixels par ligne, quelle que soit la taille de l'image, nous ont empêché d'imager tout l'échantillon sur une seule image. La Figure 6.15 est donc le résultat de l'assemblage de 4 images de $12 \mu\text{m} \times 12 \mu\text{m}$, qu'il a fallu corriger des dérives inhérentes à la microscopie de champ proche, tant sur le balayage en (x, y) que sur l'amplitude d'oscillation du cantilever, due à la dérive en fréquence et à une possible démagnétisation de la pointe en cours de balayage. Les domaines magnétiques, de largeur assez régulière, sont décrits en moyenne par 4 pixels.

6.2.3 Diffraction magnétique cohérente

Nous avons mesuré la diffraction magnétique cohérente de cet échantillon au seuil L_3 du Fer et en géométrie longitudinale et polarisation incidente circulaire. Le porte-diaphragme est le dispositif présenté sur la figure 5.6, avec lequel le diaphragme est placé environ 25 mm devant l'échantillon. Le diamètre du diaphragme est de $10 \mu\text{m}$. Nous avons utilisé la caméra CCD décrite en détails dans la section 5.7.

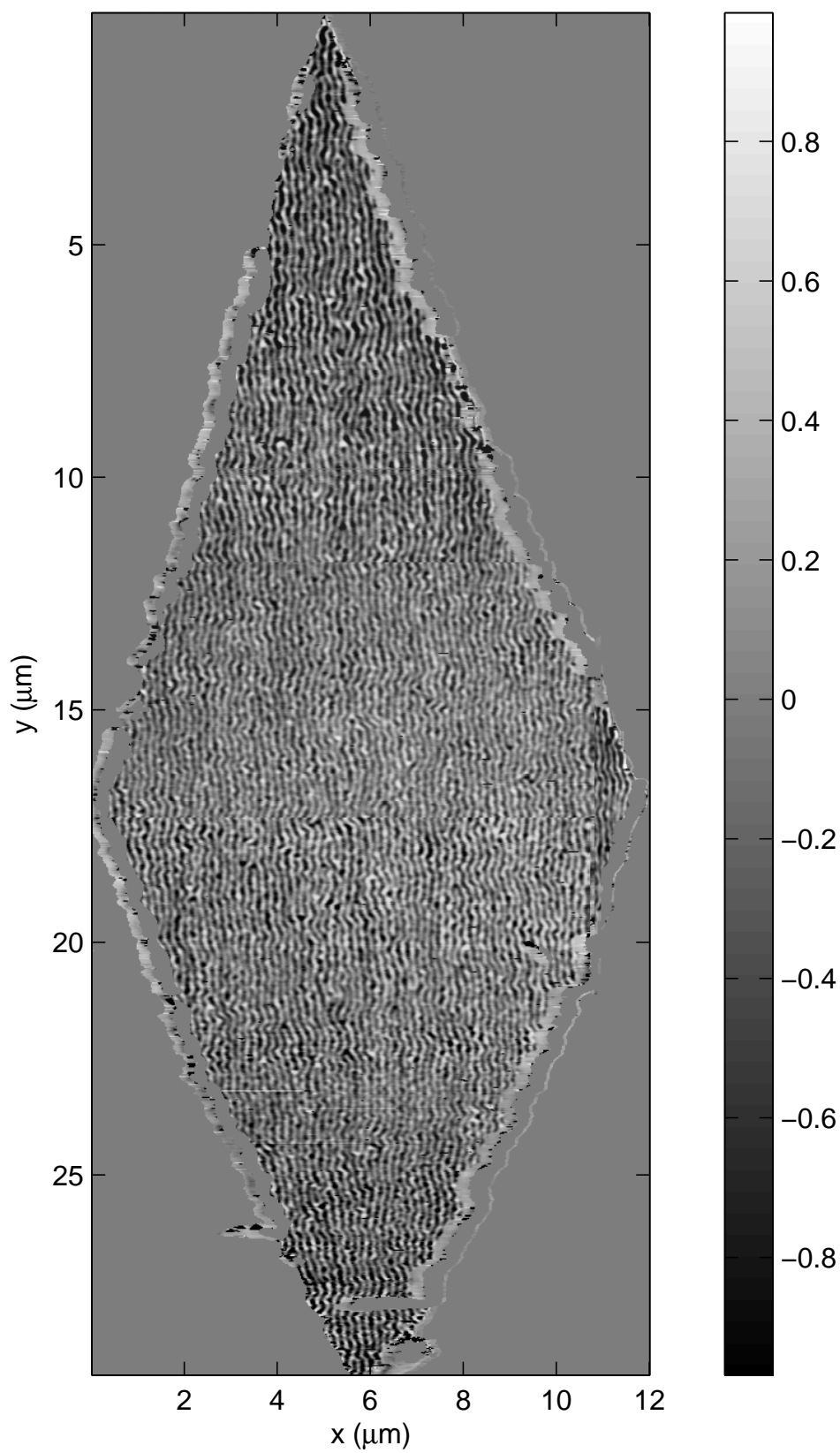


FIG. 6.15 – Image MFM de la microstructure gravée dans une couche mince de FePd.

Résultat expérimental

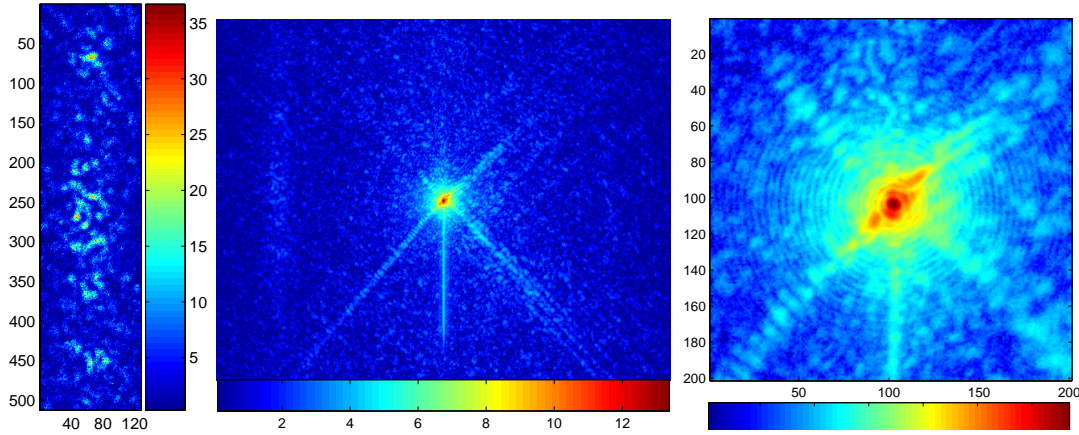


FIG. 6.16 – Au centre, figure de diffraction cohérente de la microstructure au seuil L_3 du Fer en polarisation circulaire (échelle d'intensité logarithmique, l'image fait 1261×1001 pixels). A droite, détail de la partie centrale (échelle logarithmique). A gauche, détail du satellite gauche (échelle linéaire).

L'aspect général du spectre de diffraction (Fig. 6.16, centre) est similaire à celui de la Figure 6.3, avec deux satellites magnétiques allongés. Leur intensité, relativement au spéculaire, est cependant nettement plus faible que dans le cas précédent. Ici, seule la partie centrale de l'onde incidente éclaire des atomes magnétiques, dans la forme en losange, le reste de l'onde étant réfléchi par toute la surface gravée de Palladium.

Les bords droits de la forme en losange induisent une diffraction en traînées obliques. Le rapport d'aspect (environ 4), combiné au sinus de l'angle d'incidence ($\sin 15^\circ \approx 1/4$), explique que ces traînées soient perpendiculaires. La traînée verticale est due à quatre gros carrés lithographiés servant à repérer la microstructure. Bien que situés à $(\pm 50, \pm 50)\mu\text{m}$ en diagonale, la queue de l'onde incidente les éclaire.

La topographie détaillée des satellites magnétiques est bien différente de celle de la Figure 6.8 : les speckles sont plus gros. C'est dû à la taille de l'échantillon, qui est à peu près celle du diaphragme utilisé. Le diamètre de ce dernier est ici de l'ordre de $10\mu\text{m}$ alors qu'il était de $20\mu\text{m}$ dans le cas précédent. D'autre part, les speckles sont mieux décrits car la taille des pixels de la caméra CCD utilisée ici est de $13.5\mu\text{m}$, contre $22.5\mu\text{m}$ dans le cas précédent, le détecteur étant placé à la même distance de l'échantillon et la longueur d'onde identique. La largeur à mi-hauteur du pic central d'autocorrélation (Fig. 6.17) est d'environ 10 pixels, ce qui est cohérent avec l'observation précédente de ~ 3.5 pixels : on a bien $10/3.5 \approx 22.5/13.5 \times 2$.

L'intensité assez basse de cette figure implique un bruit de Poisson important. Il s'exprime sur la fonction d'autocorrélation par une pointe à la valeur $\delta\vec{q} = 0$, qui s'ajoute au pic central de diffraction cohérente.

A partir de la fonction d'autocorrélation, on détermine le degré de cohérence avec l'équation 6.11 : $\beta \approx 0.48$. Cette valeur est sensiblement plus faible que celle obtenue auparavant, pour des raisons que nous ne connaissons pas.

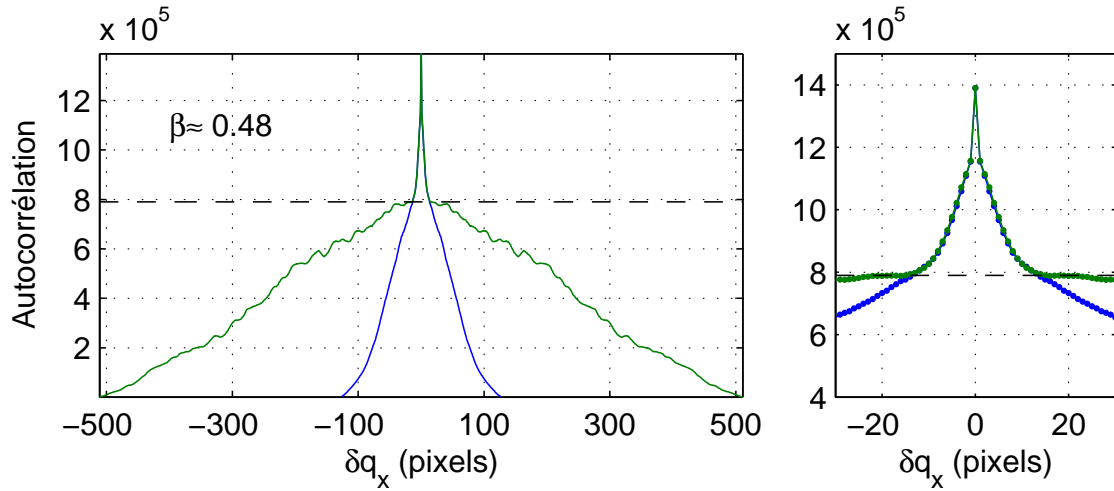


FIG. 6.17 – Coupes transversales et longitudinales au centre de la fonction d'autocorrélation de la figure de speckles 6.16. Détail du pic central à droite. Le degré de cohérence, évalué par l'équation 6.11, est de 0.48. Le bruit de Poisson apparaît clairement sur le pixel central de la fonction d'autocorrélation.

Modélisation

La diffraction magnétique cohérente a été modélisée à partir de l'image MFM présentée Figure 6.15, en adoptant un modèle assez simple de diffraction. L'intensité diffractée est décrite ici par un pur modèle cinématique, en tenant compte de l'amplitude complexe de l'onde incidente $A(\vec{r})$:

$$I(\vec{q}) = \int A(\vec{r})f(\vec{r})e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}}d\vec{r} \quad (6.17)$$

Les valeurs discrètes \vec{q}_{lm} du vecteur \vec{q} sont définies par les pixels de la caméra CCD, et la discrétisation de l'échantillon (\vec{r}_{ij}) se fait par le maillage de l'image MFM, dont le pas est de 23.4 nm. La somme se fait uniquement sur la forme en losange.

Comme l'image MFM ne donne que le gradient $\vec{\nabla}B_z$ du champ rayonné par l'échantillon, nous ne disposons pas de cartographie des trois composantes des moments magnétiques à la surface de l'échantillon. On peut considérer que le signal enregistré est assez proche de la composante m_z des moments, mais il faut aussi établir un modèle pour m_x (direction transverse) si l'on veut rendre compte du dichroïsme. Le modèle que nous avons choisi consiste à déphaser m_z d'un quart de période (2 pixels) pour obtenir m_x . On impose également la normalisation $m_x^2 + m_z^2 = 1$. On néglige ainsi la composante m_y , qui est marginale en surface dans ce type d'échantillon (cf. les caractérisations de l'échantillon B1 dans la première partie). On ne tient pas compte du profil vertical de l'aimantation, ce qui n'est pas important car q_z varie très peu sur l'étendue du détecteur.

L'amplitude de l'onde est calculée selon modèle détaillé dans l'Annexe B.2.2 pour un diaphragme parfaitement circulaire (Fig. 6.18). Avec le diaphragme de 10 μm à 25 mm de l'échantillon, l'amplitude complexe de l'onde n'est pas très sensible à l'erreur faite sur l'évaluation de la distance diaphragme-échantillon. Par ailleurs, nous avons considéré que le centre du diaphragme était exactement en face du centre de la zone gravée. Cette hypothèse est justifiée par notre démarche expérimentale, au cours de laquelle nous avons recherché le centre de la microstructure

en optimisant la symétrie des traînées de diffraction obliques dues aux bords. Etant donné la forme régulière de l'onde, l'erreur commise sur cette hypothèse est sans importance.

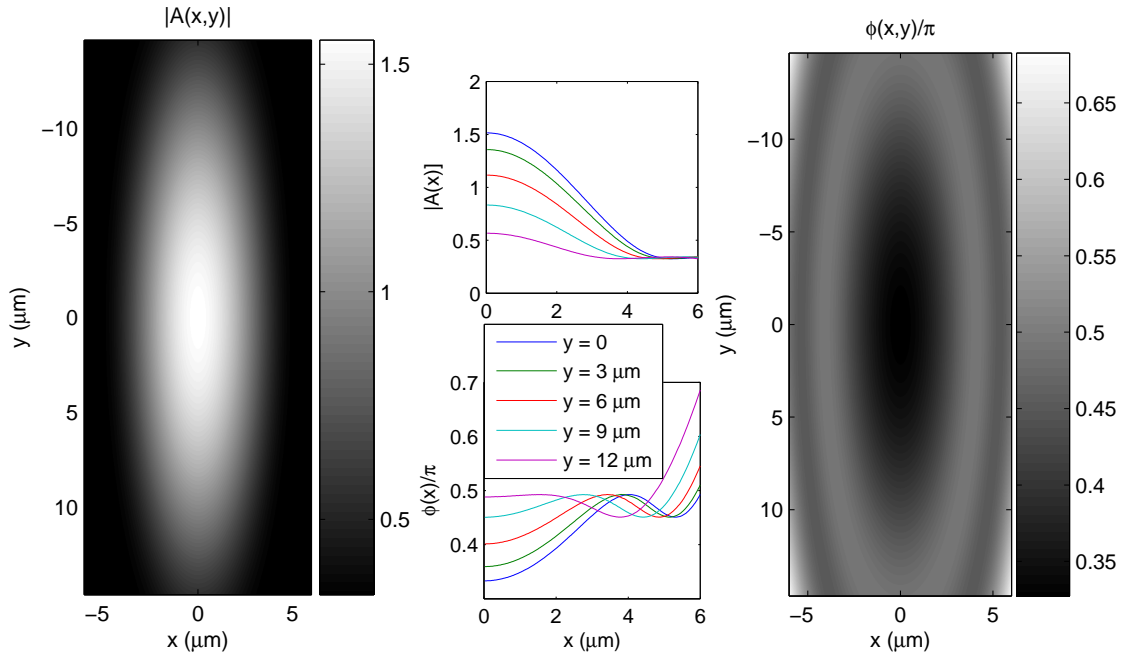


FIG. 6.18 – Forme de l'onde incidente sur l'échantillon, en module et en phase.

La Figure 6.19 présente l'intensité magnétique en polarisation incidente σ (cette polarisation a l'avantage de dissocier l'intensité magnétique de l'intensité de charge), ainsi que le détail du satellite gauche, calculé avec les deux polarisations circulaires.

En comparant les figures de speckles simulées et expérimentale, on peut retrouver certains agencements de speckles, et la répartition d'intensité dans le satellite est assez semblable. La répartition exacte des speckles est assez différente, ce qui est normal dans la mesure où le modèle liant la mesure MFM à la configuration magnétique est assez simpliste.

On constate que la taille des speckles simulés est plus grande que celle des speckles expérimentaux. Cela se voit sur le pic central de la figure d'autocorrélation (Fig. 6.20), dont la largeur à mi-hauteur est d'environ 12 pixels.

En conclusion, notre modélisation de diffraction magnétique cohérente à partir de la microscopie de champ proche reproduit assez bien la structure générale de la figure de speckles, mais pas la structure détaillée. Il semble que la cohérence médiocre du faisceau ($\sim 50\%$) génère une structure de speckles plus compliquée et une fonction de corrélation plus fine. Les différences sur la structure détaillée des speckles est également largement due à la mauvaise connaissance de la structure magnétique tridimensionnelle l'échantillon.

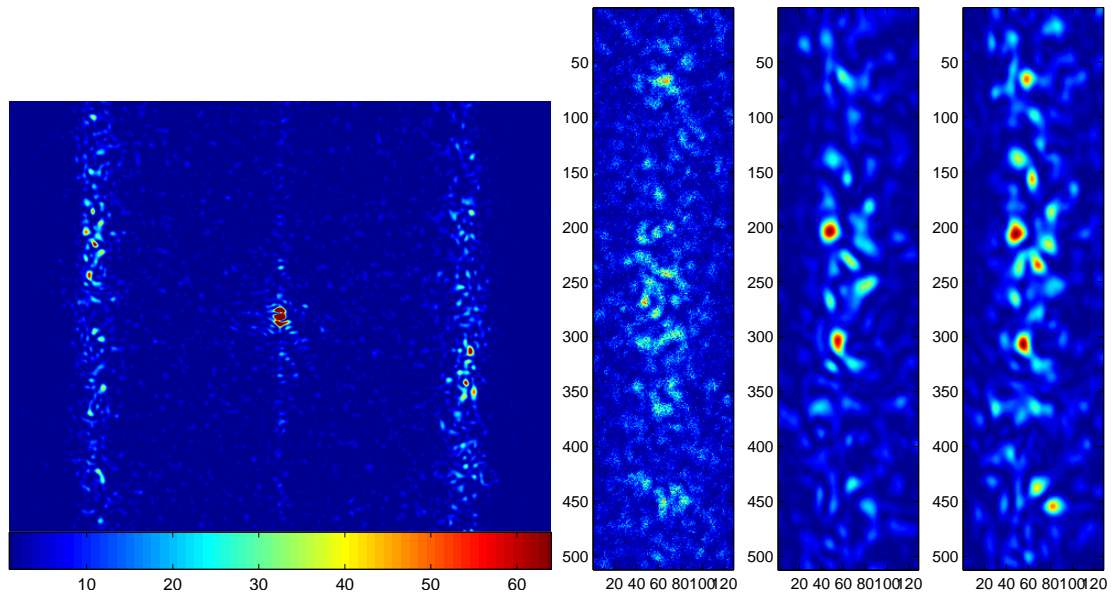


FIG. 6.19 – A gauche, simulation de l'intensité magnétique en polarisation σ (échelle linéaire arbitraire). Les trois figures de droite présentent le détail du satellite magnétique gauche du spectre expérimental (tout à gauche) obtenu en polarisation circulaire et des spectres simulés pour les deux polarisations circulaires.

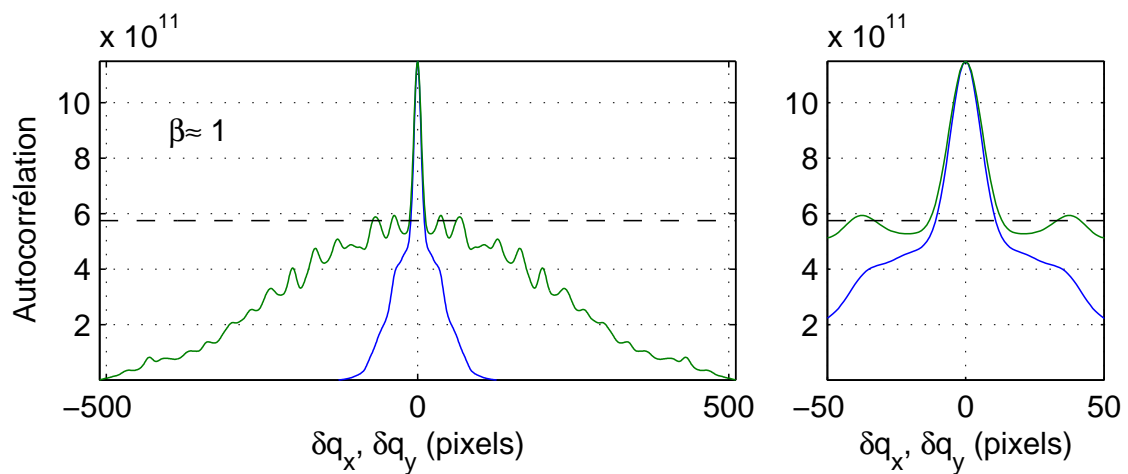


FIG. 6.20 – Coupes transversale et longitudinale au centre de la fonction d'autocorrélation de l'intensité simulée en polarisation σ .

Chapitre 7

Diffraction cohérente de nanolignes à aimantation perpendiculaire

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, les couches minces de FePd et de façon générale les média continus ne sont pas des cas favorables à une reconstruction de configuration magnétique à partir de leur spectre de diffraction magnétique cohérente, car la structure tridimensionnelle de l'échantillon et le nombre de degrés de liberté des moments magnétiques rendent le problème assez complexe.

Nous nous sommes donc intéressés à un cas simple, dans lequel le nombre d'inconnues est fini et réduit. Il s'agit de lignes parallèles gravées dans le silicium et couvertes d'une multicouche périodique de Co/Pt. Ce type de système est particulièrement d'actualité, car les media structurés à aimantation perpendiculaire font partie des matériaux les plus étudiés en vue du stockage magnétique. En effet, en structurant le support, on peut s'affranchir des problèmes de stabilité des domaines magnétiques à température ambiante et descendre la taille de la cellule de stockage élémentaire en dessous de la limite superparamagnétique des media continus. Le comportement magnétique des nanoplots et nanolignes recouverts d'une multicouche de Co/Pt est étudié en détail dans les thèses de Stefan Landis [6], de Jérôme Moritz [7] et de Vincent Baltz [8].

Pour la diffraction cohérente, ces systèmes ont l'avantage d'avoir une structure très bien définie. La multicouche de Co/Pt, si elle est bien choisie, a son aimantation perpendiculaire.

Ce type de système a déjà été étudié par Karine Chesnel en diffraction magnétique incohérente [59] et cohérente [95]. Ces premiers résultats prometteurs nous ont incité à poursuivre l'étude de ce système.

Nous allons voir dans ce chapitre quelques observations de diffraction magnétique cohérente, puis présenter une tentative de reconstruction.

7.1 Description des nanolignes magnétiques

7.1.1 Le réseau de nanolignes

L'échantillon présenté dans ce chapitre consiste en un réseau périodique de lignes parallèles gravées dans le silicium et couvertes d'une multicouche de Co/Pt.

Le réseau de lignes, fourni par Stefan Landis (CEA-LETI), est gravé sur une surface de 2×2 mm. Les caractéristiques géométriques des lignes sont les suivantes :

- hauteur : 300 nm

- largeur : 100 nm
- espacement entre lignes : 75 nm

La période structurale est donc de 175 nm. Les lignes sont continues sur toute la longueur de l'échantillon.

Le réseau de lignes est de très bonne qualité, comme en atteste l'image AFM Figure 7.1. Seuls les bords de la zone gravée comportent des défauts tels que des fourches ou des décalages d'une demi-période, liés au processus de gravure.

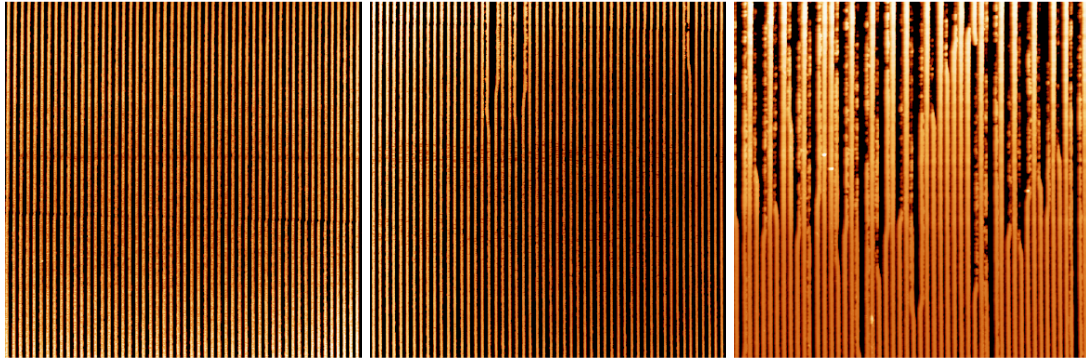


FIG. 7.1 – Images AFM $10\ \mu\text{m} \times 10\ \mu\text{m}$ de l'échantillon. Plus on s'approche du bord de la gravure, plus les défauts sont nombreux.

7.1.2 La multicouche de Co/Pt

La multicouche de Co/Pt a été déposée sur le substrat prégravé par pulvérisation cathodique par Vincent Baltz (CEA-Spintec). Le dépôt consiste en 12 répétitions d'une bicouche de 25 Å de Platine et de 6 Å de Cobalt, une treizième couche de 25 Å de Platine étant ajoutée pour protéger le Cobalt de l'oxydation.

La période de la multicouche a été choisie pour que son pic de Bragg d'ordre 1 corresponde à la position du détecteur bidimensionnel (30°) à la longueur d'onde du seuil L_3 du Cobalt ($E \approx 778\ \text{eV}$, $\lambda \approx 1.59\ \text{nm}$). On maximise ainsi le signal réfléchi lors des expériences, ce qui diminue sensiblement le temps d'acquisition : dans ces conditions, une seconde suffit pour saturer le détecteur avec le spéculaire, ce qui correspond environ à 1000 photons/s/pixel.

Les épaisseurs relatives du Cobalt et du Platine ont été choisies pour maximiser la quantité de Cobalt, dans le but d'optimiser le signal de diffraction magnétique. Il faut cependant rester sous la limite à partir de laquelle l'anisotropie induite par la structure en multicouche n'est plus suffisante pour maintenir l'aimantation du Cobalt perpendiculaire à la couche.

Enfin, le nombre de répétitions est choisi lui aussi le plus grand possible, toujours pour maximiser la quantité de Cobalt, mais en restant dans le domaine où la multicouche est 100% rémanente. Cela a été vérifié sur un échantillon témoin non structuré, dont le cycle mesuré en effet Hall perpendiculaire est présenté sur la Figure 7.2.

Les images MFM présentées Figure 7.3 montrent que l'on peut considérer chaque ligne comme un macro-spin.

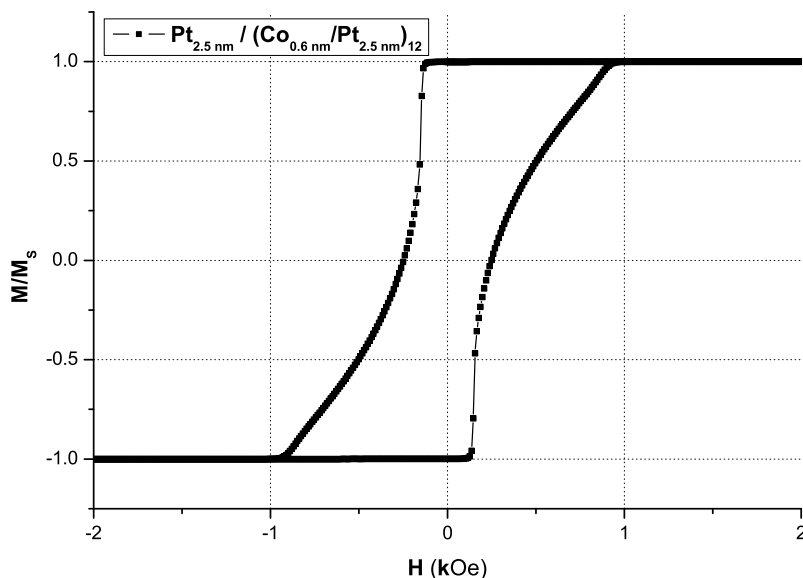


FIG. 7.2 – Cycle d'aimantation de la multicouche de Co/Pt déposée, mesuré en champ perpendiculaire par effet Hall.

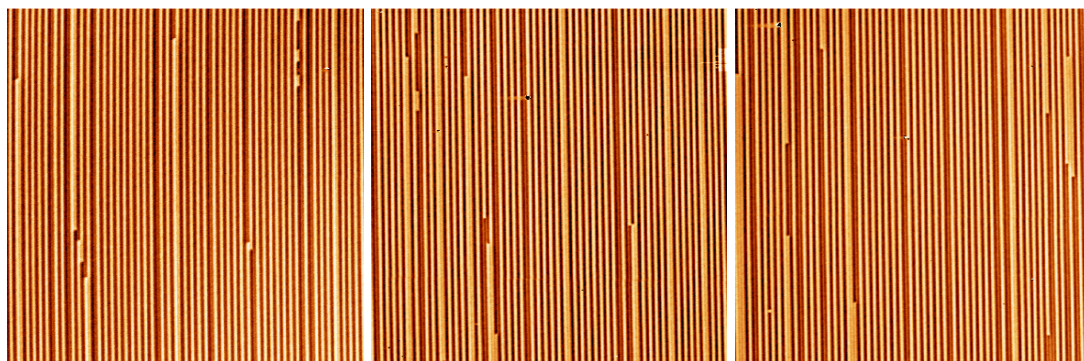


FIG. 7.3 – Images MFM $20 \mu\text{m} \times 20 \mu\text{m}$ de l'échantillon après désaimantation. Les domaines "up" et "down" apparaissent respectivement en jaune et en noir. Les nanolignes sont presque toutes monodomaines, et le sens de leur aimantation perpendiculaire est majoritairement alterné.

7.2 Résultats expérimentaux

La diffraction magnétique cohérente de cet échantillon a été mesurée au seuil L_3 du Cobalt ($E \approx 778 \text{ eV}$, $\lambda \approx 1.59 \text{ nm}$), en polarisation circulaire. Nous avons utilisé le porte-diaphragme présenté Figure 5.7, qui amène le diaphragme à 7 mm de l'échantillon. Le diaphragme utilisé fait $10 \mu\text{m}$ de diamètre nominal. Il est présenté sur la Figure 5.8.

7.2.1 Observation des défauts de gravure

En géométrie transverse, c'est-à-dire avec les lignes gravées perpendiculaires au faisceau, la périodicité des lignes donne lieu à un pic de surstructure dans l'espace réciproque. Ce pic est

observable avec les rayons X mous avec un écart angulaire suffisamment faible par rapport au pic spéculaire pour qu'on puisse observer les deux sur la même image (Fig. 7.4). Entre les deux pics, on observe des speckles liés à l'arrangement des domaines magnétiques dans la zone irradiée. Comme l'ordre est principalement antiferromagnétique, les speckles intenses sont observés près du milieu entre deux pics de structure.

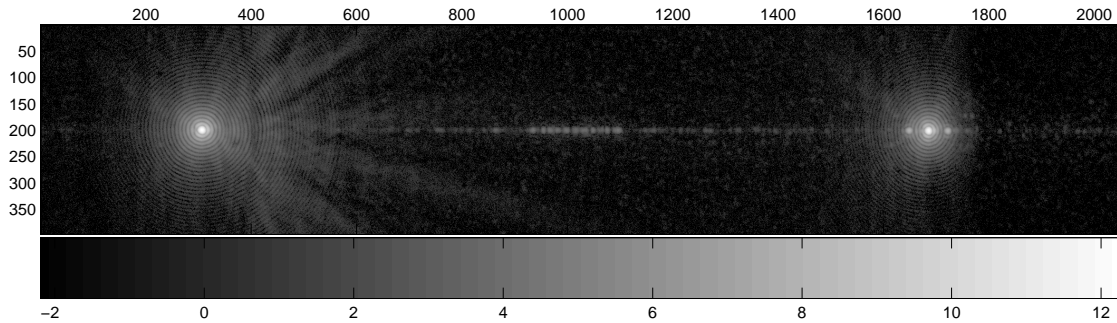


FIG. 7.4 – Diffraction magnétique cohérente des nanolignes en géométrie perpendiculaire (échelle d'intensité logarithmique, la figure est couchée pour des raisons de mise en page).

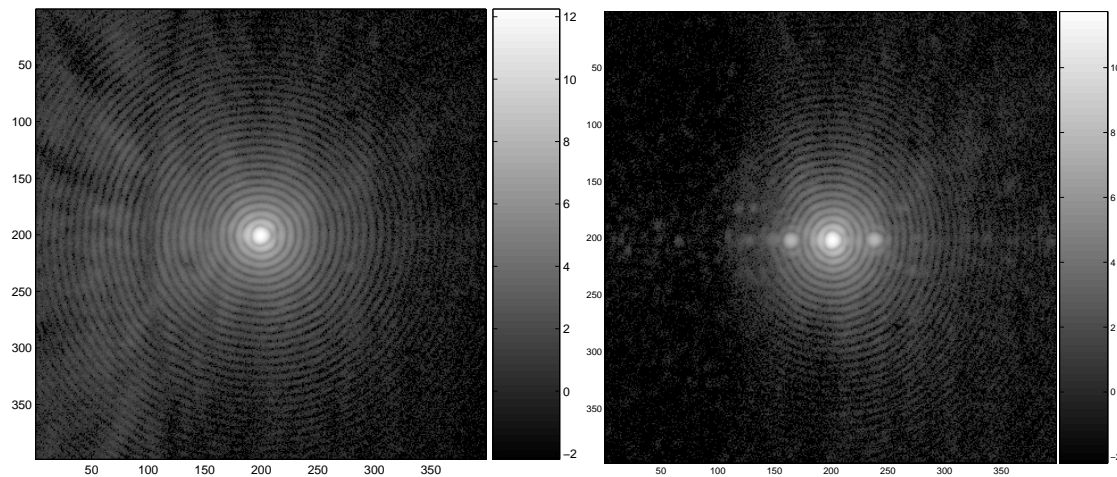


FIG. 7.5 – Détail du pic spéculaire (à gauche) et du pic de surstructure (à droite).

Les anneaux distincts autour des deux pics sont le signe d'une bonne cohérence et d'un diaphragme de très bonne qualité (Fig. 7.5).

On remarque la présence de deux satellites de part et d'autre du pic de surstructure (Fig. 7.5 et 7.8 gauche). Ces satellites sont trop intenses et trop réguliers pour être liés à la structure magnétique de l'échantillon, et ils ne disparaissent pas hors seuil de résonance. Ces pics correspondent à une surstructure du réseau, c'est-à-dire à une modulation de période bien plus grande que la période des nanolignes. L'écart entre le pic spéculaire et le pic de surstructure est de 1378 pixels, et l'écart entre le pic de surstructure et chacun de ses satellites est de 35.5 pixels. La période des nanolignes étant de 175 nm, on en déduit que la période de cette modulation est de $6.8 \mu\text{m}$, soit environ 39 nanolignes. La qualité de ces pics permet d'affirmer que cette période est liée au procédé de fabrication des nanolignes. En effet, la gravure des lignes est réalisée par zone. Le raccord entre zones peut être imparfait, et ce défaut de raccord, dû aux machines, est extrêmement périodique. Cela n'échappe pas aux rayons X mous cohérents, qui éclairent dans

cette géométrie plusieurs centaines de lignes, et révèlent l'existence de cette périodicité, alors qu'on peut difficilement l'observer en microscopie de champ proche (Fig. 7.1).

Cet exemple simple monte l'efficacité de la diffraction cohérente de rayons X mous pour étudier des structures qui intéressent particulièrement les industriels de la microélectronique.

7.2.2 Observation de l'ordre antiferromagnétique

Au seuil L_3 du Cobalt, la multicouche de Co/Pt diffracte une amplitude magnétique directement liée à l'ordre magnétique de l'échantillon. Cet ordre est essentiellement antiferromagnétique et produit en diffraction incohérente un pic de surstructure d'ordre 1/2 que l'on peut observer à la photodiode [59].

La cohérence du faisceau et la bonne résolution des caméras CCD permettent d'observer la structuration en speckles du pic antiferromagnétique, que l'on doit à l'imperfection de l'ordre antiferromagnétique [95]. Ces speckles s'observent en géométrie transverse (Fig. 7.4) comme en géométrie longitudinale (Fig. 7.6). La suite de l'étude concerne uniquement la géométrie longitudinale.

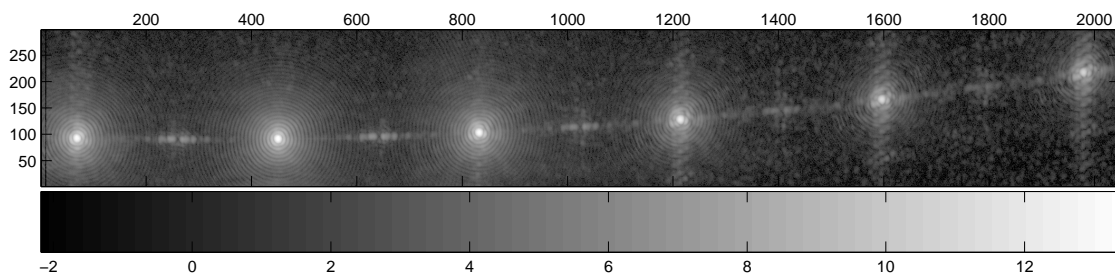


FIG. 7.6 – Spectre de diffraction magnétique cohérente en géométrie longitudinale.

Les traînées verticales que l'on observe sur le pic spéculaire et les pics de surstructure montrent que l'onde incidente éclaire en partie le bord de l'échantillon. En effet, nous avons choisi une zone proche d'un coin de la zone gravée de $2\text{ mm} \times 2\text{ mm}$ pour nous repérer précisément sur l'échantillon et pouvoir observer la même zone en diffraction magnétique cohérente et en MFM. Ce positionnement est néanmoins suffisamment loin des bords pour que les effets de bord soient faibles sur la partie magnétique et que la partie principale de l'onde éclaire une zone sans défaut structurel, excepté le défaut périodique mis en évidence plus haut. Dans cette géométrie, les satellites associés à ce défaut périodique sont séparés des pics de surstructure par 9 pixels environ. Ils se confondent avec le premier anneau de diffraction associé au diaphragme et peuvent contribuer à la distortion de ces premiers anneaux, alors que les anneaux plus éloignés semblent d'aussi bonne qualité que ceux du pic spéculaire (Fig. 7.7).

Hormis les traînées sur le spéculaire et sur les pics de surstructure, la répartition d'intensité est unidimensionnelle, à la courbure de la sphère d'Ewald près (Fig. 7.6), ce qui confirme que le système est uniforme dans sa direction longitudinale et en particulier que les nanolignes sont principalement monodomaines.

7.2.3 Evolution sous champ magnétique perpendiculaire

L'électroaimant que nous avons installé sur le diffractomètre d'ID08 (cf. §5.4) permet d'appliquer un champ perpendiculaire jusqu'à 2 kOe sur l'échantillon, s'il est placé à moins de 2

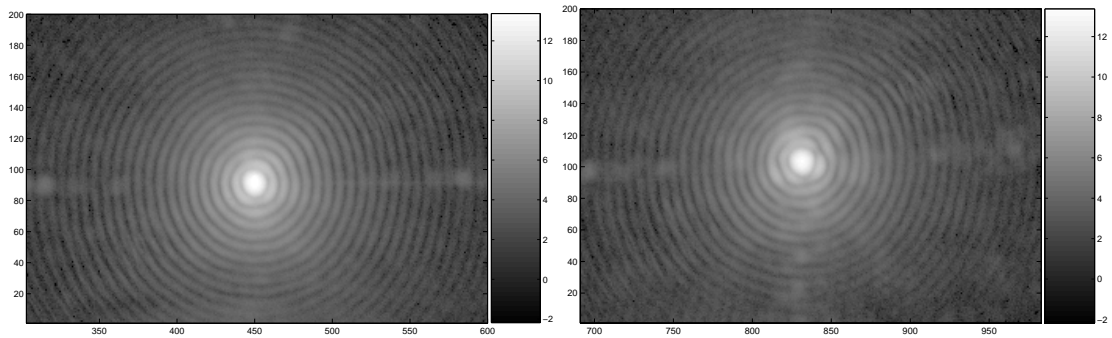


FIG. 7.7 – Détail du pic spéculaire (à gauche) et du pic de surstructure d'ordre 1 du réseau (à droite).

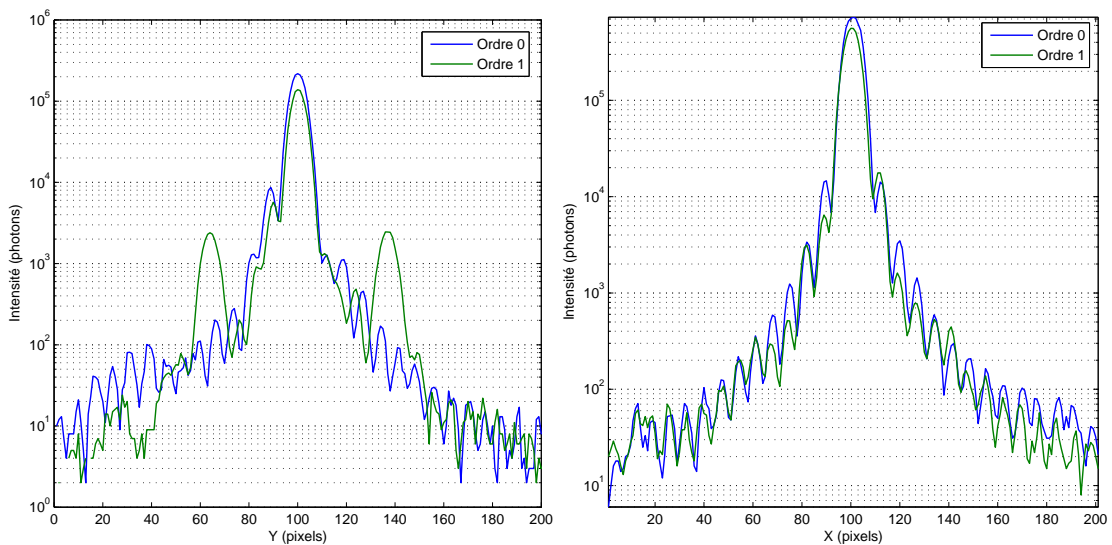


FIG. 7.8 – Coupes à travers les pics d'ordre 0 (en bleu) et 1 (en vert) dans les géométries transverse (à gauche) et longitudinale (à droite). Les satellites que l'on observe en géométrie transverse ne sont pas visibles en géométrie longitudinale.

millimètres de sa surface. C'est suffisant pour saturer cet échantillon.

Ce champ ne peut pas être maintenu plus de quelques secondes à cause de l'échauffement, et ce temps est trop court pour faire une acquisition de speckles magnétiques. Comme la rémanence de la multicouche Co/Pt est forte, on peut considérer que l'état observé après une impulsion de champ est très proche de celui sous champ.

Nous avons donc parcouru des cycles d'aimantation et observé l'évolution des speckles magnétiques. Comme les speckles sont directement liés à la configuration magnétique du système, on observe ainsi l'évolution du système.

En partant de l'état initial (Fig. 7.3), on applique des impulsions de champ d'intensité croissante. La figure de speckles demeure extrêmement stable jusqu'à ce qu'on atteigne le champ coercitif. La figure de speckles est d'abord largement modifiée, puis disparaît progressivement avec l'augmentation d'intensité des impulsions de champ. La disparition des speckles signifie que l'échantillon est saturé : les macrospins suivent un ordre ferromagnétique, ce qui implique

que la périodicité des moments magnétiques est identique à celle des nanolignes. En appliquant des impulsions croissantes de champ opposé, les speckles réapparaissent à des champs proches du champ coercitif et disparaissent quand l'échantillon est saturé en sens opposé.

Pour avoir un point de vue global sur le système, on peut intégrer l'intensité des speckles dans une région de l'espace réciproque où l'intensité structurale reste négligeable. Comme l'a montré Karine Chesnel [59], l'intensité intégrée des satellites permet de suivre le retournement d'aimantation (Fig. 7.9).

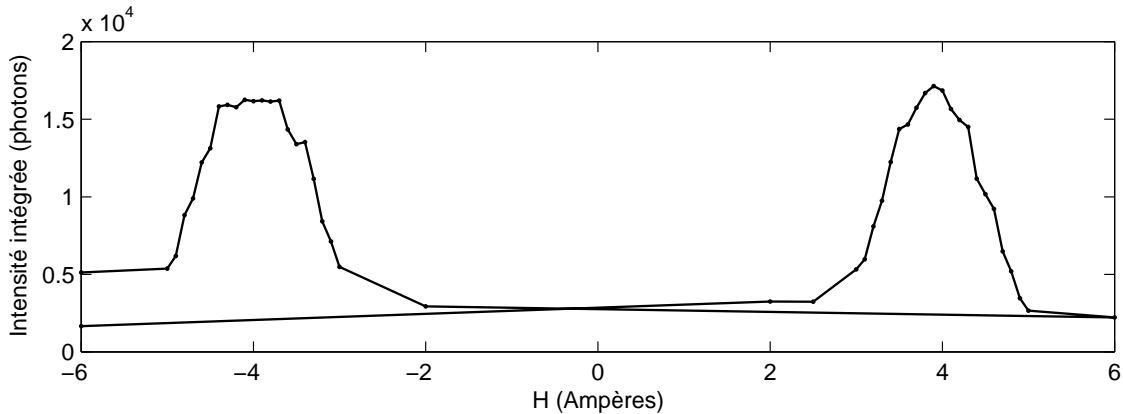


FIG. 7.9 – Intensité intégrée des speckles magnétiques entre le pic spéculaire et le pic d'ordre -1 au cours d'un cycle majeur d'aimantation.

Il est difficile de connaître avec précision l'intensité du champ appliqué, car elle dépend fortement de la distance entre l'électroaimant et l'échantillon, que nous avons estimée à 2 ± 0.5 mm. A cette distance, nous avons observé la transition de configuration de speckles correspondant au champ coercitif pour un courant de 4 Ampères environ. Etant donné les courbes de calibration de l'électroaimant (Fig. 5.5), on estime que le champ coercitif des nanolignes est de 1 ± 0.25 kOe, alors que le champ coercitif de la multicouche continue est de l'ordre de 0.25 kOe (Fig. 7.2). Cette augmentation de la coercivité due à la nanostructuration est bien connue [108].

Les premiers speckles apparaissent vers 3 Ampères et les derniers disparaissent vers 5 Ampères. La largeur à mi-hauteur du pic magnétique (Fig. 7.9) est estimée à 1 Ampère, soit environ 0.2 à 0.3 kOe. La structure des speckles évolue au cours du retournement progressif de l'aimantation des nanolignes (Fig. 7.10).

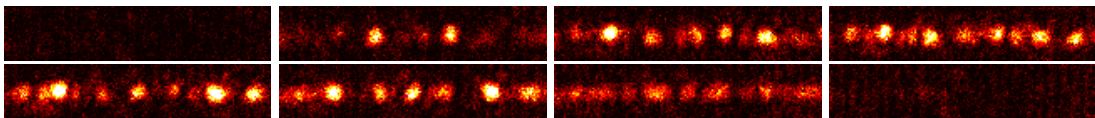


FIG. 7.10 – Evolution des speckles au cours d'un retournement d'aimantation de l'échantillon (le champ augmente de gauche à droite et de haut en bas de 2 Ampères à 5 Ampères).

7.2.4 Observation de la mémoire magnétique

Nous avons effectué plusieurs cycles majeurs d'aimantation, et nous avons remarqué que les speckles évoluaient selon des configurations relativement différentes d'un cycle à l'autre.

La Figure 7.11 montre différentes figures de speckles observés au champ coercitif (4 Ampères) après saturation. La procédure est la suivante : l'échantillon est d'abord saturé, toujours dans le même sens, par une impulsion de -6 Ampères, puis une impulsion de 4 Ampères est appliquée à l'échantillon et la figure de speckles est mesurée. On constate que les configurations de speckles obtenues sont très différentes à chaque passage, ce qui montre que les lignes se retournent selon un ordre peu reproductible.

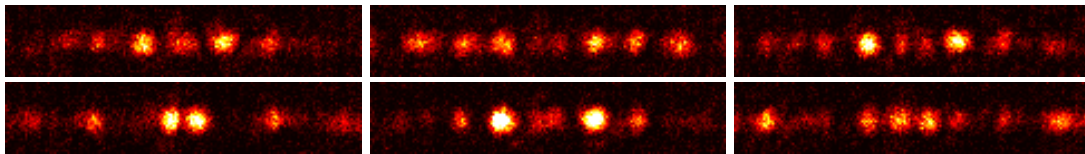


FIG. 7.11 – Différentes figures de speckles observées au champ coercitif après saturation de l'échantillon. L'échelle d'intensité, linéaire, est identique sur les 3 figures. Les pixels les plus intenses portent entre 50 et 60 photons. Chaque figure comprend environ 15000 photons au total.

Nous avons aussi mesuré des boucles mineures. Sur la Figure 7.12, nous présentons les figures de speckles obtenues en passant directement d'un champ coercitif à l'autre, sans saturer l'échantillon. On remarque que les speckles mesurés à un champ coercitif sont remarquablement stables, malgré le passage intermédiaire par l'autre champ coercitif. Cela signifie que les nanolignes reviennent toujours dans la même configuration, ou du moins dans des configurations très semblables. En revanche, les états correspondant à chacun des deux champs coercitifs sont différents.

Cette remarquable stabilité des speckles observés durant cette procédure confirme par ailleurs que la diversité des figures observées après saturation de l'échantillon n'est pas due à une dispersion de l'intensité du champ appliqué par l'électro-aimant.

Cette observation caractérise la mémoire magnétique du système : celui-ci garde une mémoire de son état coercitif, malgré les changements de configuration, tant qu'il n'est pas saturé.

Ce résultat, important pour ces implications en terme de stockage magnétique, confirme l'efficacité de la diffraction magnétique cohérente pour suivre l'évolution de systèmes magnétiques et caractériser leur mémoire. Sur ce point, on peut se référer aux belles études de Pierce *et al*, qui caractérisent la mémoire magnétique de multicouches de Co/Pt déposées sur substrats continus [96, 97].

7.3 Essai de reconstruction

Les nanolignes magnétiques telles que celles que nous étudions ici forment un système très favorable pour essayer de reconstruire la configuration réelle des domaines à partir de leur spectre de diffraction magnétique cohérente. En effet, elles forment un système presque parfaitement périodique et unidimensionnel, et leur aimantation peut être considérée comme un macro-spin qui ne peut être que saturé dans un des deux sens de la direction perpendiculaire à la couche. On peut donc modéliser ce système par un problème à n inconnues (m_j) qui ne peuvent prendre que les valeurs -1 et 1.

La reconstruction n'est possible que si les conditions de suréchantillonnage sont remplies : la détection doit assurer un échantillonnage suffisamment fin pour permettre la reconstruction de

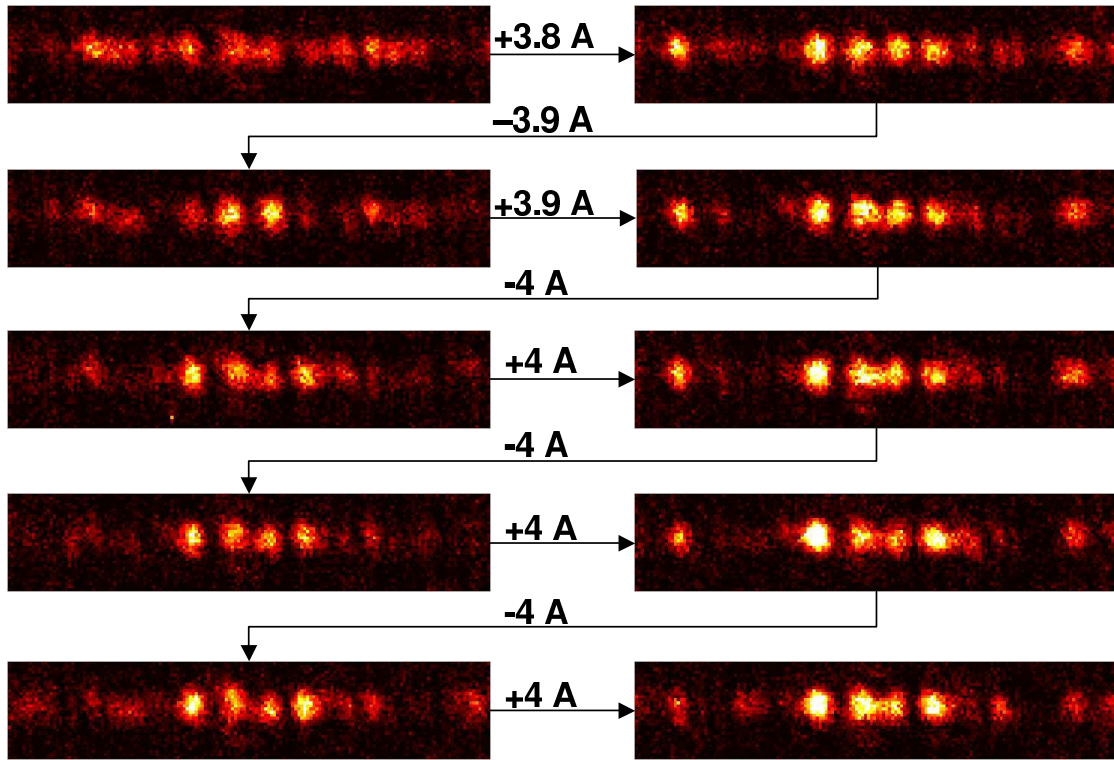


FIG. 7.12 – Figures de speckles observées en passant d'un champ coercitif à un autre. (Echelle d'intensité identique à celle de la Figure 7.11)

tout l'objet diffractant. De plus, le spectre enregistré doit être suffisamment large pour pouvoir accéder à la résolution de reconstruction que nous souhaitons, à savoir la nanoligne (175 nm). Notre camera CCD, située à $D \approx 560$ mm de l'échantillon, possède en largeur $N = 2048$ pixels de $t = 13.5\mu\text{m}$ de côté. Sans suréchantillonnage, la gamme de longueur Δx qui nous est accessible est donc :

$$\Delta x_{max} < \frac{\lambda D}{t \cos \theta_0} \approx 68\mu\text{m} \quad (7.1)$$

$$\Delta x_{min} > \frac{\lambda D}{Nt \cos \theta_0} \approx 33\text{nm} \quad (7.2)$$

Cela veut dire qu'un suréchantillonnage d'un facteur 2 serait déjà obtenu avec un échantillon de taille $\Delta x_{max} \approx 30\mu\text{m}$. La taille de notre diaphragme ($10\mu\text{m}$) nous permet de satisfaire largement ce critère. D'autre part, la distance entre deux nanolignes ($175\mu\text{m}$) est largement supérieure à Δx_{min} . Une autre manière de considérer le problème est de noter que l'on a 392 pixels entre deux pics de surstructure. La condition de suréchantillonnage autorise donc la reconstruction d'une configuration de 196 nanolignes.

Modélisation de l'intensité

La possibilité de reconstruire la configuration magnétique du système repose sur la qualité du modèle utilisé pour décrire la diffraction magnétique cohérente. Dans le cas que nous étudions ici, les speckles sont répartis sur la courbe définie par $q_y = 0$, ce qui confirme que les lignes sont monodomains. On peut donc se ramener à une description unidimensionnelle de la diffraction

magnétique cohérente, en intégrant selon l'axe d'invariance la contribution de l'onde réfléchi sur l'échantillon (cf. Annexe B.3). L'intensité diffractée s'écrit alors :

$$I_k = \left| \sum_{j=1}^n A_x(x_j) L(q_k) f_j(m_j) e^{iq_k x_j} \right|^2 \quad (7.3)$$

q_k est la composante q_x du vecteur de diffusion au pixel k . La composante q_y est nulle sur l'intersection du plan du détecteur avec la sphère d'Ewald. $L(q_k)$ est la fonction de forme des lignes couvertes de Co/Pt. Elle est peu aisée à calculer, car la section des lignes n'est pas exactement rectangulaire, et la multicouche modifie son aspect. Comme elle est à variation lente par rapport aux speckles, nous l'avons approximée par un sinus cardinal, qui est la transformée de Fourier d'une section rectangulaire, dont la période est ajustée pour reproduire au mieux l'intensité des pics de surstructure du réseau.

A_x est l'amplitude complexe de l'onde, intégrée dans la direction y . Son expression est donné dans l'Annexe B.3 (Equ. B.36, notée A''). Le diaphragme est considéré comme parfaitement circulaire, ce qui semble être une bonne approximation au vu des anneaux de diffraction. Le diamètre nominal du diaphragme est $2a \approx 10\mu\text{m}$ et sa distance à l'échantillon a été évaluée à $d \approx 7 \pm 0.5$ mm. On est ici proche d'une situation de champ proche ($\eta = \lambda d/a^2 \approx 0.1$) mais les variations spatiales de l'amplitude de l'onde sont encore suffisamment marquées pour imposer un calcul numérique précis (Equ. B.21). Elle est en l'occurrence assez sensible aux valeurs exactes de a et d , mais cette sensibilité est largement atténuée par l'intégration dans la direction y (cf. §B.3).

La fonction A_x , calculée avec les paramètres énoncés ci-dessus, est présentée Figure 7.13. Cette modélisation montre que l'amplitude de l'onde atteint 1% de son maximum à environ $20\mu\text{m}$ (≈ 114 nanolignes) de son centre.

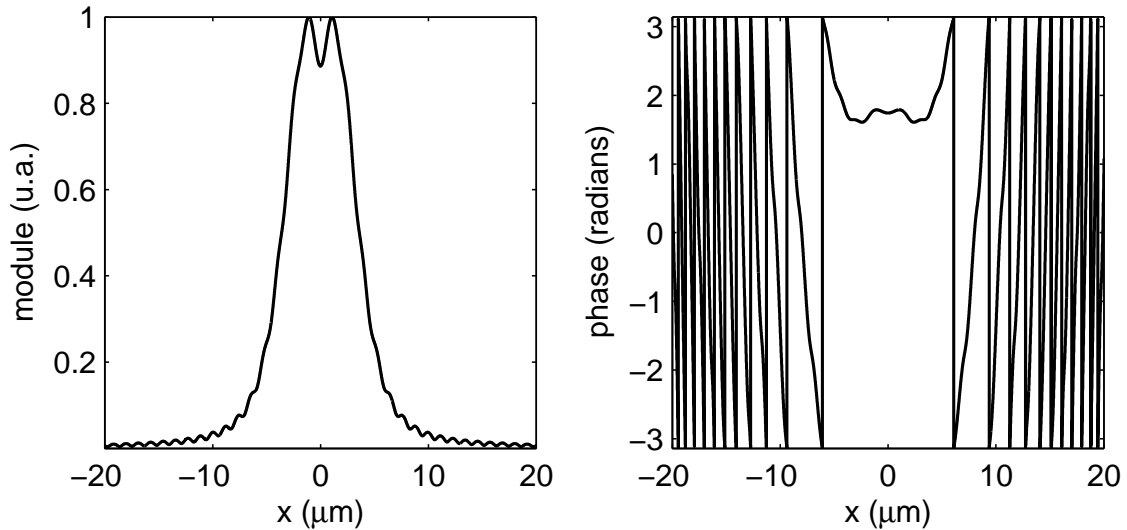


FIG. 7.13 – Fonction A_x , en module et en phase.

Afin de traiter convenablement les inconnues magnétiques, il faut d'abord reproduire correctement la diffraction due à la structure du réseau. On ajuste ainsi précisément les paramètres géométriques :

- La distance D entre l'échantillon et le détecteur est ajustée par la périodicité des pics de surstructure, en nous référant à la période nominale des nanolignes. Cette valeur nomi-

nale a pu être vérifiée par microscopie électronique et diffraction de rayons X mous en géométrie perpendiculaire. On trouve $D = 566.3$ nm

- L'angle de réflexion θ est ajusté par la courbure de la sphère d'Ewald : $\theta = 15^\circ$
- Le diamètre $2a$ du diaphragme est ajusté par ses franges de diffraction : $2a = 9.5 \pm 0.5 \mu\text{m}$

Avec ces paramètres on reproduit convenablement la diffraction cohérente du réseau (Fig. 7.14).

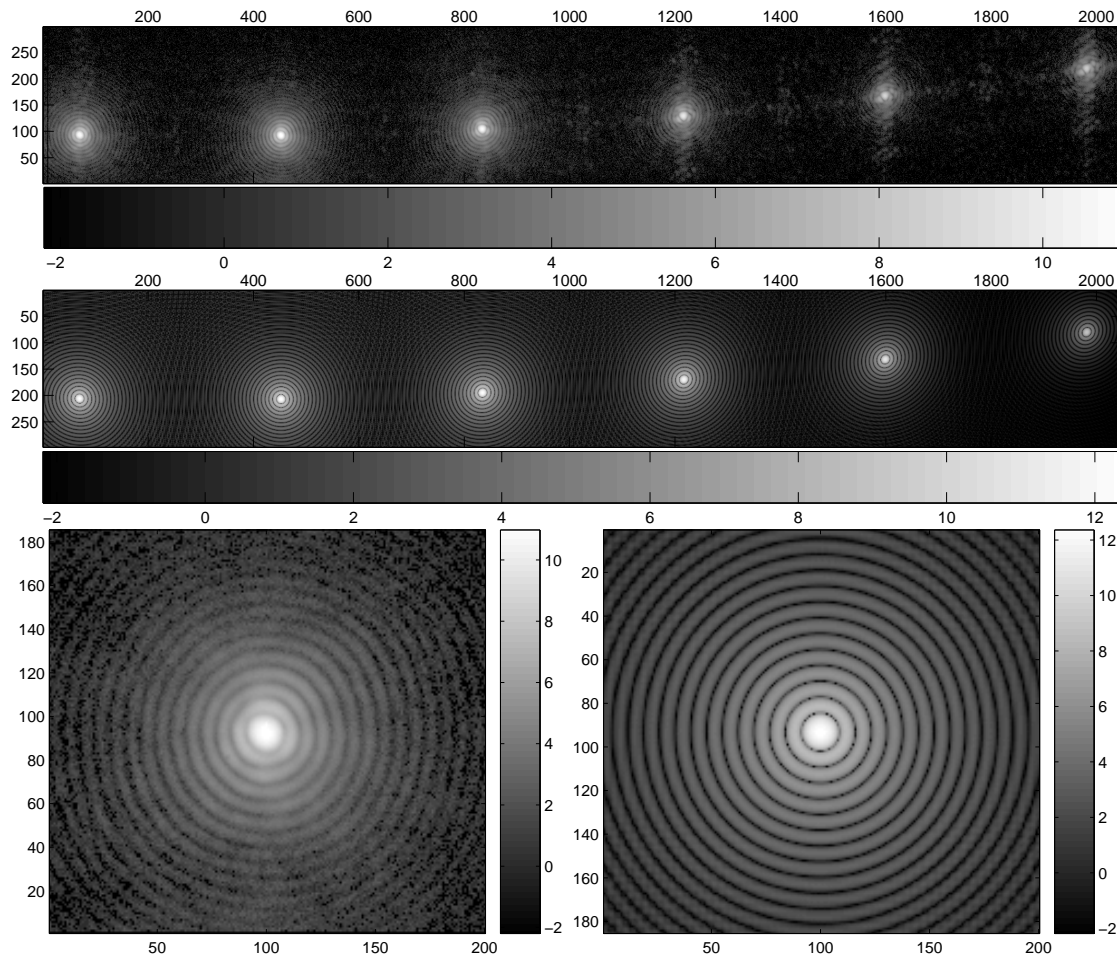


FIG. 7.14 – Diffraction cohérente du réseau de nanolignes : figure expérimentale mesurée avec l'échantillon saturé (en haut) et simulation en ne considérant que la structure du réseau. En bas, détail du pic spéculaire (expérience à gauche et simulation à droite).

Monte Carlo par recuit simulé

Ce type de problème avec un nombre fini d'inconnues qui varient dans un ensemble discret est généralement bien traité par des algorithmes de type Monte Carlo. La méthode que nous avons utilisée est de type monte carlo avec recuit simulé [109].

Dans cette méthode, on se réfère à un critère d'erreur ΔE qui sera discuté plus loin. Ce critère quantifie la différence entre l'ensemble des intensités expérimentales I_k^0 et l'ensemble des intensités simulées I_k sur les pixels k d'une région choisie de l'espace réciproque. Comme le système est considéré comme unidimensionnel, nous n'avons pris en compte que les pixels du

détecteur situés sur la sphère d'Ewald.

A partir d'une configuration magnétique (m_j) initiale, l'aimantation d'une nanoligne j est choisie au hasard et retournée à chaque itération de l'algorithme. Si le critère d'erreur χ^2 diminue, la nouvelle configuration est gardée. S'il augmente, il existe une probabilité que la nouvelle configuration ne soit pas rejetée. Cette probabilité dépend d'une température fictive T selon une loi d'Arrhenius :

$$p[(m_j) \rightarrow (m'_j)] = \exp\left(-\frac{\Delta E}{k_B T}\right) \quad (7.4)$$

Cette probabilité non-nulle permet à l'algorithme d'échapper aux minima locaux.

La température décroît au fur et à mesure des itérations, et entraîne avec elle les probabilités de transition vers un état magnétique de plus haute énergie. Quand l'état magnétique ne change plus pendant un certain nombre d'itérations, on considère que l'algorithme a convergé. Cette convergence est très dépendante du critère d'erreur et de la manière dont la température décroît.

Le modèle que nous avons adopté pour simuler la décroissance de la température est une loi de puissance : $T_n = T_0 \alpha^n$, où $\alpha < 1$ détermine la vitesse du refroidissement.

Enfin le critère choisi est le critère suivant :

$$E = \sum_k \frac{|I_k - I_k^0|}{I_k^0 + .1} \quad (7.5)$$

Ce critère n'est pas aussi satisfaisant sur le plan théorique qu'un critère de maximum de vraisemblance au sens de Poisson, qui s'exprime comme :

$$E = \sum_k (I_k - I_k^0 \log I_k) \quad (7.6)$$

Ce critère suppose que la seule source de bruit de la mesure est le bruit de Poisson, ce qui est probablement notre cas. Il attribue donc un poids fort aux mesures de forte intensité. Dans notre cas, les pixels de forte intensité décrivent la diffraction du réseau de lignes et non les speckles magnétiques, qui sont moins intenses par 3 ordres de grandeur. Ainsi, si le modèle utilisé ne reproduit pas exactement les pics de surstructure, le critère d'erreur de Poisson force la configuration magnétique à les reproduire au mieux, au détriment des speckles. L'algorithme converge alors vers une solution complètement erronée.

Au contraire, le critère que nous avons utilisé ne donne pas trop de poids aux fortes intensités, mais en donne trop aux pixels de très faible intensité. Nous avons pu vérifier que ce critère permettait à l'algorithme de converger vers des configurations plus raisonnables que le critère de Poisson.

Résultats et discussion

Nous avons vu dans le chapitre §3.2.2 que la diffraction magnétique en géométrie de réflexion n'est *a priori* pas centro-symétrique par rapport au pic spéculaire, mais que dans de nombreux cas, l'écart est assez faible. En l'occurrence, la figure de diffraction que nous étudions ici est assez symétrique. Nous avons donc préféré ne considérer qu'un des deux côtés du pic spéculaire. De plus, comme on ne reproduit pas très bien le facteur de structure des nanolignes, il est préférable de s'intéresser à une région assez limitée de l'espace réciproque.

Nous avons donc essayé une reconstruction en ne tenant compte que de la partie de l'espace réciproque située entre le pic spéculaire et l'un des pics de surstructure d'ordre 1. Dans cette région, on ne prend en compte que les pixels situés sur la sphère d'Ewald, car on ne s'intéresse

qu'à la diffusion à $q_y = 0$. On dispose ainsi de 392 pixels. Les conditions d'échantillonnage limitent donc la reconstruction au mieux à 196 lignes. En n'en prenant que 128, on ne perd qu'une faible partie de l'amplitude diffusée par le diaphragme (Fig. 7.13), mais on renforce les contraintes sur la configuration magnétique.

Lorsque les paramètres de l'algorithme sont bien réglés, celui-ci converge vers une configuration magnétique qui reproduit assez bien la figure de diffraction magnétique (Fig. 7.15).

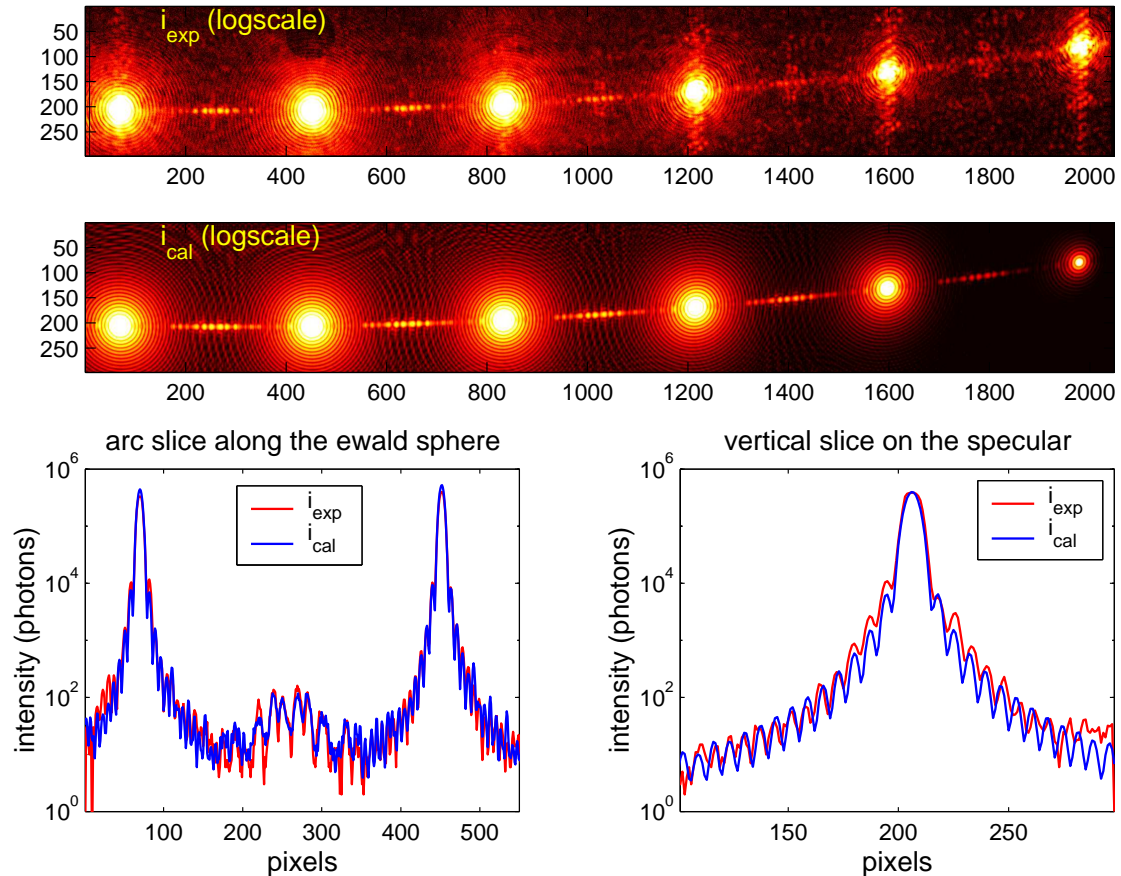


FIG. 7.15 – Figures de diffraction magnétique cohérente expérimentale (en haut) et simulée (dessous). En bas à gauche, profil d'intensité expérimentale et simulée entre le pic spéculaire et le pic de surstructure d'ordre -1 (celui à gauche du spéculaire sur les figures entières). En bas à droite, coupe verticale le long du spéculaire. L'asymétrie dans la forme du spéculaire n'est pas rendue par la simulation.

La configuration magnétique ainsi obtenue est souvent assez vraisemblable, si l'on s'en réfère la densité de défauts d'alternance observée sur les images MFM (de l'ordre de 3 défauts pour 20 lignes). Mais l'algorithme converge également parfois vers certaines configurations peu vraisemblables selon ce critère. En outre, les configurations vraisemblables qui reproduisent assez bien les speckles observés sont nombreuses.

En conclusion, notre modèle de diffraction magnétique cohérente permet de reproduire la figure des nanolignes : les pics de surstructure, la courbure de la sphère d'Ewald et les franges de diffraction du diaphragme sont assez bien reproduites. En utilisant un algorithme de monte carlo

avec recuit simulé, on reproduit également bien la figure de speckles. Cependant, cet algorithme ne nous permet pas dans l'état actuel des choses d'identifier une solution unique. Au lieu de cela, un grand nombre de configurations magnétiques plus ou moins vraisemblables reproduisent assez bien la figure de speckles.

On peut penser qu'une étude statistique des propriétés des solutions de l'algorithme doit permettre d'identifier des arrangements plus probables parmi les solutions. Cela nécessite de bien caractériser l'espace topologique des configurations magnétiques dans la norme définie par le critère d'erreur. Une telle étude a été amorcée, mais n'est actuellement pas assez avancée pour permettre des conclusions.

Par ailleurs, ces difficultés algorithmiques peuvent probablement être levées en modifiant le critère d'erreur et en y injectant des informations connues *a priori* sur le système, par exemple la densité de défauts d'alternance.

Au delà des difficultés algorithmiques, il semble que le problème principal de cette méthode soit le processus d'interférence entre la partie de charge et la partie magnétique du facteur de diffusion atomique. En effet, le rapport entre ces deux parties varie très vite en module et en phase autour du seuil de résonance (cf. Fig. 3.4). De plus, ce système ne permet pas une séparation efficace des deux contributions dans l'espace réciproque, contrairement aux couches minces, qui n'induisent pas de pics de surstructure. Une méthode possible pour séparer la contribution de la charge serait de faire la mesure en polarisation incidente σ , qui découple la contribution de la charge et du magnétisme. Une mesure hors seuil permettrait alors de connaître la contribution de la charge.

Eisebitt *et al* [101] ont montré une manière élégante de séparer les deux contributions et de s'affranchir des difficultés algorithmiques : par une méthode holographique, ils mesurent directement l'amplitude de l'onde diffusée et peuvent en extraire la partie magnétique en inversant la polarisation circulaire, grâce aux propriétés du dichroïsme. Une simple Transformée de Fourier donne alors l'image du système. Néanmoins, cette méthode nécessite une préparation adéquate de l'échantillon qui n'est pas adaptable aux systèmes nanostructurés que nous étudions. Pour cette raison, et parce que les media nanostructurés sont parmi les meilleurs candidats à l'utilisation industrielle à l'enregistrement magnétique, notre approche discrète par Monte Carlo mérite d'être approfondie.

7.4 Conclusion et perspectives sur la diffraction magnétique cohérente

Suite aux premières expériences de diffraction magnétique cohérente de notre équipe, nous avons obtenu de l'ESRF de développer cette technique dans le cadre d'un projet à long terme. Ce projet, mené sur la ligne ID08, nous a permis d'avancer sur plusieurs aspects :

1. D'un point de vue instrumental, nous avons développé un dispositif complet et modulable. Un effort particulier a été fait sur la manière d'amener un diaphragme devant l'échantillon, le plus près possible, avec une grande stabilité, avec deux translations permettant de le positionner précisément. Nous avons caractérisé la nouvelle caméra CCD de nos collaborateurs anglais. Celle-ci s'est avérée tout à fait adaptée à ce type d'expériences, grâce à sa grande efficacité quantique, son faible niveau de bruit, et sa bonne résolution. En outre, notre traitement numérique de l'intensité enregistrée permet de compter des photons un par un dans les zones de faible taux de comptage, sans pour autant distordre la dynamique

de l'image. Mentionnons aussi l'électroaimant, qui permet d'appliquer jusqu'à 2 kOe de champ perpendiculaire par impulsions, et qui a depuis été utilisé sur d'autres lignes et par d'autres utilisateurs.

2. Nous avons défini des méthodes pour caractériser le degré de cohérence du faisceau et comparer des figures de speckles. Les fonctions d'autocorrélation et de corrélation mutuelle s'avèrent les outils les plus efficaces à ces fins.
Nous avons ainsi caractérisé la cohérence lors de nos mesures, et remarqué que le degré de cohérence était assez médiocre par rapport à ce qu'on peut attendre de ce type d'expériences, particulièrement avec des rayons X mous. Des doutes demeurent quant à la qualité de l'optique de la ligne pour de telles applications.
3. Nous avons caractérisé le retournement de nanolignes à aimantation perpendiculaire et observé la mémoire magnétique du système.
4. Nous avons développé des méthodes de simulation et soulevé l'importance du champ d'onde diffusé par le diaphragme. Il apparaît qu'une caractérisation précise de la forme et de la taille du diaphragme, ainsi que de sa distance à l'échantillon, sont nécessaires pour modéliser correctement l'onde diffusée.
5. Nous avons développé un algorithme de Monte Carlo avec recuit simulé dans le but de reconstruire l'image d'une configuration magnétique simple. Nous avons identifié plusieurs difficultés. L'une d'elle est algorithmique : le critère d'erreur utilisé définit un espace des solutions relativement dense. Ce problème peut sûrement être levé en injectant dans le critère d'erreur des informations connues *a priori*. L'autre difficulté est l'identification de la contribution de la charge, qui pourrait être levée en polarisation σ .

Quel que soit l'objectif particulier de chaque expérience, il est permis de penser que la diffraction magnétique cohérente est promise à un brillant avenir grâce au développement des sources laser à électron libre, qui fourniront un faisceau intense et très cohérent.

Conclusion générale

J'ai voulu montrer dans ce mémoire que la diffraction magnétique résonante des rayons X mous (SXRMS) est un formidable outil pour étudier la configuration magnétique de systèmes complexes.

Quand tout le faisceau incohérent est utilisé, elle apporte des informations sur les propriétés moyennes des échantillons.

Nous avons vu que, dans le cas d'échantillons périodiques, elle donnait accès à la périodicité. Avec un détecteur bidimensionnel, on peut de plus observer des domaines non alignés et étudier leur anisotropie. Utilisée ainsi, la SXRMS est complémentaire de la Microscopie à Force Magnétique, qui fournit une mesure locale. Les cas traités dans ce manuscrit concernaient des domaines périodiques, mais la SXRMS peut être étendue à d'autres configurations de domaines. Récemment, des domaines à dimension fractale ont été observés dans l'alliage $L1_0$ FePt [110]. La SXRMS est tout à fait applicable à de tels systèmes, et permettrait une mesure de la dimension fractale des domaines.

Au delà de la simple observation de domaines magnétiques, on a vu que la SXRMS permettait l'analyse de configurations magnétiques périodiques dans le volume. C'était déjà bien établi en ce qui concerne la réflectivité spéculaire magnétique, qui permet de déterminer le profil en profondeur des composantes constantes de l'aimantation. Dans ce document, j'ai montré que la mesure et la modélisation de tiges magnétiques permettaient d'étudier le profil en profondeur des composantes périodiques. Le modèle que j'ai développé pour les composantes périodiques d'ordre 1 est applicable aux ordres supérieurs, si l'on parvient à les mesurer. En associant réflectivité magnétique et tiges magnétiques, on obtient une bonne représentation de la configuration de l'échantillon. Dans un matériau avec différents éléments magnétiques, on peut également profiter de la sélectivité chimique pour multiplier les informations.

Ces possibilités en faisceau incohérent sont applicables à une large gamme d'échantillons. Les échelles de taille concernées s'étendent de quelques nanomètres à quelques microns, la profondeur étant elle limitée par l'absorption à quelques dizaines de nanomètres. Quelle que soit la configuration des domaines magnétiques, si leur taille est dans la gamme que nous venons de définir, l'information magnétique doit être mesurable. Son extraction nécessite une modélisation plus ou moins compliquée : celle que nous avons présentée convient bien pour des structures périodiques. Pour d'autres arrangements moins favorables, on utilisera un modèle plus sophistiqué, par exemple l'approximation de Born de l'onde distordue (DWBA) [72, 73].

La SXRMS en faisceau incohérent est donc un formidable outil pour explorer le magnétisme de configurations complexes, tant en surface que dans le volume de couches minces.

En filtrant le faisceau de rayonnement synchrotron pour en extraire une partie cohérente, et avec une bonne résolution de détection, on accède non plus à la moyenne des propriétés, mais au détail de l'arrangement des moments magnétiques. On peut alors observer les processus

locaux à travers les fluctuations d'intensité. Nous l'avons vu en observant la mémoire magnétique de nanolignes à aimantation perpendiculaire. Cet exemple concernait un système relativement simple, mais d'autres systèmes plus complexes peuvent être traités par cette méthode [107, 96, 97].

En étudiant ces nanolignes, nous avons mis en évidence un défaut périodique de gravure. Cet exemple prouve l'utilité de la diffraction cohérente de rayons X pour caractériser des nanostructures, même si elles ne sont pas magnétiques.

J'ai également étudié la possibilité de reconstruire la configuration magnétique exacte de ce système simple. Mes tentatives n'ont pas abouti à une solution identifiable clairement parmi les configurations possibles, mais il est certain que ces difficultés algorithmiques seront surmontées. La possibilité d'étudier des systèmes plus complexes, avec des domaines de forme non définie, ne dépend que du développement d'algorithmes adaptés.

En combinant les aspects de cohérence et d'analyse dans le volume, on peut espérer reconstruire une configuration magnétique exacte dans le volume. D'un point de vue expérimental, cela nécessite des mesures à différents angles d'incidence. Ce type d'étude existe déjà pour la densité électronique. Nul doute que l'application au magnétisme suivra.

Ces aspects, tant en ce qui concerne les fluctuations d'intensité que la reconstruction de configurations magnétiques, sont actuellement limités en dynamique par le temps d'acquisition de chaque image : en effet, en filtrant le faisceau, on n'extrait qu'une portion infime de l'intensité disponible (environ $1/100000^{\text{e}}$ dans notre cas), ce qui réduit considérablement le signal de diffraction magnétique. Dans les images de diffraction magnétique cohérente des nanolignes, le taux de comptage sur les speckles magnétiques étaient de l'ordre de 1 photon par pixel en 5 secondes ! Dans ces conditions, il est certain que les sources lasers à électrons libres vont apporter un progrès considérable, en délivrant un faisceau intense très cohérent. Il faudra également améliorer la technologie des détecteurs bidimensionnels, pour obtenir une dynamique plus grande et une lecture plus rapide.

On pourra alors envisager de suivre l'évolution dynamique en trois dimensions de systèmes magnétiques.

Annexe A

Aspects géométriques

Nous allons définir ici les notations qui seront utilisées dans tout le manuscrit.

Nous nous plaçons dans le cas idéal d'un faisceau parfaitement monochromatique, à divergence nulle, dont on observe la diffusion élastique par un échantillon parfaitement plat.

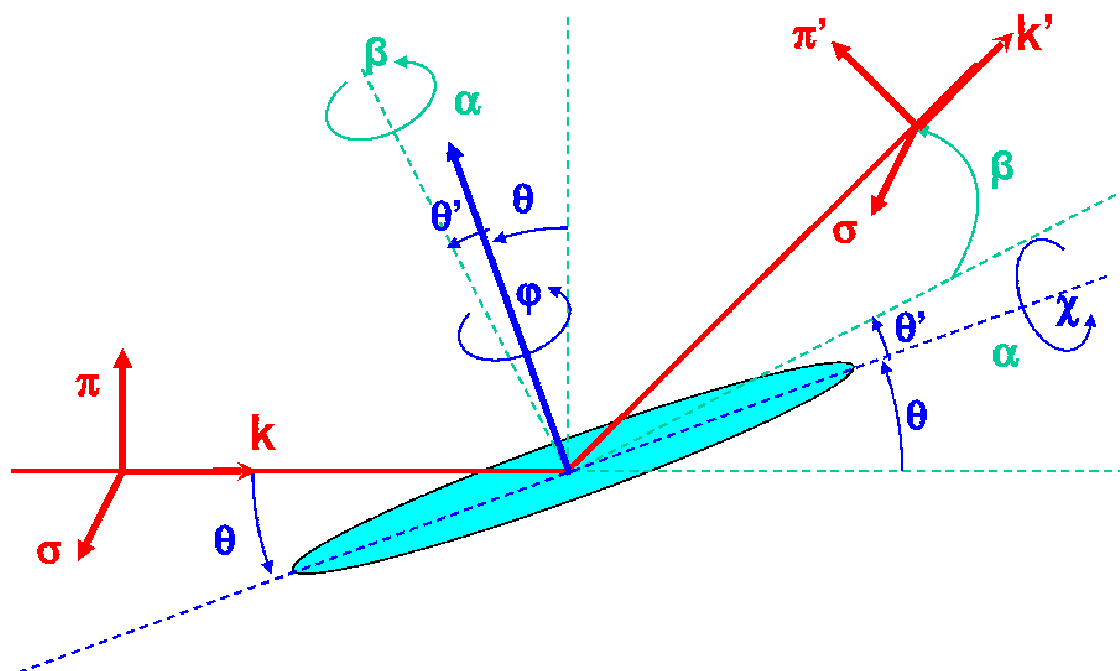


FIG. A.1 – Schéma de définition des angles dans la géométrie d'Euler.

A.1 Définition des angles

Les angles sont définis dans la géométrie d'Euler, représentée sur la Figure A.1.

- θ est l'angle d'incidence
- θ' est l'angle d'émergence
- $\theta_0 = \frac{\theta + \theta'}{2}$ est l'angle d'incidence et d'émergence auquel a lieu la réflexion pour la position du détecteur fixé à $\theta + \theta'$
- $\Delta\theta = \frac{\theta - \theta'}{2}$ est l'écart par rapport à l'angle de réflexion θ_0

- $\alpha = \theta + \theta'$ est la position du détecteur dans le plan d'incidence par rapport au faisceau incident. Il est couramment nommé "2 θ " sur les dispositifs instrumentaux, car en situation de réflectivité, on a effectivement $\alpha = 2\theta = 2\theta' = 2\theta_0$.
- β est la position du détecteur hors plan d'incidence
- ϕ est l'azimut de l'échantillon
- χ est l'angle de rouli de l'échantillon

A chaque angle est associée une matrice de rotation qui s'écrit, dans une base adaptée, sous la forme :

$$P_\alpha = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \alpha & \sin \alpha \\ 0 & -\sin \alpha & \cos \alpha \end{pmatrix}$$

On obtient ainsi les matrices de changement de base :

- pour passer de la base (X, Y, Z) liée au faisceau incident à la base (X', Y', Z') liée au faisceau diffusé : $P_\beta P_\alpha$
- pour passer de la base (X, Y, Z) liée au faisceau incident à la base (x, y, z) liée à l'échantillon : $P_\phi P_\chi P_\theta$

A.2 Espace réciproque

On note $k_0 = 2\pi/\lambda$ où λ est la longueur d'onde.

$\vec{k} = k_0 \hat{k}$ est le vecteur d'onde du faisceau incident.

$\vec{k}' = k_0 \hat{k}'$ est le vecteur d'onde du faisceau diffusé.

$\vec{q} = \vec{k}' - \vec{k} = k_0 \hat{q}$ est le vecteur de diffusion.

Les opérateurs de changement de base permettent d'écrire :

$$\hat{y} = P_\phi P_\chi P_\theta \hat{k}$$

$$\hat{k}' = P_\beta P_\alpha \hat{k} = P_\beta P_\alpha P_\theta^{-1} P_\chi^{-1} P_\phi^{-1} \hat{y} = P_\beta P_{\alpha-\theta} P_\chi^{-1} P_\phi^{-1} \hat{y}$$

On veut connaître le vecteur de diffusion dans la base de l'échantillon, afin d'accéder facilement à aux propriétés de l'échantillon.

Le vecteur de diffusion réduit \hat{q} s'écrit donc dans la base de l'échantillon :

$$\hat{q} = [P_\beta P_\alpha - I] P_\theta^{-1} P_\chi^{-1} P_\phi^{-1} \hat{y} = D(\alpha, \beta, \theta, \chi, \phi) \hat{y}$$

La matrice de diffusion $D(\alpha, \beta, \theta, \chi, \phi)$ est assez compliquée dans le cas général. \hat{q} décrit l'espace réciproque (réduit), à 3 dimensions. Comme il est décrit par une matrice à 5 paramètres, c'est que ces 5 paramètres sont liés par 2 relations. On pourrait théoriquement se passer de deux d'entre eux. Il est cependant pratique de conserver les 5 paramètres, qui ont une signification physique évidente, y compris ϕ , qui est utile pour exprimer le désalignement entre une direction particulière de l'échantillon et le plan d'incidence.

Nous allons expliciter \hat{q} dans les deux cas particuliers ($\chi = 0, \phi = 0$) et ($\chi = 0, \phi = 90^\circ$). On définit les axes x, y, z tels que l'axe y de l'échantillon soit une direction bien particulière de l'échantillon, l'axe z étant l'axe de croissance. Dans le cas d'échantillons à domaines en rubans parallèles, y est l'axe d'orientation moyenne des rubans.

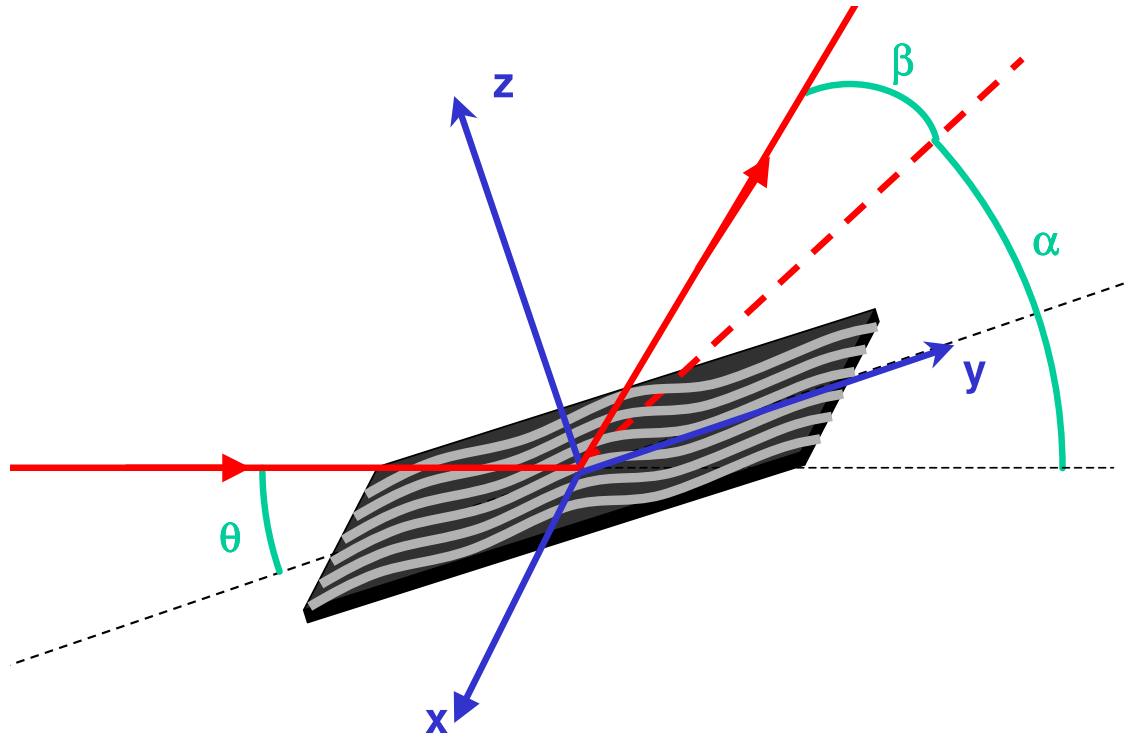


FIG. A.2 – Schéma de définition des angles de diffusion en géométrie longitudinale.

A.2.1 Géométrie longitudinale

C'est le cas ($\chi = 0, \phi = 0$).

Dans la base liée à l'échantillon, on a :

$$\hat{k} = \begin{pmatrix} 0 \\ \cos \theta \\ -\sin \theta \end{pmatrix} \quad \hat{k}' = \begin{pmatrix} \cos \theta' \sin \beta \\ \cos \theta' \cos \beta \\ \sin \theta' \end{pmatrix} \quad \hat{q} = \begin{pmatrix} \cos \theta' \sin \beta \\ \cos \theta' \cos \beta - \cos \theta \\ \sin \theta + \sin \theta' \end{pmatrix}$$

Dans les cas que nous avons étudiés, nous nous sommes intéressés à la région des petits angles autour du spéculaire ($\Delta\theta \ll 1$ et $\beta \ll 1$). On peut alors développer \hat{q} au premier ordre en $\Delta\theta$ et en β :

$$\hat{q} \approx \begin{pmatrix} \cos \theta_0 \beta \\ 2 \sin \theta_0 \Delta\theta \\ 2 \sin \theta_0 \end{pmatrix} \approx \begin{pmatrix} \cos \theta \beta \\ 2 \sin \theta \Delta\theta \\ 2 \sin \theta \end{pmatrix} \approx \begin{pmatrix} \cos \theta' \beta \\ -2 \sin \theta' \Delta\theta \\ 2 \sin \theta' \end{pmatrix}$$

Cela signifie que, près du spéculaire, on est essentiellement sensible aux modulations de la surface, et pas en profondeur (q_z est constant au premier ordre). Typiquement, sur notre caméra CCD couvrant une surface d'environ 28×28 mm, placée à environ 50 cm de l'échantillon, on couvre une ouverture angulaire de 1×1 mrad. Donc cette approximation linéaire de \hat{q} est bien vérifiée si le spéculaire est dans le champ du détecteur ou très proche.

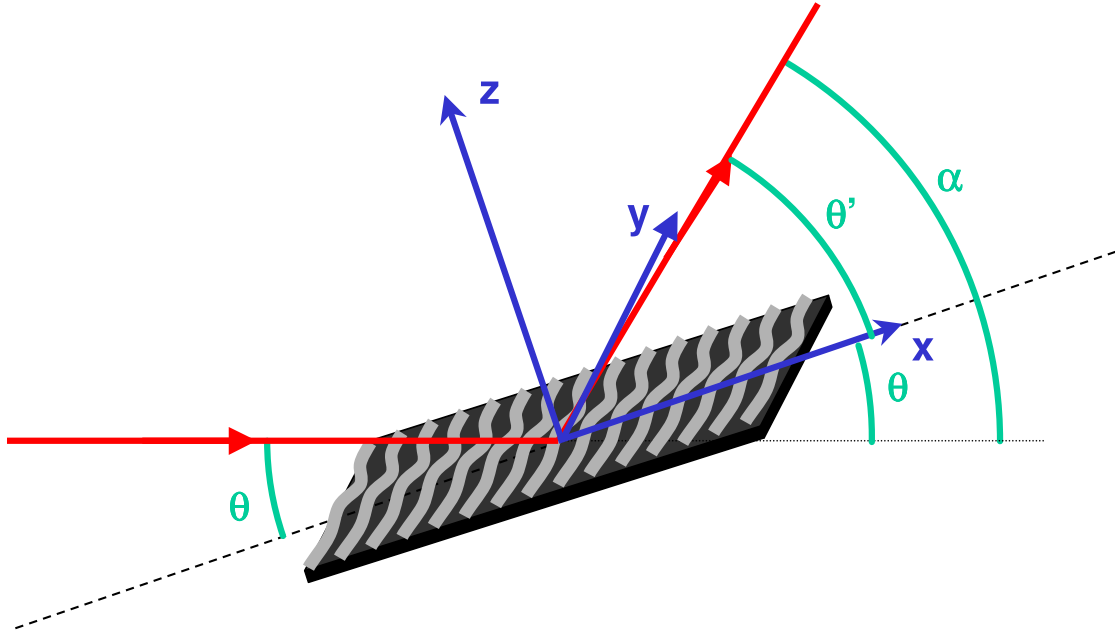


FIG. A.3 – Schéma de définition des angles de diffusion en géométrie transverse.

A.2.2 Géométrie transverse

C'est le cas ($\chi = 0, \phi = 90^\circ$).

On considère le cas d'un échantillon avec un axe d'invariance y orienté perpendiculairement au faisceau incident. La diffusion est alors théoriquement nulle en dehors du plan d'incidence. On se contente donc de mesurer la diffusion dans le plan d'incidence ($\beta = 0$), ce qui est de toute façon une contrainte de nombreux diffractomètres.

Les composantes des vecteurs \hat{k}, \hat{k}' et \hat{q} s'expriment alors simplement en fonction de θ et θ' (par exemple) :

$$\hat{k} = \begin{pmatrix} \cos \theta \\ 0 \\ -\sin \theta \end{pmatrix} \quad \hat{k}' = \begin{pmatrix} \cos \theta' \\ 0 \\ \sin \theta' \end{pmatrix} \quad \hat{q} = 2 \sin \frac{\theta + \theta'}{2} \begin{pmatrix} \sin \frac{\theta - \theta'}{2} \\ 0 \\ \cos \frac{\theta - \theta'}{2} \end{pmatrix}$$

On a donc $q_x^2 + q_z^2 = 4k_0^2 \sin^2 \frac{\theta + \theta'}{2} < 4k_0^2$. De plus on n'a accès en réflexion qu'au demi-espace $q_z > 0$. La diffusion dans le plan avec un faisceau de longueur d'onde λ couvre donc un demi-disque dans le sous-espace $q_y = 0$.

A.3 Dépendances géométriques du facteur de diffusion

Le facteur de diffusion atomique dépend fortement des polarisations incidentes et sortantes du faisceau (Equation 3.7).

Le Tableau A.1 récapitule les dépendances géométriques des contributions de la densité électronique et de chaque composante d'aimantation (en géométrie longitudinale) en fonction du canal de polarisation, dans le cas de la diffusion dans le plan d'incidence ($\beta = 0$).

	$\sigma \rightarrow \sigma$	$\sigma \rightarrow \pi'$	$\pi \rightarrow \sigma$	$\pi \rightarrow \pi'$
charge	1	0	0	$\cos(\theta + \theta')$
m_x	0	0	0	$-\sin(\theta + \theta')$
m_y	0	$\cos \theta'$	$\cos \theta$	0
m_z	0	$\sin \theta'$	$-\sin \theta$	0

TAB. A.1 – Dépendances géométriques des contributions de la densité de charge et des composantes d'aimantation selon le canal de polarisation, dans le cas de la diffusion dans le plan d'incidence.

Hors du plan d'incidence ($\beta \neq 0$), les dépendances géométriques sont plus compliquées (Tableau A.2). De plus, les polarisations propres σ et π ne correspondent pas avec les polarisations linéaires horizontales et verticales du faisceau, ce qui rend l'interprétation difficile quand on s'écarte beaucoup du plan d'incidence. Les polarisations propres sont :

$$\sigma = \sigma' = \frac{\hat{k} \wedge \hat{k}'}{|\hat{k} \wedge \hat{k}'|} \quad \pi = \sigma \wedge \hat{k} \quad \pi' = \sigma \wedge \hat{k}'$$

	$\sigma \rightarrow \sigma$	$\sigma \rightarrow \pi'$	$\pi \rightarrow \sigma$	$\pi \rightarrow \pi'$
charge	1	0	0	$\cos(\theta + \theta')$
m_x	0	$-\sin \beta$	0	$-\sin(\theta + \theta') \cos \beta$
m_y	0	$\cos \theta' \cos \beta$	$\cos \theta$	$-\sin \theta \sin \beta$
m_z	0	$\sin \theta' \cos \beta$	$-\sin \theta$	$-\cos \theta \sin \beta$

TAB. A.2 – Dépendances géométriques des contributions de la densité de charge et des composantes d'aimantation selon le canal de polarisation, dans la géométrie du diffractomètre d'ID08 (géométrie d'Euler).

Annexe B

Amplitude cohérente de l'onde incidente

B.1 Champ rayonné par une ouverture

Afin de modéliser correctement une expérience en faisceau cohérent, il est essentiel de connaître précisément l'amplitude de l'onde arrivant sur l'échantillon. Le faisceau délivré par l'ondulateur est bien modélisé par une onde plane, dont la forme analytique simple permettrait de traiter facilement ce problème. Mais la cohérence du faisceau étant spatialement limitée, on doit le filtrer grâce à une ouverture dans un support opaque. La taille de l'ouverture doit être inférieure à la longueur de cohérence transverse du faisceau. L'onde diffusée par cette ouverture n'est pas une onde plane, et sa topologie est plus ou moins complexe en fonction de la forme de l'ouverture. Elle ne se calcule analytiquement que dans certains cas particuliers.

Le développement présenté dans cette section correspond au cas particulier de nos conditions expérimentales.

B.1.1 Définition du problème

On se place dans le référentiel du laboratoire auquel on associe une base orthonormée (u_X, u_Y, u_Z) définie comme suit : u_Z est la direction de propagation du faisceau après les éléments de la cabane optique, u_X est l'autre vecteur horizontal et u_Y est vertical. Toutes les coordonnées dans ce système d'axes seront notées avec des lettres capitales.

Considérons une ouverture quelconque \mathcal{P} (comme "pinhole") de taille caractéristique $2a$ percée dans un écran plat et opaque placé perpendiculairement au faisceau. Choisissons lui un centre P_0 à partir duquel sera repéré tout point P de \mathcal{P} par son vecteur \vec{p} . Soient $(X_p, Y_p, Z_p = 0)$ ses coordonnées cartésiennes et $R_p = \sqrt{X_p^2 + Y_p^2}$ sa coordonnée radiale.

Supposons que cette ouverture est éclairée par une source suffisamment lointaine, telle que le champ $A(\vec{p})$ parvenant à la surface de l'ouverture est une onde plane monochromatique de longueur d'onde $\lambda \ll a$ et de vecteur d'onde \vec{k} . On note $k_0 = 2\pi/\lambda$ le module de son vecteur d'onde. Soit A_0 son amplitude en P_0 , de sorte que l'on ait :

$$A(\vec{p}) = A_0 e^{i\vec{k} \cdot \vec{p}} \quad (\text{B.1})$$

On cherche à calculer l'amplitude diffractée en tout point S d'un domaine \mathcal{S} (comme "sample") de taille caractéristique L situé derrière l'ouverture. On choisit un centre S_0 du domaine \mathcal{S} à partir

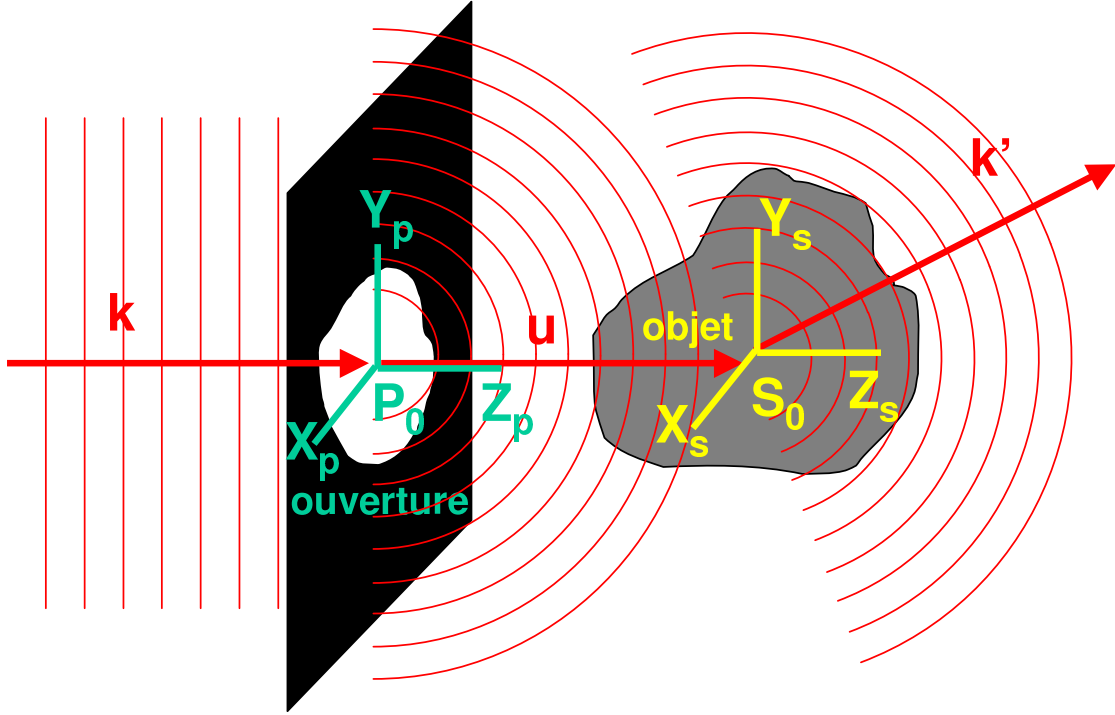


FIG. B.1 – Schéma présentant les définitions nécessaires aux calculs d'amplitude cohérente

duquel sera repéré tout point S de S par son vecteur \vec{s} de module $s = |\vec{s}|$. Soient (X_s, Y_s, Z_s) ses coordonnées cartésiennes dans le système d'axes du laboratoire et $R_s = \sqrt{X_s^2 + Y_s^2}$ sa coordonnée radiale dans le plan transverse au faisceau. On définit également un système d'axes lié à l'échantillon tel que l'axe z soit son axe de croissance, et dans lequel les coordonnées seront notées avec des lettres minuscules (x_s, y_s, z_s) .

En supposant que l'échantillon est correctement placé derrière l'ouverture dans l'axe du faisceau, on peut choisir S_0 tel que $\vec{P_0 S_0} = d \cdot \vec{u}_z$ où d la distance principale entre l'ouverture et l'échantillon.

Pour 2 points quelconques P et S respectivement de \mathcal{P} et S , on note (X_{ps}, Y_{ps}, Z_{ps}) les coordonnées cartésiennes de $\vec{s} - \vec{p}$ et $R_{ps} = \sqrt{X_{ps}^2 + Y_{ps}^2}$ sa coordonnée radiale.

D'après le principe de Huygens-Fresnel, chaque point de \mathcal{P} est considéré comme une source secondaire qui émet une ondelette sphérique. On peut calculer l'amplitude diffractée en S comme la somme des amplitudes des ondelettes sphériques :

$$A'(\vec{s}) = \frac{1}{i\lambda} \int_{\mathcal{P}} A(\vec{p}) \frac{e^{ik_0 |\vec{pS}|}}{|\vec{pS}|} d\vec{p} \quad (\text{B.2})$$

B.1.2 Approximation paraxiale

Explicitons $|\vec{pS}|$:

$$|\vec{pS}| = |d \cdot \vec{u}_z + \vec{s} - \vec{p}| = d \sqrt{1 + 2 \frac{\vec{u}_z \cdot (\vec{s} - \vec{p})}{d} + \left(\frac{\vec{s} - \vec{p}}{d} \right)^2} \quad (\text{B.3})$$

$2a$ est la taille caractéristique de l'ouverture et L est la taille caractéristique de l'échantillon, donc $|\vec{s} - \vec{p}|$ est au maximum de l'ordre de $a + L/2 \ll d$. Pour le terme au dénominateur dans l'équation (B.2), on peut se contenter d'approximer $|\vec{s} - \vec{p}|$ par d . Mais pour le terme dans l'exponentielle, il faut développer la racine carrée en puissances de $|\vec{s} - \vec{p}|/d$, ce qui aboutit à :

$$|\vec{PS}| \approx d + \vec{u}_Z \cdot (\vec{s} - \vec{p}) + \frac{1}{2d} \left\{ (\vec{s} - \vec{p})^2 - [\vec{u}_Z \cdot (\vec{s} - \vec{p})]^2 \right\} \quad (\text{B.4})$$

$$= d + \vec{u}_Z \cdot (\vec{s} - \vec{p}) + \frac{R_{ps}^2}{2d} \quad (\text{B.5})$$

Le terme d'ordre 3 en $|\vec{s} - \vec{p}|$ dans l'exponentielle serait au maximum de l'ordre de $(a + L/2)^3 / (\lambda d^2)$. Au seuil L_{III} du Cobalt ($\lambda = 1.59$ nm), avec une ouverture de $20 \mu\text{m}$ à 25mm de l'échantillon, la taille des échantillons que l'on peut traiter avec cette méthode est limitée à $60 \mu\text{m}$ environ, et avec une ouverture de $10 \mu\text{m}$ à 7mm , elle est limitée à $20 \mu\text{m}$ environ. On supposera ces conditions remplies pour la suite du développement.

B.1.3 Amplitude sur l'échantillon

Dans ces conditions, l'équation (B.2) devient :

$$A'(\vec{s}) = A_0 \frac{e^{ik_0 d}}{i\lambda d} e^{i\vec{k} \cdot \vec{s}} \int_p e^{i \frac{k_0 R_{ps}^2}{2d}} d\vec{p} \quad (\text{B.6})$$

Par la suite, on notera :

$$A'_0 = A_0 \frac{e^{ik_0 d}}{i\lambda d} \quad (\text{B.7})$$

$$A'_p(\vec{s}) = \int_p e^{i \frac{k_0 R_{ps}^2}{2d}} d\vec{p} \quad (\text{B.8})$$

B.1.4 Amplitude réfléchie par l'échantillon

On observe l'intensité diffusée élastiquement par l'échantillon en condition de réflexion, à une distance D dans la direction définie par le vecteur d'onde \vec{k}' . On note $\vec{q} = \vec{k}' - \vec{k}$ le vecteur de diffusion et $f(\vec{s})$ le facteur de diffusion au point S de l'échantillon.

En condition de champ lointain ($\lambda D \gg L^2$), on peut considérer l'onde diffusée comme une onde plane. Son amplitude diffusée dans la direction \vec{k}' s'écrit alors :

$$\begin{aligned} A''(\vec{q}) &= \int_S A'(\vec{s}) f(\vec{s}) \frac{e^{ik_0 D}}{i\lambda D} e^{-i\vec{k}' \cdot \vec{s}} d\vec{s} \\ &= A'_0 \frac{e^{ik_0 D}}{i\lambda D} \int_S A'_p(\vec{s}) f(\vec{s}) e^{-i\vec{q} \cdot \vec{s}} d\vec{s} \\ &= A''_0 \int_S \int_p e^{i \frac{k_0 R_{ps}^2}{2d}} f(\vec{s}) e^{-i\vec{q} \cdot \vec{s}} d\vec{p} d\vec{s} \end{aligned} \quad (\text{B.9})$$

où l'on a défini :

$$A''_0 = A'_0 \frac{e^{ik_0 D}}{i\lambda D} = -A_0 \frac{e^{ik_0(d+D)}}{\lambda^2 d D}$$

Il apparaît clairement dans cette équation que le fait que l'échantillon ne se trouve pas dans le champ lointain de l'ouverture induit des effets de distortion de l'onde par l'intermédiaire du

terme $A'_p(\vec{s})$. Il est donc capital, pour modéliser correctement les mesures faites dans ces conditions expérimentales, de calculer ce terme que nous appellerons "facteur de forme de l'ouverture".

Réflexion par une surface parfaite

Dans le cas d'une surface infinie et parfaitement homogène latéralement, c'est-à-dire telle que $f(\vec{s}) = f(z_s)$, on effectue le changement de variables suivant, à X_p, Y_p et z_s fixés, dans l'intégrale de l'équation B.9 :

$$\begin{pmatrix} x_s \\ y_s \end{pmatrix} \rightarrow \begin{pmatrix} X \\ Y \end{pmatrix} = \sqrt{\frac{k_0}{2d}} \begin{pmatrix} X_s(x_s, y_s) - X_p \\ Y_s(x_s, y_s) - Y_p \end{pmatrix} - \sqrt{\frac{d}{2k_0}} \vec{q}_D \text{ où } \vec{q}_D = \begin{pmatrix} q_x \\ q_y / \sin \theta \end{pmatrix}$$

Le vecteur \vec{q}_D est adapté au repère du détecteur bidimensionnel (si celui-ci est placé perpendiculairement au faisceau réfléchi) : sa direction est la même que celle définie par le pixel correspondant et celui du spéculaire, et sa norme q_D est proportionnelle à la distance entre ces deux pixels. X et Y varient comme x_s et y_s entre $-\infty$ et $+\infty$. On a alors :

$$\begin{aligned} A''(\vec{q}) &= A_0'' \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i(X^2+Y^2)} \frac{2d}{k_0 \sin \theta} dX dY e^{-i\frac{d}{2k_0} q_D^2} \\ &\times \int_{\mathcal{P}} e^{-i\vec{q}_D \cdot \vec{p}} d\vec{p} \int_{S_z} f(z_s) e^{i(q_z - q_y \cot \theta) z_s} dz_s \\ &= A_0 \frac{e^{ik_0(d+D)}}{i\lambda D} e^{-i\frac{d}{2k_0} q_D^2} F_P(\vec{q}_D) F_z(\vec{q}) \end{aligned}$$

On a posé :

$$\begin{aligned} F_P(\vec{q}_D) &= \frac{1}{\sin \theta} \int_{\mathcal{P}} e^{-i\vec{q}_D \cdot \vec{p}} d\vec{p} \\ F_z(\vec{q}) &= \int_{S_z} f(z_s) e^{i(q_z - q_y \cot \theta) z_s} dz_s \end{aligned}$$

Avec une ouverture circulaire de rayon a , $F_P(\vec{q}_D)$ s'écrit :

$$\begin{aligned} F_P(\vec{q}_D) &= \frac{1}{\sin \theta} \int_0^\infty \int_0^{2\pi} e^{-iq_D p \cos \phi} p dp d\phi \\ &= \frac{2\pi a}{\sin \theta} \frac{J_1(q_D a)}{q_D} \end{aligned} \tag{B.10}$$

où J_1 est la fonction de Bessel de premier type d'ordre 1. Ce qui donne l'intensité sur le détecteur :

$$I(\vec{q}_D) = \left(\frac{A_0}{\lambda D} \frac{2\pi a}{\sin \theta} \frac{J_1(q_D a)}{q_D} \right)^2 |F_z(\vec{q})|^2$$

Quand q_D est suffisamment grand, $J_1(q_D a) \sim -\sqrt{\frac{2}{\pi q_D a}} \sin(q_D a)$: l'intensité décroît donc en $1/q_D^3$ en oscillant avec une période π/a . C'est effectivement ce que l'on observe avec une ouverture bien circulaire et un échantillon réfléchissant peu rugueux.

Dans le cas de la réflexion spéculaire, avec une ouverture de forme quelconque, $q_x = 0$ et $q_y = 0$. $F_P(0,0) = \mathcal{A}_{\mathcal{P}} / \sin \theta$, où $\mathcal{A}_{\mathcal{P}}$ est l'aire de l'ouverture, est l'empreinte du faisceau sur

l'échantillon, et $F_z(0, 0, q_z) \equiv F_z(q_z)$ est le facteur de structure de l'échantillon le long de son axe de croissance.

$$I(0, 0, q_z) = |A''(0, 0, q_z)|^2 = \left(\frac{A_0}{\lambda D} \frac{\mathcal{A}_p}{\sin \theta} \right)^2 |F_z(q_z)|^2$$

On constate que l'intensité du spéculaire ne dépend pas de la distance ouverture - échantillon.

B.2 Calcul du facteur de forme de l'ouverture

B.2.1 Calcul par éléments finis

Considérons un découpage de l'ouverture en petits éléments. Chaque point d'un élément sera repéré par son vecteur \vec{u}_p défini par rapport au centre P de l'élément. D'après Eq.B.8 :

$$A'_p(\vec{s}) = \int_{\mathcal{P}} e^{i \frac{k_0 R_{ps}^2}{2d}} d\vec{p} = \sum_{P \in \mathcal{P}} \int e^{i \frac{k_0}{2d} (\vec{R}_{ps} - \vec{u}_p)^2} d\vec{u}_p \quad (\text{B.11})$$

$$= \sum_{P \in \mathcal{P}} e^{i \frac{k_0 R_{ps}^2}{2d}} \int e^{-i \frac{k_0}{d} \vec{R}_{ps} \cdot \vec{u}_p} e^{i \frac{k_0}{2d} \vec{u}_p^2} d\vec{u}_p \quad (\text{B.12})$$

On peut négliger l'exponentielle avec le terme quadratique en u_p si sa phase reste proche de 0, c'est-à-dire si la taille caractéristique δp des éléments est suffisamment petite :

$$(\delta p)^2 \ll 8\lambda d \quad (\text{B.13})$$

Avec $\lambda \approx 1.59$ nm et $d \approx 7$ mm, il faut choisir un découpage en éléments finis de taille $(\delta p)^2 \ll 90 \mu\text{m}^2$. Dans nos calculs, nous avons pris un découpage en éléments carrés de taille $\delta p \approx 10$ nm.

L'exponentielle avec le terme linéaire en \vec{u}_p s'intègre facilement dans le cas d'éléments carrés, et l'on obtient :

$$A'_p(\vec{s}) = \sum_{P \in \mathcal{P}} e^{i \frac{k_0 R_{ps}^2}{2d}} (\delta p)^2 \text{sinc} \left(\frac{k_0 X_{ps} \delta p}{2d} \right) \text{sinc} \left(\frac{k_0 Y_{ps} \delta p}{2d} \right) \quad (\text{B.14})$$

B.2.2 Cas d'une ouverture circulaire

Dans le cas d'une ouverture circulaire de rayon a , on peut profiter de la symétrie cylindrique pour réécrire l'équation B.8 comme suit :

$$A'_p(\vec{s}) = A'_p(R_s) = \int \int_{\mathcal{P}} e^{i \frac{k_0 R^2}{2d}} R dR d\phi \quad (\text{B.15})$$

$$= \int_0^a e^{i \frac{k_0 R^2}{2d}} 2\phi(R_s, R) R dR \quad (\text{B.16})$$

$\phi(R_s, R)$ est défini comme suit (Fig.B.2) :

$$\phi(R_s, R) = \begin{cases} \pi & \text{pour } R < a - R_s \text{ et } R_s < a \\ \arccos \left(\frac{R^2 + R_s^2 - a^2}{2RR_s} \right) & \text{pour } |a - R_s| < R < a + R_s \\ 0 & \text{pour } R > a + R_s \text{ ou } R < R_s - a \text{ et } a < R_s \end{cases}$$

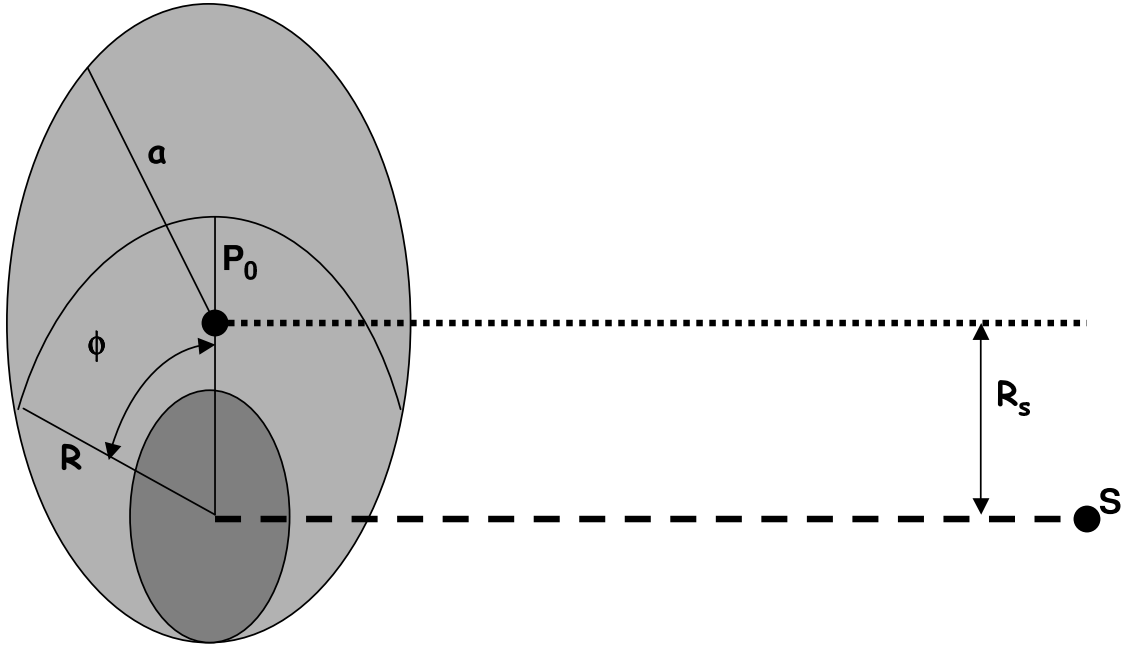


FIG. B.2 – Schéma présentant les notations utilisées pour le calcul d'amplitude diffusée par une ouverture circulaire

Finalement, l'équation B.16 devient :

$$A'_p(R_s < a) = 2d\lambda \sin\left(\frac{k_0(a-R_s)^2}{4d}\right) \exp\left(i\frac{k_0(a-R_s)^2}{4d}\right) \quad (\text{B.17})$$

$$+ \int_{a-R_s}^{a+R_s} e^{i\frac{k_0R^2}{2d}} 2\phi(R_s, R) R dR \quad (\text{B.18})$$

$$A'_p(R_s \geq a) = \int_{R_s-a}^{R_s+a} e^{i\frac{k_0R^2}{2d}} 2\phi(R_s, R) R dR \quad (\text{B.19})$$

En particuliers, directement face au centre de l'ouverture ($R_s = 0$) :

$$A'(R_s = 0) = A'_0 A'_p(R_s = 0) = \frac{2}{i} A_0 \sin\left(\frac{k_0 a^2}{4d}\right) \exp\left(ik_0\left(d + \frac{a^2}{4d}\right)\right) \quad (\text{B.20})$$

$A'(R_s = 0)$ dépend en module et en phase du rapport $\eta = \lambda d/a^2$. C'est ce rapport qui détermine si l'on est en condition de champ proche ($\eta \ll 1$) ou de champ lointain ($\eta \gg 1$) ou dans un cas intermédiaire. Pour le cas qui nous concerne ($a = 5 \mu\text{m}$, $d = 7 \text{ mm}$, $\lambda = 1.59 \text{ nm}$), on a $\eta = 0.45$. On est donc dans un cas intermédiaire, qui ne permet pas d'utiliser les approximations des limites de champs proche et lointain.

La Figure B.3 montre l'évolution de $A'(R_s = 0)$ en fonction de d et de a . On constate que, du fait de la dépendance de l'argument du sinus en $1/d$, l'amplitude varie très rapidement dans les petites distances, ce qui ne permet pas de la connaître avec précision. A $d \approx 7 \text{ mm}$, on peut connaître l'amplitude avec une bonne précision si l'incertitude sur d est assez faible (de l'ordre de 0.1 mm , Fig. B.4). Il est également important de connaître avec assez de précision le rayon de l'ouverture circulaire.

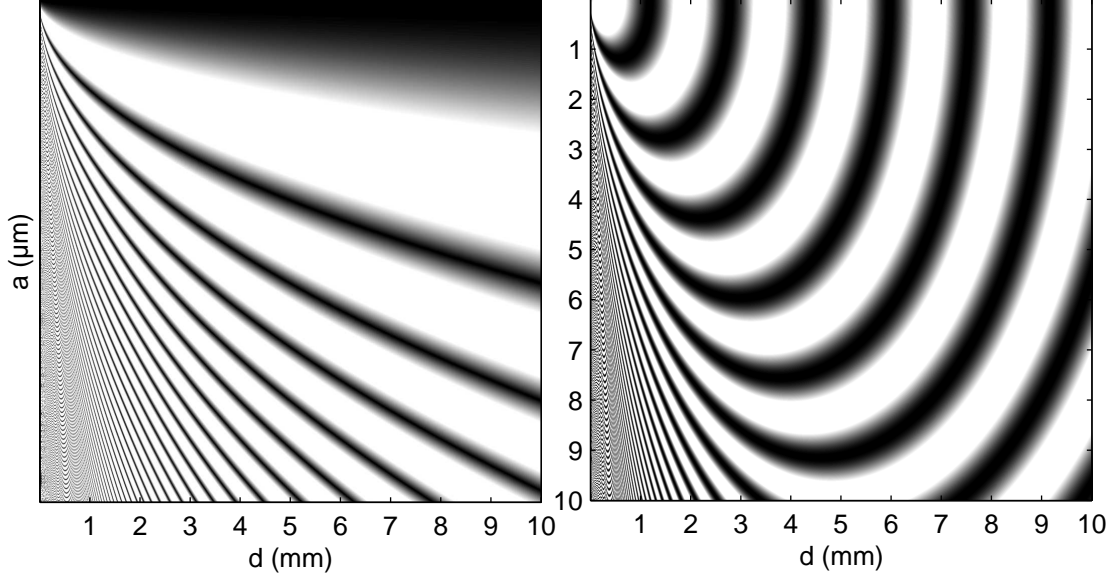


FIG. B.3 – Amplitude de l'onde diffusée face au centre d'une ouverture circulaire, en fonction du rayon a de l'ouverture et de la distance d , avec $\lambda = 1.59 \text{ nm}$. A gauche : module de l'amplitude (blanc : $|A'(R_s = 0)| = |2A_0|$, noir : $|A'(R_s = 0)| = 0$). A droite : sinus de la phase de l'amplitude (blanc : 1, noir : -1)

Dans le cas général $R_s \neq 0$, il faut calculer l'intégrale numériquement. On peut remplacer l'intégrale par une somme discrète, à condition de choisir un pas δR tel que la phase ϕ de l'exponentielle varie peu sur la taille du pas. En posant $R_c = \sqrt{2\lambda d}$, cela revient à dire que :

$$\frac{\delta\phi}{2\pi} = \frac{(R + \delta R)^2 - R^2}{R_c^2} \ll 1$$

Nous avons choisi un critère tel que $\frac{\delta\phi}{2\pi} < \frac{1}{M}$, avec $M = 1000$. On montre alors, que pour $R < R_c$, on peut prendre $\delta R_i = \frac{R_c}{2M}$, et pour $R > R_c$, $\delta R_i = \frac{R_c^2}{2MR_i}$.

On peut alors simplement remplacer l'intégrale par une somme discrète :

$$\begin{aligned} \int e^{i\frac{k_0 R^2}{2d}} 2\phi(R_s, R) R dR &\approx \sum_i 2\phi(R_s, R_i) e^{i\frac{k_0 R_i^2}{2d}} R_i \delta R_i \\ &= \frac{R_c}{M} \sum_{R_i < R_c} R_i \phi(R_s, R_i) e^{i\frac{k_0 R_i^2}{2d}} + \frac{R_c^2}{M} \sum_{R_i > R_c} \phi(R_s, R_i) e^{i\frac{k_0 R_i^2}{2d}} \end{aligned}$$

Ce découpage fin est possible en terme de temps de calcul car on n'intègre que sur une dimension.

Nous avons calculé de cette manière l'amplitude diffusée par l'ouverture en fonction de l'écart radial au centre et pour plusieurs valeurs de la distance à l'ouverture (Figure B.5). Le module de l'amplitude dans la zone face à l'ouverture varie rapidement avec la distance à l'ouverture, comme le montrait déjà la Figure B.4. Dans les zones plus excentrées ($R_s \geq a/2$), cette variation est modérée.

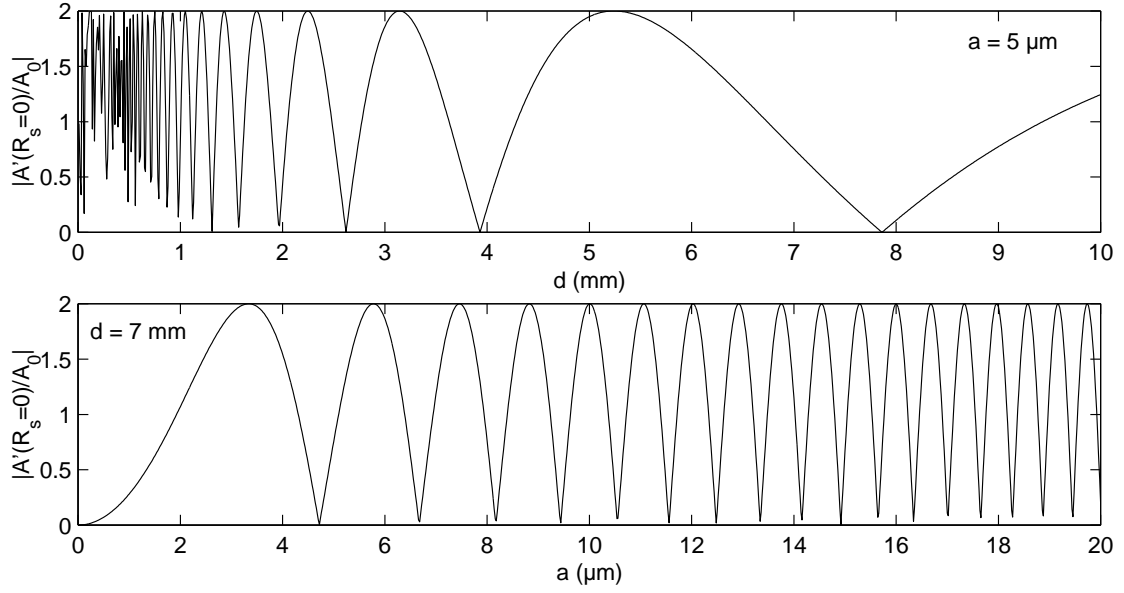


FIG. B.4 – Module de l'amplitude de l'onde diffusée face au centre d'une ouverture circulaire, avec $\lambda = 1.59$ nm. En haut : variation en fonction de d avec $a = 5$ μm . En bas : variation en fonction de a avec $d = 7$ mm.

B.2.3 Diffraction de Fraunhofer

(Ce court paragraphe est donné à titre d'information, bien que nos conditions expérimentales soient très éloignées de ce cas de figure.)

Supposons maintenant que les conditions de Fraunhofer, c'est-à-dire de champ lointain, sont réalisées :

$$\eta = \lambda d / a^2 \gg 1 \quad (\text{B.21})$$

Au seuil L_{III} du Cobalt ($\lambda = 1.59$ nm), il faut vérifier $d \gg 30$ mm pour une ouverture de 10 μm et $d \gg 125$ mm pour une ouverture de 20 μm .

Sachant que $R_{ps}^2 = R_s^2 - 2X_sX_p - 2Y_sY_p + R_p^2$, l'équation B.6 devient :

$$A'(\vec{s}) = A_0 \frac{e^{ik_0(d+R_s^2/2d)}}{i\lambda d} e^{i\vec{k}\cdot\vec{s}} \int_p e^{-ik_0 \frac{X_sX_p+Y_sY_p}{d}} dX_p dY_p \quad (\text{B.22})$$

Cas d'une ouverture rectangulaire de côté L_X et L_Y :

$$A'(\vec{s}) = A_0 \frac{e^{ik_0(d+R_s^2/2d)}}{i\lambda d} e^{i\vec{k}\cdot\vec{s}} L_X \text{sinc} \left(\frac{k_0 L_X X_s}{2d} \right) L_Y \text{sinc} \left(\frac{k_0 L_Y Y_s}{2d} \right) \quad (\text{B.23})$$

Dans le cas d'une fente fine ($L_X \ll 2d/k_0a$) de taille L_Y : il suffit de faire tendre L_X vers 0 dans l'expression précédente

$$A'(\vec{s}) = A_0 \frac{e^{ik_0(d+R_s^2/2d)}}{i\lambda d} e^{i\vec{k}\cdot\vec{s}} L_X L_Y \text{sinc} \left(\frac{k_0 L_Y Y_s}{2d} \right) \quad (\text{B.24})$$

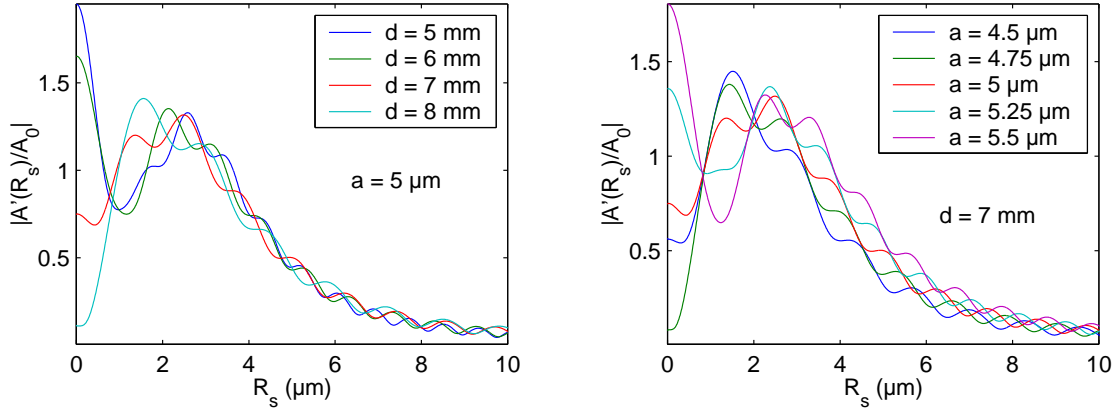


FIG. B.5 – Forme de l'onde diffusée par une ouverture circulaire, en fonction du rayon de l'ouverture et de la distance, avec $\lambda = 1.59$ nm.

Cas d'une ouverture circulaire de rayon a :

$$A'(\vec{s}) = A_0 \frac{e^{ik_0(d+R_s^2/2d)}}{i\lambda d} e^{i\vec{k}\cdot\vec{s}} \int_0^a \int_0^{2\pi} e^{i\frac{k_0 R_s R_p}{d} \cos\theta} R_p dR_p d\theta \quad (\text{B.25})$$

$$= A_0 \frac{e^{ik_0(d+R_s^2/2d)}}{i\lambda d} e^{i\vec{k}\cdot\vec{s}} \int_0^a 2\pi J_0\left(\frac{k_0 R_s R_p}{d}\right) R_p dR_p \quad (\text{B.26})$$

$$= A_0 e^{ik_0(d+R_s^2/2d)} e^{i\vec{k}\cdot\vec{s}} \frac{a}{iR_s} J_1\left(\frac{k_0 a R_s}{d}\right) \quad (\text{B.27})$$

J_0 et J_1 sont les fonctions de Bessel du premier type d'ordre 0 et 1.

En champ lointain, les noeuds et les maxima de l'onde parvenant sur l'échantillon sont définis par le rapport $aR_s/\lambda d$.

B.3 Amplitude diffusée par un échantillon invariant selon un axe

Considérons le cas de lignes parallèles infinies : on suppose que le facteur de diffusion $f(\vec{s})$ est invariant selon la direction y (c'est-à-dire $f(\vec{s}) = f(x_s, z_s)$).

Pour simplifier le développement, on suppose les directions X et x confondues, ce qui implique que l'angle de "twist" (couramment noté ϕ) est nul.

Soit $L_y(X_p)$ l'extension de l'ouverture dans la direction Y à l'abscisse X_p . Dans le cas d'une ouverture circulaire de rayon a , la forme de la pinhole s'écrit $L_y(X_p) = 2\sqrt{a^2 - X_p^2}$.

Réécrivons l'équation B.9 en séparant les variables :

$$A''(\vec{q}) = A_0'' \int_{S_{xz}} \int_{P_X} A_y''(q_y) e^{i\frac{k_0 X_p^2}{2d}} f(x_s, z_s) e^{-i(q_x x_s + q_z z_s)} dX_p dx_s dz_s$$

$$\text{avec } A_y''(q_y) = \int_{S_y} \int_{P_Y} e^{i\frac{k_0 Y_p^2}{2d}} e^{iq_y y_s} dY_p dy_s \quad (\text{B.28})$$

Intéressons nous à la double intégrale $A_y''(q_y)$ dans le cas où $q_y = 0$. Appliquons le change-

ment de variables $y_s \rightarrow Y = \sqrt{\frac{k_0}{2d}} Y_{ps}$. Y varie comme y_s de $-\infty$ à ∞ . On a :

$$A''_y(q_y = 0) = \int_{p_Y} \int_{-\infty}^{\infty} e^{iY^2} \sqrt{\frac{2d}{k_0}} dY dY_p \quad (\text{B.29})$$

$$= L_Y(X_p) \sqrt{\lambda d} e^{i\pi/4} \quad (\text{B.30})$$

L'équation B.28 devient donc :

$$A''(q_x, q_y = 0, q_z) = A_0''' \int_{S_x} A'_x(x_s) F_z(x_s, q_z) e^{-iq_x x_s} dx_s \quad (\text{B.31})$$

avec :

$$A_0''' = A_0'' \sqrt{\lambda d} e^{i\pi/4} = \frac{A_0}{\lambda D \sqrt{\lambda d}} e^{i(k_0(d+D) - 3\pi/4)} \quad (\text{B.32})$$

$$A'_x(x_s) = \int_{p_X} Y_p(X_p) e^{i \frac{k_0 X_p^2}{2d}} dX_p \quad (\text{B.33})$$

$$F_z(x_s, q_z) = \int_{S_z} f(x_s, z_s) e^{-iq_z z_s} dz_s \quad (\text{B.34})$$

Dans la plupart des cas, y compris celui d'une ouverture circulaire, les intégrales A'_x et A'' ne peuvent être calculées que numériquement. On procède donc à un double-découpage en éléments finis de taille δx_p et δx_s . A condition de vérifier $\delta x_p, \delta x_s \ll 4d\lambda/(L+a)$, et si $Y_p(x_p)$ varie suffisamment lentement, on peut écrire :

$$A'_x(x_{s,j}) = \sum_i Y_p(x_{p,i}) e^{i \frac{k_0 (x_{s,j} - x_{p,i})^2}{2d}} \delta x_p \quad (\text{B.35})$$

$$A''(q_x, q_y = 0, q_z) = A_0''' \sum_j A'_x(x_{s,j}) F_z(x_{s,j}, q_z) e^{-iq_x x_{s,j}} \delta x_s \quad (\text{B.36})$$

Avec $\lambda = 1.59$ nm, $d = 7$ mm, $a = 10$ μ m et $L = 100$ μ m, on a $4d\lambda/(L+a) \sim 0.45$ μ m. Pour le découpage de l'ouverture, nous avons choisi $\delta x_p = 10$ nm. Pour le découpage de l'échantillon, le découpage naturel correspondant à la période des lignes (175 nm) semble trop grand selon ce critère. Pourtant, en pratique, on constate qu'on n'améliore pas la forme de l'onde en prenant un découpage de 5 nm.

La Figure B.6, comparée à la Figure B.5, montre que l'effet des variations d'amplitude en fonction de la distance ouverture-échantillon est atténué par l'intégration longitudinale. L'effet de la taille de l'ouverture est moins atténué. La troisième conséquence de l'intégration longitudinale est la rapide décroissance de l'amplitude avec l'écart au centre.

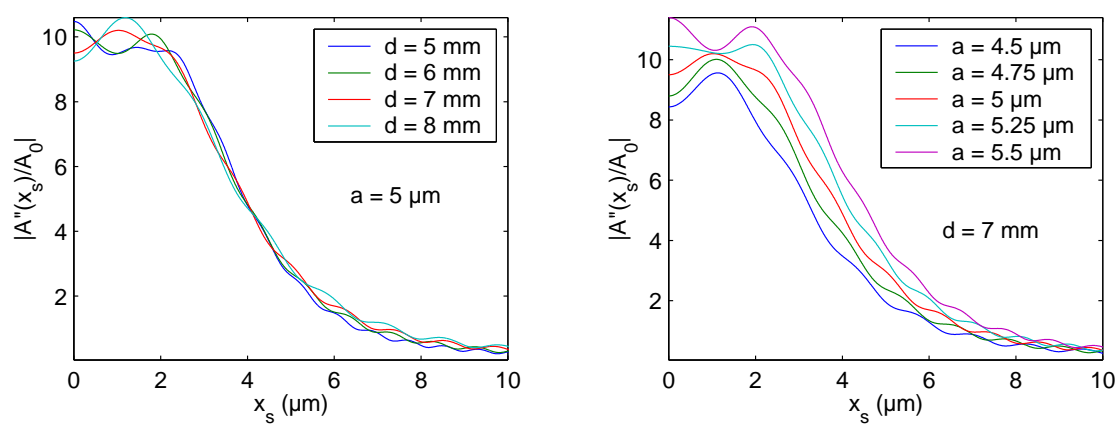


FIG. B.6 – *Forme latérale de l'onde réfléchie un échantillon uniforme longitudinalement éclairé à travers une ouverture circulaire, en fonction du rayon de l'ouverture et de la distance entre l'échantillon et l'ouverture, avec $\lambda = 1.59 \text{ nm}$.*

Bibliographie

- [1] Laurent SÈVE : *Diffraction magnétique résonante des rayons X. Applications aux multicouches et films minces*. Thèse de Doctorat, Université Joseph Fourier, 1997. 11, 48, 56, 67
- [2] Nicolas JAOUEN : *Etude de nanostructures magnétiques par réflectivité magnétique résonante des rayons X*. Thèse de Doctorat, Université Joseph Fourier, 2001. 11, 67
- [3] Karine CHESNEL : *Diffusion Magnétique Résonante des rayons X appliquée à l'étude de nanostructures magnétiques*. Thèse de Doctorat, Université Joseph Fourier, 2002. 11, 21, 117
- [4] Véronique GÉHANNO : *Anisotropie magnétique perpendiculaire des couches minces épitaxiées d'alliages ordonnés FePd*. Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble, 1997. 12, 18, 19, 20, 24, 28
- [5] David HALLEY : *Croissance, mise en ordre chimique et relaxation des contraintes épitaxiales dans des alliages FePd et FePt*. Thèse de Doctorat, Université Joseph Fourier, 2001. 12, 19, 24
- [6] Stefan LANDIS : *Réseaux de plots sub-microniques réalisés à partir de substrats prégravés*. Thèse de Doctorat, Université Joseph Fourier, 2001. 12, 147
- [7] Jérôme MORITZ : *Enregistrement ultra-haute densité sur réseaux de plots magnétiques nanométriques à aimantation perpendiculaire au plan*. Thèse de Doctorat, Université Joseph Fourier, 2003. 12, 147
- [8] Vincent BALTZ : *Effets de taille finie sur les couplages magnétostatiques et l'anisotropie d'échange dans le domaine de l'enregistrement magnétique*. Thèse de Doctorat, Université Joseph Fourier, 2005. 12, 147
- [9] D. HALLEY, B. GILLES, P. BAYLE-GUILLEMAUD, R. ARENAL, A. MARTY, G. PATRAT et Y. SAMSON : Chemical ordering in magnetic FePd/Pd(001) epitaxial thin films induced by annealing. *Phys. Rev. B*, 70:174437, 2004. 18, 20
- [10] Grégory ABADIAS : *Etude théorique et expérimentale de la métastabilité d'alliages AuNi déposés par épitaxie par jets moléculaires*. Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble, 1998. 19
- [11] Anthony MEUNIER : *Épitaxie de systèmes métalliques sur Si(001) : croissance du cuivre et structures à anisotropie magnétique perpendiculaire*. Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble, 2005. 19
- [12] V. GEHANNO, C. REVENANT-BRIZARD, A. MARTY et B. GILLES : Studies of epitaxial Fe_{0.5}Pd_{0.5} thin films by x-ray diffraction and polarized fluorescence absorption spectroscopy. *J. Appl. Phys.*, 84:2316, 1998. 21

- [13] L. G. PARRATT : Surface studies of solids by total reflection of x-rays. *Phys. Rev.*, 95:359, 1954. 24
- [14] P. CROCE et L. NÉVOT : *Rev. Phys. Appl.*, 11:113, 1976. 24, 63
- [15] L. NÉVOT et P. CROCE : Caractérisation des surfaces par réflexion rasante de rayons x. Application à l'étude du polissage de quelques verres silicates. *Rev. Phys. Appl.*, 15:761–779, 1980. 24, 63
- [16] V. GEHANNO, A. MARTY, Y. SAMSON, B. GILLES et A. CHAMBEROD : Magnetic susceptibility and magnetic domain configuration as a function of the layer thickness in epitaxial FePd(001) thin films ordered in the $L1_0$ structure. *J. Magn. Magn. Mater.*, 172:26–40, 1997. 27, 32
- [17] W. GRANGE, I. GALANAKIS, M. ALOUANI, M. MARET, J.-P. KAPPLER et A. ROGALEV : Experimental and theoretical x-ray magnetic-circular-dichroism study of the magnetic properties of $\text{Co}_{50}\text{Pt}_{50}$ thin films. *Phys. Rev. B*, 62:1157, 2000. 27
- [18] P. KAMP, A. MARTY, B. GILLES, R. HOFFMANN, S. MARCHESINI et M. BELAKHOVSKY : Correlation of spin and orbital anisotropies with chemical order in $\text{Fe}_{0.5}\text{Pd}_{0.5}$ alloy films using magnetic circular x-ray dichroism. *Phys. Rev. B*, 59:1105, 1999. 27
- [19] D. HALLEY, Y. SAMSON, A. MARTY, P. BAYLE-GUILLEMAUD, C. BEIGNÉ, B. GILLES et J. E. MAZILLE : Anomaly of strain relaxation in thin ordered FePd layers. *Phys. Rev. B*, 65:205408, 2002. 28
- [20] Y. SAMSON, A. MARTY, R. HOFFMANN, V. GEHANNO et B. GILLES : Magnetic domains in thin films with perpendicular anisotropy : An extensive study. *J. Appl. Phys.*, 85:4604, 1999. 32
- [21] V. GEHANNO, R. HOFFMANN, Y. SAMSON, A. MARTY et S. AUFFRET : In plane to out of plane magnetic reorientation transition in partially ordered FePd thin films. *Eur. Phys. J. B.*, 10:457–464, 1999. 32
- [22] J. C. TOUSSAINT, A. MARTY, N. VUKADINOVIC, J. B. YOUSSEF et M. LABRUNE : A new technique for ferromagnetic resonance calculations. *Computational Materials Science*, 24:175–180, 2002. 36
- [23] A. MARTY, J. C. TOUSSAINT, N. VUKADINOVIC, J. B. YOUSSEF et M. LABRUNE : A new technique for ferromagnetic resonance calculations. *J. Magn. Magn. Mater.*, 242-245:1038–1040, 2002. 36
- [24] Frédéric OTT : *Etude de couches minces magnétiques par réflectivité de neutrons polarisés. Diffusion hors spéculaire sur des structures périodiques.* Thèse de Doctorat, 1998. 38
- [25] C. FERMON, F. OTT, B. GILLES, A. MARTY, A. MENELLE, Y. SAMSON, G. LEGOFF et G. FRANCINET : Towards a 3d magnetometry by neutron reflectometry. *Physica B*, 267-268:162–167, 1999. 44
- [26] F. E. LOW : Scattering of light of very low frequency by systems of spin 1/2. *Phys. Rev.*, 96:1428, 1954. 47
- [27] M. GELL-MANN et M. I. GOLDBERGER : Scattering of low-energy photons by particles of spin 1/2. *Phys. Rev.*, 96:1433, 1954. 47
- [28] P. M. PLATZMAN et N. TZOAR : Magnetic scattering of x rays from electrons in molecules and solids. *Phys. Rev. B*, 2:3556, 1970. 47, 51

- [29] F. de BERGEVIN et M. BRUNEL : Observation of magnetic superlattice peaks by x-ray diffraction on an antiferromagnetic NiO crystal. *Phys. Lett. A*, 39:141–142, 1972. 47
- [30] F. de BERGEVIN et M. BRUNEL : Diffraction of x-rays by magnetic materials. I. General formulae and measurements on ferro- and ferrimagnetic compounds. *Acta Cryst.*, A37: 314–324, 1981. 47
- [31] M. BRUNEL et F. de BERGEVIN : Diffraction of x-rays by magnetic materials. II. Measurements on antiferromagnetic Fe₂O₃. *Acta Cryst.*, A37:324–331, 1981. 47
- [32] Doon GIBBS, D. E. MONCTON et K. L. D'AMICO : Magnetic x-ray scattering studies of the rare-earth metal holmium. *J. Appl. Phys.*, 57:3619, 1985. 47
- [33] P. M. PLATZMAN et N. TZOAR : Inelastic magnetic x-ray scattering. *J. Appl. Phys.*, 57:3623, 1985. 47
- [34] R. S. HOLT, D. LAUNDRY, D. A. CARDWELL, M. COOPER, T. NAYLOR, S. MANNINEN et P. HATTON : Polarized x-ray study of the spin-dependent compton profile of ferromagnetic iron. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A*, 243:608–610, 1986. 47
- [35] M. J. COOPER, D. LAUNDRY, D. A. CARDWELL, D. N. TIMMS et R. S. HOLT : Spin-dependent momentum distribution in iron studied with circularly polarized synchrotron radiation. *Phys. Rev. B*, 34:5984, 1986. 47
- [36] M. BLUME : Magnetic scattering of x rays. *J. Appl. Phys.*, 57:3615, 1985. 47, 50
- [37] J. P. HANNON, G. T. TRAMMELL, M. BLUME et Doon GIBBS : X-ray resonance exchange scattering. *Phys. Rev. Lett.*, 61:1245, 1988. 47, 54, 55
- [38] Doon GIBBS, D. R. HARSHMAN, E. D. ISAACS, D. B. MCWAHN, D. MILLS et C. VETTIER : Polarization and resonance properties of magnetic x-ray scattering in holmium. *Phys. Rev. Lett.*, 61:1241, 1988. 47
- [39] E. D. ISAACS, D. B. MCWHAN, C. PETERS, G. E. ICE, D. P. SIDONS, J. B. HASTINGS, C. VETTIER et O. VOGT : X-ray resonance exchange scattering in UAs. *Phys. Rev. Lett.*, 62:1971, 1989. 47
- [40] D. B. MCWHAN, C. VETTIER, E. D. ISAACS, G. E. ICE, D. P. SIDONS, J. B. HASTINGS, C. PETERS et O. VOGT : Magnetic x-ray-scattering study of uranium arsenide. *Phys. Rev. B*, 42:6007, 1990. 47
- [41] C. C. TANG, W. G. STIRLING, G. H. LANDER, Doon GIBBS, W. HERZOG, P. CARRA, B. T. THOLE, K. MATTENBERGER et O. VOGT : Resonant magnetic scattering in a series of uranium compounds. *Phys. Rev. B*, 46:5287, 1992. 47
- [42] A. FASOLINO, P. CARRA et M. ALTARELLI : X-ray resonant magnetic scattering from surfaces. *Phys. Rev. B*, 47:3877, 1993. 47
- [43] G. M. WATSON, Doon GIBBS, G. H. LANDER, B. D. GAULIN, L. E. BERMAN, HJ. MATZKE et W. ELLIS : X-ray scattering study of the magnetic structure near (001) surface of UO₂. *Phys. Rev. Lett.*, 77:751, 1996. 47
- [44] D. MANNIX, A. STUNAU, N. BERNHOEFT, L. PAOLASINI, G. H. LANDER et C. VETTIER : Resonant enhancements at nonmagnetic ions : New possibilities for magnetic x-ray scattering. *Phys. Rev. Lett.*, 86:4128, 2001. 48
- [45] M. van VEENENDAAL : Resonant x-ray magnetic scattering at non-magnetic ions. *Phys. Rev. B*, 67:134112, 2003. 48

- [46] A. BARBIER, C. MOCUTA, W. NEUBECK, M. MULAZZI, F. YAKHOU, K. CHESNEL, A. SOLLIER, C. VETTER et F. de BERGEVIN : Surface and bulk spin ordering of antiferromagnetic materials : NiO(111). *Phys. Rev. Lett.*, 93:257208, 2004. 48
- [47] C. KAO, J. B. HASTINGS, E. D. JOHNSON, D. P. SIDONS, G. C. SMITH et G. A. PRINZ : Magnetic-resonance exchange scattering at the iron L_{II} and L_{III} edges. *Phys. Rev. Lett.*, 65:373, 1990. 48
- [48] C. C. KAO, C. T. CHEN, E. D. JOHNSON, J. B. HASTINGS, H. J. LIN, G. H. HO, G. MEIGS, J. M. BROT, S. L. HULBERT, Y. U. IDZERDA et C. VETTER : Dichroic interferences effects in circularly polarized soft-x-ray resonant magnetic scattering. *Phys. Rev. B*, 50:9599, 1994. 48
- [49] J. M. TONNERRE, M. JERGEL, D. RAOUX, M. IDIR, G. SOULLIER, R. BARCHEWITZ et B. RODMACQ : Resonant magnetic soft x-ray diffraction at Ni L_{III} edge : ferro- and antiferromagnetism in Ag-Ni multilayers. *J. Magn. Magn. Mater.*, 121:230–233, 1993. 48
- [50] J. M. TONNERRE, L. SÈVE, D. RAOUX, G. SOULLIÉ, B. RODMACQ et P. WOLFERS : Soft x-ray resonant magnetic scattering from a magnetically coupled Ag/Ni Multilayer. *Phys. Rev. B*, 75:740, 1995. 48
- [51] J. M. TONNERRE, L. SÈVE, A. BARBARA-DECHELETTE, F. BARTOLOMÉ, D. RAOUX, V. CHAKARIAN, C. C. KAO, H. FISCHER, S. ANDRIEU et O. FRUCHART : Soft x-ray resonant magnetic reflectivity study of thin films and multilayers. *J. Appl. Phys.*, 83:6293, 1998. 48, 56
- [52] N. JAOUEN, J. M. TONNERRE, D. RAOUX, E. BONTEMPI, L. ORTEGA, M. MÜENZENBERG, W. FELSCH, A. ROGALEV, H. MURUYAMA et M. SUZUKI : Ce $5d$ magnetic profile in Fe/Ce multilayers for the α and γ -like Ce phases by x-ray resonant magnetic scattering. *Phys. Rev. B*, 66:134420, 2002. 48, 72
- [53] N. JAOUEN, G. van der LAAN, T. K. JOHAL, F. WILHELM, A. ROGALEV, S. MYLONAS et L. ORTEGA : Oscillatory behavior of $5d$ magnetic moments in Fe/W multilayers. *Phys. Rev. B*, 70:094417, 2004. 48, 72
- [54] J. F. MACKAY, C. TEICHERT, D. E. SAVAGE et M. G. LAGALLY : Element specific magnetization of buried interfaces probed by diffuse x-ray resonant magnetic scattering. *Phys. Rev. Lett.*, 77:3925, 1996. 48
- [55] T. P. A. HASE, I. PAPE, B. K. TANNER, H. DÜRR, E. DUDZIK, G. van der LAAN, C. H. MARROWS et B. J. HICKEY : Soft-x-ray magnetic diffuse scattering from strongly coupled Cu/Co multilayers. *Phys. Rev. B*, 61:R3792, 2000. 48
- [56] J. J. KELLY IV, B. M. BARNES, F. FLACK, D. P. LAGALLY, D. E. SAVAGE, M. FRIESEN et M. G. LAGALLY : Comparison of magnetic- and chemical boundary roughness in magnetic films and multilayers. *J. Appl. Phys.*, 91:9978, 2002. 48
- [57] H. A. DÜRR, E. DUDZIK, S. S. DEHSI, J. B. GOEDKOOP, G. van der LAAN, M. BELAKHOVSKY, C. MOCUTA, A. MARTY et Y. SAMSON : Chiral magnetic domain structures in ultrathin FePd films. *Science*, 284:2166, 1999. 48, 61
- [58] E. DUDZIK, S. S. DEHSI, H. A. DÜRR, S. P. COLLINS, M. D. ROPER, G. van der LAAN, K. CHESNEL, M. BELAKHOVSKY, A. MARTY et Y. SAMSON : Influence of perpendicular magnetic anisotropy on closure domains studied with x-ray resonant magnetic scattering. *Phys. Rev. B*, 62:5779, 2000. 48, 61
- [59] K. CHESNEL, M. BELAKHOVSKY, S. LANDIS, J. C. TOUSSAINT, S. P. COLLINS, G. van der LAAN, E. DUDZIK et S. S. DEHSI : X-ray resonant magnetic scattering study

- of the magnetic coupling in Co/Pt nanolines and its evolution under magnetic field. *Phys. Rev. B*, 66:024435, 2002. **48, 147, 151, 153**
- [60] J. P. HILL et D. F. MCMORROW : X-ray resonant exchange scattering : Polarization dependence and correlation functions. *Acta Crist.*, A52:236–244, 1996. **54, 59**
- [61] S. S. DHESI, H. A. DÜRR, M. MÜNZENBERG et W. FELSCH : Isolating the interface magnetocrystalline anisotropy contributions in magnetic multilayers. *Phys. Rev. Lett.*, 90:117204, 2003. **54, 136**
- [62] M. SACCHI, C. F. HAGUE, L. PASQUALI, A. MIRONE, J. M. MARIOT, P. ISBERG, E. M. GULLIKSON et J. H. UNDERWOOD : Optical constants of ferromagnetic iron via 2p resonant magnetic scattering. *Phys. Rev. Lett.*, 81:1521, 1998. **56**
- [63] J. B. KORTRIGHT, M. RICE et R. CARR : Soft-x-ray Faraday rotation at Fe $L_{2,3}$ edges. *Phys. Rev. B*, 51:10240, 1995. **56**
- [64] J. B. KORTRIGHT et K. Sang KOOG : Resonant magneto-optical properties of Fe near its 2p levels : Measurement and applications. *Phys. Rev. B*, 62:12216, 2000. **56**
- [65] H. C. MERTINS, D. ABRAMSOHN, A. GAUPP, F. SCHAFERS, W. GUDAT, O. ZAHARKO, H. GRIMMER et P. M. OPPENEER : Resonant magnetic reflection coefficients at the Fe 2p edge obtained with linearly and circularly polarized soft x rays. *Phys. Rev. B*, 66:184404, 2002. **56**
- [66] H. C. MERTINS, P. M. OPPENEER, J. KUNES, A. GAUPP, D. ABRAMSOHN et F. SCHÄFERS : Observation of the x-ray magneto-optical Voigt effect. *Phys. Rev. Lett.*, 87:047401, 2001. **56**
- [67] H. C. MERTINS, F. SCHÄFERS, X. Le CANN, A. GAUPP et W. GUDAT : Faraday rotation at the 2p edges of Fe, Co and Ni. *Phys. Rev. B*, 61:R874, 2000. **56**
- [68] J. F. PETERS, J. MIGUEL, M. A. de VRIES, O. M. TOULEMONDE, J. B. GOEDKOOP, S. S. DHESI et N. B. BROOKES : Soft x-ray resonant magneto-optical constants at the Gd $M_{4,5}$ and Fe $L_{2,3}$ edges. *Phys. Rev. B*, 70:224417, 2004. **56**
- [69] S. W. LOVESEY : Magnetic photon scattering. *J. Phys. C*, 20:5625–5639, 1987. **58**
- [70] S. W. LOVESEY et S. P. COLLINS : *X-Ray Scattering and Absorption by Magnetic Materials*. Oxford Science Publications, 1996. **58**
- [71] K. CHESNEL, M. BELAKHOVSKY, A. MARTY, G. BEUTIER, G. van der LAAN et S. P. COLLINS : Polarization effects in x-ray resonant magnetic scattering patterns from striped FePd films. *Physica B*, 345:148–152, 2004. **61**
- [72] D. R. LEE, S. K. SINHA, D. HASKEL, Y. CHOI, J. C. LANG, S. A. STEPANOV et G. SRAJER : X-ray resonant magnetic scattering from structurally and magnetically rough interfaces in multilayered systems. I. Specular reflectivity. *Phys. Rev. B*, 68:224409, 2003. **64, 163**
- [73] D. R. LEE, S. K. SINHA, C. S. NELSON, J. C. LANG, C. T. VENKATARAMAN, G. SRAJER et R. M. OSGOOD III : X-ray resonant magnetic scattering from structurally and magnetically rough interfaces in multilayered systems. II. Diffuse scattering. *Phys. Rev. B*, 68:224410, 2003. **64, 163**
- [74] G. BEUTIER, G. van der LAAN, K. CHESNEL, A. MARTY, M. BELAKHOVSKY, S. P. COLLINS, E. DUDZIK, J. C. TOUSSAINT et B. GILLES : Characterization of FePd bilayers and trilayers using soft x-ray resonant magnetic scattering and micromagnetic modeling. *Phys. Rev. B*, 71:184436, 2005. **67**

- [75] G. BEUTIER, A. MARTY, K. CHESNEL, M. BELAKHOVSKY, J. C. TOUSSAINT, B. GILLES, G. van der LAAN, S. P. COLLINS et E. DUDZIK : Soft x-ray resonant magnetic scattering from FePd thin films : a study of the micromagnetic components. *Physica B*, 345:143–147, 2004. 67
- [76] M. D. ROPER, G. van der LAAN, H. A. DÜRR, E. DUDZIK, S. P. COLLINS, M. C. MILLER et S. P. THOMPSON : An apparatus for measuring soft x-ray magnetic scattering. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A*, 467-468:1101–1104, 2001. 67
- [77] L. SÈVE, N. JAOUEN, J. M. TONNERRE, D. RAOUX, F. BARTOLOMÉ, M. AREND, W. FELSCH, A. ROGALEV, J. GOULON, C. GAUTIER et J. F. BÉRAR : Profile of the induced *5d* magnetic moments in Ce/Fe and La/Fe multilayers probed by x-ray magnetic-resonant scattering. *Phys. Rev. B*, 60:9662, 1999. 72
- [78] I. K. ROBINSON : Crystal truncation rods and surface roughness. *Phys. Rev. B*, 33:3830, 1986. 73
- [79] L. MANDEL et E. WOLF : *Optical Coherence and Quantum Optics*. Cambridge University Press, 1995. 83
- [80] B. J. BERNE et R. PECORA : *Dynamic Light Scattering*. John Wiley & sons, 1976. 83
- [81] M. SUTTON, S. G. J. MOCHRIE, T. GREYTAK, S. E. NAGLER, L. E. BERMAN, G. A. HELD et G. B. STEPHENSON : Observation of speckle by diffraction with coherent x-rays. *Nature*, 352:608–610, 1991. 84
- [82] S. BRAUER, G. B. STEPHENSON, M. SUTTON, R. BRÜNING, E. DUFRESNE, S. G. J. MOCHRIE, G. GRÜBEL, J. ALS-NIELSEN et D. L. ABERNATY : X-ray intensity fluctuation spectroscopy observations of critical dynamics in Fe₃Al. *Phys. Rev. Lett.*, 74:2010, 1995. 84
- [83] A. MALIK, A. R. SANDY, L. B. LURIO, G. B. STEPHENSON, S. G. J. MOCHRIE, I. McNULTY et M. SUTTON : Coherent x-ray study of fluctuations during domain coarsening. *Phys. Rev. Lett.*, 81:5832, 1998. 84
- [84] Eric DUFRESNE : *Intensity fluctuation spectroscopy with coherent X-rays*. Thèse de Doctorat, McGill University, 1995. 84
- [85] Andrei FLUERASU : *Coherent X-ray Studies of Non-Equilibrium Processes*. Thèse de Doctorat, McGill University, 2003. 84
- [86] A. FLUERASU, M. SUTTON et E. DUFRESNE : X-ray intensity fluctuation spectroscopy studies on phase-ordering systems. *Phys. Rev. Lett.*, 94:055501, 2005. 84
- [87] C. MOCUTA, H. REICHERT, K. MECKE, H. DOSCH et M. DRAKOPOULOS : Scaling in the time domain : Universal dynamics of order fluctuations in Fe₃Al. *Science*, 308:1287, 2005. 84
- [88] J. MIAO, P. CHARALAMBOUS, J. KIRZ et D. SAYRE : Extending the methodology of x-ray crystallography to allow imaging of micrometre-sized non-crystalline specimens. *Nature*, 400:342, 1999. 84
- [89] I. K. ROBINSON, I. A. VARTANYANTS, G. J. WILLIAMS, M. A. PFEIFER et J. A. PITNEY : Reconstruction of the shapes of gold nanocrystals using coherent x-ray diffraction. *Phys. Rev. Lett.*, 87:195505, 2001. 84
- [90] G. J. WILLIAMS, M. A. PFEIFER, I. A. VARTANYANTS et I. K. ROBINSON : Three-dimensional imaging of microstructure in Au nanocrystals. *Phys. Rev. B*, 90:175501, 2003. 84

- [91] J. MIAO, T. ISHIKAWA, B. JOHNSON, E. H. ANDERSON, B. LAI et K. O. HODGSON : High resolution 3d x-ray diffraction microscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 89:088303, 2002. 84
- [92] X. XIAO et Q. SHEN : Wave propagation and phase retrieval in Fresnel diffraction by a distorted object approach. *Phys. Rev. B*, 72:033103, 2005. 84
- [93] I. A. VARTANYANTS, I. K. ROBINSON, J. D. ONKEN, M. A. PFEIFER, G. J. WILLIAMS, F. PFEIFFER, H. METZGER, Z. ZHONG et G. BAUER : Coherent x-ray diffraction from quantum dots. *Phys. Rev. B*, 71:245302, 2005. 84
- [94] K. CHESNEL, M. BELAKHOVSKY, F. LIVET, S. P. COLLINS, G. van der LAAN, S. S. DEHSI, J. P. ATTANÉ et A. MARTY : Soft-x-ray magnetic speckles from a nanostructured FePd wire. *Phys. Rev. B*, 66:172404, 2002. 84
- [95] K. CHESNEL, M. BELAKHOVSKY, G. van der LAAN, F. LIVET, A. MARTY, G. BEUTIER, S. P. COLLINS et A. HAZNAR : Tracking the local reversal processes in nanostructures by magnetic speckles. *Phys. Rev. B*, 70:180402(R), 2004. 84, 147, 151
- [96] M. S. PIERCE, R. G. MOORE, L. B. SORENSEN, S. D. KEVAN, O. HELLWIG, E. E. FULLERTON et J. B. KORTRIGHT : Quasistatic x-ray speckle metrology of microscopic magnetic return-point memory. *Phys. Rev. Lett.*, 90:175502, 2003. 84, 130, 134, 154, 164
- [97] M. S. PIERCE, C. R. BUECHLER, L. B. SORENSEN, J. J. TURNER, S. D. KEVAN, E. A. JAGLA, J. M. DEUTSCH, T. MAI, O. NARAYAN, J. E. DAVIES, K. LIU, J. Hunter DUNN, K. M. CHESNEL, J. B. KORTRIGHT, O. HELLWIG et E. E. FULLERTON : Disorder-induced microscopic magnetic memory. *Phys. Rev. Lett.*, 94:017202, 2005. 84, 154, 164
- [98] Arman RAHMIM : *Analysis of coherent resonant x-ray scattering and reconstruction of magnetic domains*. Thèse de Master, University of British Columbia, 1999. 84
- [99] A. RAHMIM, S. TIXIER, T. TIEDJE, S. EISEBITT, M. LÖRGEN, R. SCHERER, W. EBERHARDT, J. LÜNING et A. SCHOLL : Interference between magnetism and surface roughness in coherent soft x-ray scattering. *Phys. Rev. B*, 65:235421, 2002. 84
- [100] S. EISEBITT, M. LÖRGEN, W. EBERHARDT, J. LÜNING, J. STÖHR, C. T. RETTNER, O. HELLWIG, E. E. FULLERTON et G. DENBEAUX : Polarization effects in coherent scattering from magnetic specimen : Implications for x-ray holography and lensless imaging and correlation spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 68:104419, 2003. 84
- [101] S. EISEBITT, J. LÜNING, W. F. SCHLOTTER, M. LÖRGEN, O. HELLWIG, W. EBERHARDT et J. STÖHR : Lensless imaging of magnetic nanostructures by x-ray spectroholography. *Nature*, 432:885, 2004. 84, 139, 160
- [102] S. EISEBITT, M. LÖRGEN, W. EBERHARDT, J. LÜNING, S. ANDREWS et J. STÖHR : Scalable approach for lengthless imaging at x-ray wavelengths. *Applied Physics Letters*, 84:3373, 2004. 84
- [103] Federica VENTURINI : *Soft X-ray photoemission spectroscopy*. Thèse de Doctorat, Université Joseph Fourier, 2005. 89
- [104] *Eric Wissenstein's world of mathematics*. www.mathworld.wolfram.com. 102
- [105] F. LIVET, F. BLEY, R. CAUDRON, E. GEISLER, D. ABERNATHY, C. DETLEFS, G. GRÜBEL et M. SUTTON : Kinetic evolution of unmixing in an AlLi alloy using x-ray intensity fluctuation spectroscopy. *Phys. Rev. E*, 63:036108, 2001. 105
- [106] F. LIVET, F. BLEY, J. MAINVILLE, R. CAUDRON, S. G. J. MOCHRIE, E. GEISLER, G. DOLINO, D. ABERNATHY, G. GRÜBEL et M. SUTTON : Using direct illumination CCDs as high-resolution area detectors for x-ray scattering. *Nucl. Instr. Meth.*, 451:596–609, 2000. 114

- [107] K. CHESNEL, G. van der LAAN, F. LIVET, G. BEUTIER, A. MARTY, M. BELAKHOVSKY, A. HAZNAR et S. P. COLLINS : Hysteresis effect in FePd magnetic stripes studied by coherent soft x-ray resonant magnetic scattering. *J. Synchrotron Rad.*, 11:469–475, 2004. [134](#), [164](#)
- [108] S. LANDIS, B. RODMACQ et B. DIENY : Magnetic properties of Co/Pt multilayers deposited on silicon dot arrays. *Phys. Rev. B*, 62:12271, 2000. [153](#)
- [109] W. E. SMITH, H. H. BARRETT et R. G. PAXMAN : Reconstruction of objects from coded images by simulated annealing. *Opt. Lett.*, 8:199, 1983. [157](#)
- [110] J. P. ATTANE, Y. SAMSON, A. MARTY, J. C. TOUSSAINT, G. DUBOIS, A. MOUGIN et J. P. JAMET : Magnetic domainwall propagation unto the percolation threshold across a pseudorectangular disordered lattice. *Phys. Rev. Lett.*, 93:257203, 2004. [163](#)

RESUME

Dans cette thèse, je présente une étude de nanostructures magnétiques par la diffusion résonante des rayons X mous. Les échantillons étudiés sont des empilements de couches minces épitaxiées d'alliages de FePd et des multicouches de Co/Pt déposées sur des substrats de Silicium nanostructurés. Dans une première partie, les échantillons sont présentés et caractérisés par des techniques conventionnelles de laboratoire, ainsi que par des mesures de neutrons. En outre, une modélisation micromagnétique est décrite. Dans une deuxième partie, la diffusion des rayons X mous par les couches de FePd est mesurée au seuil L_3 du Fer et modélisée afin de tirer des informations sur la configuration magnétique périodique des échantillons. Dans une troisième partie, j'utilise un faisceau cohérent de rayons X mous afin de caractériser en détail la configuration magnétique d'échantillons modèles. A cette fin, un dispositif instrumental est développé et une méthodologie est décrite pour le comptage des photons sur une camera CCD. Un algorithme de Monte-Carlo est proposé et discuté en vue de reconstruire la configuration magnétique exacte d'un réseau de nanolignes à aimantation perpendiculaire.

Mots clés : rayons X mous, diffraction résonante, cohérence, micromagnétisme, couches minces, nanostructures, FePd, Co/Pt, reconstruction.

SUMMARY

In this thesis, I present a study of magnetic nanostructures with soft x-ray resonant scattering. The samples are stacks of epitaxial thin layers made of FePd alloys and Co/Pt multilayers deposited on patterned Silicon substrates. In the first part, the samples are presented and characterized by means of conventional techniques and neutron measurements. Additionally, a micromagnetic modelization is described. In the second part, soft x-ray scattering from the FePd layers is measured at the L_3 -edge of Iron and modelized, in order to obtain information on the periodic magnetic configuration of the samples. In the third part, I used a soft x-ray coherent beam in order to characterize in detail the magnetic configuration of model samples. For this, an experimental set-up is developed and a methodology is described to count photons on a CCD camera. A Monte-Carlo algorithm is proposed and discussed, aiming to reconstruct the exact magnetic configuration of a nanoline grating with perpendicular magnetization.

Key words : soft X-rays, resonant scattering, coherence, micromagnetism, thin layers, nanostructures, FePd, Co/Pt, reconstruction.