



HAL
open science

Matériaux magnétiques pour l'étude de la dynamique de l'aimantation

Nicolas Bergéard

► **To cite this version:**

Nicolas Bergéard. Matériaux magnétiques pour l'étude de la dynamique de l'aimantation. Science des matériaux [cond-mat.mtrl-sci]. Université Paris Sud - Paris XI, 2010. Français. NNT: . tel-00657018

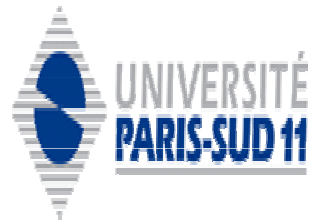
HAL Id: tel-00657018

<https://theses.hal.science/tel-00657018>

Submitted on 5 Jan 2012

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.



École Doctorale de Physique de la Région Parisienne – ED 107

Thèse de doctorat

présentée par

Nicolas Bergéard

Le 25 novembre 2010

Université Paris-Sud 11

Spécialité Physique

**Matériaux pour l'étude de la dynamique de
l'aimantation**

devant la commission d'examen :

Michel Viret	Président
Jan Vogel	Rapporteur
Eric Beaurepaire	Rapporteur
Catherine Dufour	Examinatrice
Jan Luning	Examineur
Fausto Sirotti	Directeur
Alexandra Mougin	Co-Directrice

Remerciements

Tout d'abord, j'aimerais remercier Jan Vogel et Eric Beaurepaire pour m'avoir fait l'honneur d'accepter d'être les rapporteurs de mon manuscrit, ainsi que pour tous leurs commentaires et la réflexion qu'ils m'ont poussé à effectuer sur mon travail. Un très grand merci à Catherine Dufour, Michel Viret et Jan Luning d'avoir également accepté de participer à mon jury.

Je voudrais remercier Michel Van Der Rest et Jean-Paul Pouget respectivement directeur du Synchrotron Soleil et du Laboratoire de Physique des Solides pour m'avoir accueilli dans leur laboratoire respectif. Je ne saurais jamais assez remercier Alexandra Mougin et Fausto Sirotti, qui ont assuré l'encadrement de ma thèse. Je les remercie pour leur disponibilité, les encouragements et les conseils qu'ils m'ont prodigués ainsi que pour ce que j'ai pu apprendre au cours de ces trois années. Je suis également reconnaissant du travail énorme qu'ils ont réalisé pour les nombreuses relectures, corrections et améliorations apportées à ce manuscrit ainsi qu'à la soutenance.

Un grand merci à Mathieu Silly, qui est probablement l'une des personnes que j'aurai la plus sollicité à Soleil et qui jour après jour a toujours répondu présent. Il a énormément participé au bon déroulement et à l'aboutissement de ma thèse.

Je souhaiterais remercier tout particulièrement Jacques Ferré et Jean-Pierre Jamet pour le travail que nous avons effectué ensemble et de m'avoir permis de participer à des expériences très enrichissantes. Merci pour la sympathie que vous m'avez témoigné et merci beaucoup à Jacques pour les nombreuses relectures de la partie concernant les films ultramines CoPt. Ce fut un énorme plaisir de travailler avec eux.

La cotutelle fut une expérience passionnante qui m'a permis de rencontrer beaucoup de personnes et surtout d'être en interaction avec des communautés différentes. Parmi toutes les personnes qui m'ont accompagné au cours de ce travail, je voudrais remercier tous les membres de la ligne TEMPO (Christian, Mario, Manuel, Debora, Nathan, Azzedine) ainsi que l'ensemble du groupe IDMAG (André, Jacques, Vincent, Hervé, Raphaël, Stanislas, Grégory) et tous les post-docs et thésards qui se sont succédés (Delphine, Amandine, Mathieu, Raphaël, Javier, Peter et Jean Paul). J'aimerais plus particulièrement remercier André Thiaville, Vincent Jeudy, Gregory Malinowski, Stanislas Rohart (tout comme Fausto, Mathieu, Alexandra, Jacques et Jean-Pierre) pour les nombreux commentaires et l'aide précieuse qu'ils ont apporté quant à la préparation de la soutenance. A Soleil, j'ai eu l'opportunité de travailler avec la plupart des services techniques et des scientifiques de plusieurs lignes. Je ne pourrai malheureusement pas citer tout le monde, et je présente mes excuses aux oubliés Néanmoins je voudrais remercier Stefan Kubsy pour tous ses conseils et ses astuces, Marc Bol pour les nombreuses conversations (ça sert d'avoir une manip dans le hall ouverte aux quatre vents) et plus particulièrement celles concernant les montages électroniques. Jean-Pierre Duval et Stéphane Morand, pour l'aide précieuse

pour trouver et boucher les nombreuses fuites de ma chambre. Emiliano Fonda, pour le projet EXAFS que nous avons réalisé sur son montage expérimental. Rachid Belkhou pour la semaine XPEEM à Elettra (ainsi que Andrea, Miguel et Onur, les scientifiques de la ligne Nanospectroscopy à Elettra). Daniel Ragonnet pour le prêt de matériel et ses nombreux conseils. Marie D'Angelo et Emrick Briand pour les mesures RBS. Bernard Rodmacq (SPINTEC) pour la préparation des films ultraminces Pt/Co/Pt utilisés durant ma thèse, Jacques Gierak (LPN) pour la nanostructuration FIB et Jürgen Fassbender (Dresde) pour l'irradiation hélium des couches. Merci aussi à Jean-Jacques Gallet, Fabrice Bournel et Claire Mathieu. Au LPS, j'ai eu des discussions très intéressantes avec Nicolas Charpentier, Edouard Pinsolle et David Le Bolloc'h.

Un grand merci à Michel Héritier pour m'avoir accueilli dans son M2, pour toute l'aide qu'il m'a apporté et sa sollicitude.

La thèse est une aventure, avec des hauts et des bas. Si je suis reconnaissant à l'égard de toutes les personnes qui ont contribué aux succès de cette thèse, je le suis d'autant plus pour les personnes qui m'ont toujours apporté leur soutien. Je voudrais remercier Jean-Yves, Marine, Xavier, Cécile, Victor, JC pour tous les moments que nous avons partagés au cours de ces trois années. Merci aussi à Barbara et Fanny pour les nombreuses discussions, Jean Paul et Katia pour leur sympathie, Vincent pour sa bonne humeur et Grégory pour tout ce qu'il m'a appris en si peu de temps. Je voudrai également remercier les participants de l'école HERCULES 2008. Je souhaite de tout coeur remercier ma famille (au sens large), et plus particulièrement ma mère, mon frère, ma soeur, ainsi qu'Emma et Arnaud (sa famille aussi), Erika, Jipé, Annick, Bruno (et le reste de la famille Besson), et mes grands parents. Je souhaite aussi remercier mes amis de longue date Emeric, Bertille (Charlotte aussi), Pauline, Arnaud, Camille, Joël, Emilie, Roxane, Antoine et tous mes proches.

Je termine par Claire, qui m'a apporté un soutien inconditionnel au cours de toutes ces années et qui a toujours cru au succès de ce travail. Sans elle, le résultat n'aurait sûrement pas été le même. Je la remercie pour sa patience, ses encouragements et le soutien apporté au cours de toutes ces années. Un très grand merci

Enfin je dédie ce manuscrit ainsi que l'ensemble de ce travail à la mémoire de mon père

Table des matières

Table des matières	7
1 Généralités sur le magnétisme, les alliages Co-Gd et les films Pt/Co/Pt ultraminces	17
1.1 Rappels sur le magnétisme	18
1.1.1 Les interactions magnétiques	18
1.1.1.1 Quelques définitions autour du magnétisme	18
1.1.1.2 L'interaction dipolaire	19
1.1.1.3 L'interaction d'échange	20
1.1.1.4 Le couplage spin-orbite	23
1.1.1.5 L'effet Zeeman	25
1.1.2 Compétition d'énergie	26
1.1.2.1 Le champ cristallin	26
1.1.2.2 L'anisotropie magnéto-cristalline et la magnétostriction . .	26
1.1.2.3 Les domaines magnétiques	26
1.1.3 Moment magnétique dans un champ magnétique	27
1.1.3.1 Précession d'un moment magnétique autour d'un champ magnétique	27
1.1.3.2 L'équation LLG	28
1.1.3.3 La nucléation et la propagation de parois	29
1.2 Les alliages CoGd	30
1.2.1 Sur la nature du couplage magnétique dans les alliages CoGd	30
1.2.1.1 Quelques généralités sur le cobalt	30
1.2.1.2 Quelques généralités sur le gadolinium	30
1.2.1.3 Sur la nature du couplage dans les alliages Co-Gd	31
1.2.2 Propriétés magnétiques des alliages CoGd	32
1.2.2.1 La compensation angulaire et magnétique	32
1.2.2.2 Description des propriétés magnétiques par une approche de champ moyen	33

1.2.2.3	La précession dans les alliages CoGd	34
1.2.2.4	La manipulation sub-picoseconde de l'aimantation dans les alliages RE-TM	34
1.2.2.5	L'origine de l'anisotropie magnétique dans les alliages CoGd	35
1.3	Etat de l'art sur les films ultraminces Pt/Co/Pt	36
1.3.1	Anisotropie d'un film mince Pt/CoPt	37
1.3.2	Effet de l'irradiation	37
1.3.3	Transition de réorientation de spin dans les films minces à anisotro- pie perpendiculaire	38
2	Techniques expérimentales	41
2.1	Introduction	42
2.2	Interaction photon matière	42
2.2.1	La règle d'or de Fermi	42
2.2.2	Description du processus d'interaction lumière-matière	42
2.2.2.1	L'hamiltonien d'interaction	42
2.2.2.2	L'approximation dipolaire électrique	43
2.2.2.3	Règles de transitions dipolaires électriques	43
2.3	L'absorptions des rayons X	44
2.3.1	Principe	44
2.3.2	Mesure du signal XAS	45
2.3.2.1	La fluorescence	46
2.3.2.2	Le rendement total d'électrons et l'émission Auger	47
2.3.2.3	Effet de saturation en rendement total d'électrons	50
2.3.3	Le dichroïsme magnétique des rayons X en absorption	52
2.3.3.1	Origine du dichroïsme	52
2.3.3.2	Mesures d'un signal XMCD	53
2.3.3.3	Les règles de somme	55
2.3.3.4	La microscopie PEEM	58
2.4	La magnétométrie Kerr	59
2.4.1	L'effet Kerr magnéto-optique (MOKE) : description macroscopique	60
2.4.2	Origine microscopique de l'effet Kerr	61
2.5	La photoémission (X-Ray Photoelectron Spectroscopy)	63
2.5.1	Un peu d'histoire	63
2.5.2	Principe	63
2.5.3	Le modèle à trois étapes	65
2.5.4	Les corrélations électroniques	65
2.5.4.1	Les effets de l'état fondamental	65

2.5.4.2	Les effets dus à l'état final	66
2.5.5	Applications de la spectroscopie XPS pour l'analyse quantitative . .	67
2.5.5.1	Sensibilité à la surface	67
2.5.5.2	Analyse chimique	67
2.5.5.3	Mesure d'épaisseur d'une couche	68
2.5.6	Application au magnétisme : le dichroïsme magnétique circulaire en photoémission	69
2.5.6.1	Origine du dichroïsme magnétique en photoémission . . .	69
2.5.6.2	Informations obtenues en MCD	70
2.6	Techniques annexes	71
2.6.1	Généralités sur la spectroscopie RBS (Rutherford Back Scattering).	71
2.6.1.1	Mesure de la composition	71
2.6.1.2	Mesure de l'épaisseur	72
2.6.2	Généralités sur l'EXAFS	72
2.6.2.1	Origine du régime d'oscillation	73
2.6.2.2	Théorie de l'EXAFS	73
2.6.2.3	Extraction des données	74
3	Chambre de dépôt et montages expérimentaux	75
3.1	Introduction	76
3.2	La chambre de dépôt pour les alliages CoGd	76
3.2.1	Conception d'une chambre ultravide pour le dépôt de films minces Co-Gd	76
3.2.1.1	Importance de la qualité du vide	76
3.2.1.2	L'équipement de la chambre	77
3.2.1.3	La croissance par co-évaporation	78
3.2.1.4	Les substrats	79
3.2.2	Calcul de la composition à partir des taux d'évaporation	80
3.3	Bancs de magnétométrie et de microscopie Kerr	80
3.3.1	La magnétométrie Kerr	80
3.3.2	La microscopie Kerr	81
3.4	Time resolved Experiments on Materials with PhotOemission spectroscopy : TEMPO Beamline	83
3.4.1	Description générale	83
3.4.2	Station expérimentale principale de la ligne TEMPO	85
3.4.2.1	La chambre de préparation	86
3.4.2.2	La chambre d'analyse	86
3.4.2.3	L'environnement échantillon	87

3.4.3	Mesures de spectres d'absorption sur TEMPO	87
3.4.3.1	Le rendement total d'électrons	87
3.4.3.2	Acquisition d'un spectre XAS	88
3.4.3.3	Acquisition d'un spectre XMCD	89
3.4.4	Mesures de photoémission sur la ligne TEMPO	90
3.4.4.1	Le détecteur de photoélectron	90
3.4.4.2	La photoémission résolue en temps	91
3.4.4.3	Le mode slicing	93
3.5	Conclusion	95
4	Caractérisation des alliages CoGd.	97
4.1	Introduction	98
4.2	Application de la spectroscopie RBS pour déterminer la composition et l'épaisseur absolues des films.	98
4.2.1	Le poste expérimental	98
4.2.2	Résultats et comparaison avec la balance à quartz	99
4.3	Homogénéité des échantillons.	101
4.3.1	Mise en évidence de la ségrégation du gadolinium	102
4.3.2	Ségrégation du gadolinium à température ambiante	104
4.4	Détermination de la structure des échantillons $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$ par EXAFS.	105
4.4.1	La ligne SAMBA	106
4.4.2	Protocole expérimental	106
4.4.2.1	Les échantillons	106
4.4.2.2	Précisions expérimentales	107
4.4.3	Résultats	107
4.4.3.1	XANES au seuil K du cobalt	107
4.4.3.2	EXAFS au seuil L_3 du gadolinium	109
4.5	Stabilité thermique des échantillons Co-Gd	112
4.5.1	Observation par XPS	112
4.5.2	Observation par XAS	114
4.6	Conclusions	116
5	Propriétés magnétiques	117
5.1	Introduction	118
5.2	Anisotropie magnétique des alliages $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$ déposés par co-évaporation thermique	118
5.2.1	Détermination des axes de facile aimantation	118
5.2.2	Visualisation des domaines par Microscopie PEEM	119

5.2.3	Détermination des constantes d'anisotropies	121
5.3	Propriétés magnétiques vs couche de couverture	121
5.3.1	Co ₇₀ Gd ₃₀ déposé ex-situ couvert par une couche d'or	122
5.3.1.1	Profondeur d'échantillon sondée	122
5.3.1.2	Propriétés magnétiques	122
5.3.2	Co ₈₇ Gd ₁₃ déposées ex situ sans couche de protection	124
5.3.2.1	Propreté de l'échantillon en profondeur	124
5.3.2.2	Propriétés magnétiques	124
5.3.3	Moment magnétique des atomes de cobalt et de gadolinium	125
5.3.3.1	Moment magnétique du cobalt	125
5.3.3.2	Moment magnétique du gadolinium	125
5.4	Effet de l'oxygène sur les propriétés magnétiques d'échantillon Co_xGd_{1-x}	128
5.4.1	L'oxygène dans les alliages Co-Gd	128
5.4.2	Cinétique du processus d'oxydation	129
5.5	Conclusions	132
6	Propriétés magnétiques vs. température	133
6.1	Introduction	134
6.2	Mise en évidence de la compensation magnétique à température ambiante	134
6.2.1	Observation de la compensation par magnétométrie Kerr	134
6.2.2	Confirmation par XMCD	136
6.3	Magnétisme versus Température	136
6.3.1	Préambule : le moment magnétique des atomes de cobalt et de gadolinium en champ moyen	136
6.3.2	Visualisation des domaines par XMCD	138
6.3.3	Comportement des sous réseaux magnétiques en fonction de la température	140
6.3.4	Interprétation des signaux XMCD	144
6.3.5	Mesure des cycles d'hystérésis par XMCD	147
6.4	Conclusion	150
7	Transition de réorientation de spin	155
7.1	Propriétés magnétiques d'un échantillon Pt/Co(5Å)/Pt irradié uniformément par des ions hélium	157
7.1.1	Sur le choix de l'échantillon	157
7.1.2	Mise en évidence de la transition de réorientation de spin (SRT) par magnétométrie Kerr	158
7.1.2.1	Cycles d'hystérésis sous faible champ	158
7.1.2.2	Relaxation de l'aimantation	159

7.1.2.3	Cycles d'hystérésis sous fort champ	161
7.1.2.4	Variation thermique de l'anisotropie uni axiale	161
7.1.2.5	Premières conclusions sur la nature de la SRT	163
7.2	Observation des domaines magnétiques	165
7.2.1	Protocole expérimental	165
7.2.2	Dépendance de la structure en domaines magnétiques en fonction de la température	165
7.2.3	Effet du champ magnétique sur la structure en rubans	168
7.3	Transition de réorientation de spin et diagramme de phases	169
7.3.1	Récapitulatif des paramètres utiles pour l'étude de la SRT	169
7.3.2	Evolution thermique des composantes de l'aimantation	169
7.3.3	Diagramme des phases magnétiques	171
7.4	Régime de fluctuation autour de la SRT	172
7.4.1	Acquisition des images	173
7.4.2	Rôle du piégeage sur les fluctuations	174
7.5	Régime de fluctuations en présence de défauts périodiques	176
7.5.1	L'échantillon	176
7.5.2	Observation de la structure magnétique et des fluctuations	178
7.5.3	Caractérisation des échelles de temps mises en jeu	180
7.6	Conclusions	188

Introduction

La manipulation ultrarapide de l'aimantation est devenue un enjeu technologique majeur. Les processus permettant de contrôler l'aimantation s'étendent sur une gamme temporelle importante, allant des temps caractéristiques supérieurs à la nanoseconde pour la nucléation et propagation de paroi [1, 2], aux temps caractéristiques de l'ordre de la centaine de picosecondes pour la précession. La précession a longtemps été considérée comme le processus déterministe le plus rapide pour retourner l'aimantation avec la prédiction d'une limite à 2 picosecondes [3]. L'avènement des laser pulsés avec des impulsions sub-picosecondes a permis de pousser plus loin l'étude du comportement de l'aimantation à des temps très courts. Beaurepaire et collaborateurs ont mis en évidence un processus d'amortissement de l'aimantation sur une échelle de 500 fs dans le nickel [4] et de 100 fs dans des alliages CoPt [5]. Ce phénomène, qui porte le nom de désaimantation ultrarapide, a été confirmé et prêté à plusieurs interprétations [6, 7, 8, 9]. Les travaux d'Hohlfeld et collaborateurs ont démontré qu'il est possible d'induire un renversement d'aimantation en utilisant des impulsion femtosecondes dans des alliages FeCoGd sous champ magnétique [10]. Raising et collaborateurs ont mis en évidence la possibilité de manipuler l'aimantation avec le champ magnétique induit par les photons, dans le même type d'échantillon [11]. Le principe du processus repose sur l'effet Faraday inverse, grâce auquel il a été démontré qu'il est possible d'obtenir un mode de lecture-écriture d'un bit magnétique en moins de 20 ps [12]. Si les alliages FeCoGd ont été utilisés comme système modèle pour l'observation de l'effet Faraday inverse, l'existence dans les composés ferrimagnétiques, d'une température de compensation angulaire et magnétique permet d'atteindre des régimes précessionnel de l'ordre de la dizaine GHz [13, 14]. La dynamique à l'échelle de la femtoseconde reste un défi théorique majeur pour les physiciens, et de nombreuses recherches sont menées pour pousser de plus en plus loin la connaissance dans ce sujet.

L'utilisation d'un laser pulsé femtoseconde couplé au rayonnement Synchrotron et le développement d'expérience de "slicing" [15] ont ouvert la voie pour des mesures XMCD résolues en temps [16]. Les mêmes développements techniques sont en cours d'installation à Soleil. Notre intérêt à l'étude des processus ultrarapides de renversement de l'aimantation renforcé par la conviction que les études de spectroscopies de photoélectrons apportent dans ce domaine des connaissances essentielles nous ont conduits à démarrer une activité de recherche sur les alliages terres-rares métaux de transition (RE-TM). L'intérêt de ces alliages repose sur une anisotropie magnétique élevée ainsi qu'une température de Curie accessible par les densités de puissance des lasers. Ce thème de recherche n'ayant jamais été abordé ni sur TEMPO, ni dans le groupe IDMAG, m'a confronté aux difficultés inhérentes à un nouveau sujet (production des échantillons, caractérisation systématique et optimisation). Dans le cadre de la thèse, j'ai développé une chambre de croissance répondant aux contraintes liées au dépôt de terres rares, puis j'ai caractérisé les pro-

priétés magnétiques de ces alliages. L'objectif principal était de maîtriser la production d'échantillons avec les propriétés magnétiques adaptées aux mesures pompes sondes.

En parallèle, j'ai travaillé sur les systèmes modèles largement étudiés au LPS que sont les films ultraminces Pt/Co(5Å)/Pt possédant une anisotropie magnétique uniaxiale perpendiculaire à sa surface. Cette propriété rend ces systèmes très intéressants au point de vue technologique pour l'enregistrement magnéto-optique haute densité. En effet, la taille minimale des cellules codant un bit d'information est imposée par le rapport entre l'énergie d'anisotropie et l'énergie thermique. Diminuer la taille du bit nécessite l'augmentation de la constante d'anisotropie, pour assurer la stabilité du média. L'utilisation de matériau à anisotropie perpendiculaire permet également de diminuer la portée des interactions dipolaires entre cellules voisines et donc d'augmenter la densité. Outre les perspectives technologiques offertes par les films Pt/Co(5Å)/Pt, ils ont également un intérêt fondamental de par leur caractère quasiment bidimensionnel. Les systèmes magnétiques à 2D isotropes ne présentent pas d'ordre à longue portée, mais une anisotropie permet de le restaurer [17]. Dans les films magnétiques 2D à anisotropie perpendiculaire, la compétition entre les interactions à courte portée et à longue portée vont résulter en un diagramme de phases magnétiques riches [18]. Dans les films ultraminces Pt/Co(5Å)/Pt, j'ai mené en particulier une étude des phases magnétiques en fonction de la température dans ces couches 2D.

Le manuscrit résume les efforts menés pour maîtriser la croissance, et caractériser les propriétés magnétiques d'alliage CoGd.

Dans le chapitre 1 je présente brièvement les notions de base du magnétisme qui seront utilisées dans ce manuscrit. J'introduis les propriétés magnétiques des alliages amorphes CoGd ainsi que des films ultraminces Pt/Co(5Å)/Pt. Dans le cas des alliages, je détaille l'origine du couplage antiferromagnétique entre le cobalt et le gadolinium qui est à la base des propriétés magnétiques particulières de ces composés et je consacre quelques lignes aux expériences publiées concernant la dynamique ultrarapide de l'aimantation. Pour les films de Pt/Co(5Å)/Pt, la discussion rappelle l'effet de l'irradiation par des ions hélium sur les propriétés magnétiques, ainsi que le comportement de l'anisotropie magnétique en fonction de la température.

Dans le chapitre 2 je présente les principales techniques expérimentales utilisées durant ma thèse : l'absorption des rayons X (XAS), la photoémission (XPS) et l'effet Kerr (MOKE). J'insiste sur l'utilisation des deux premières techniques pour la caractérisation des propriétés magnétiques de films minces de CoGd : le dichroïsme magnétique circulaire des rayons X en absorption (XMCD) et en photoémission (MCD).

Dans le chapitre 3, je décris les montages expérimentaux utilisés pendant ma thèse. Je commence avec la description de la chambre de croissance que j'ai développée pour la

production d'échantillons CoGd. La deuxième partie de ce chapitre est consacrée à la description des bancs de magnétométrie et de microscopie Kerr disponibles au LPS. La troisième partie est consacrée à la ligne de lumière TEMPO à Soleil. J'insiste sur l'aspect expérimental de l'acquisition de spectres d'absorption ou de photoémission. Je conclus ce chapitre avec la description de la particularité de l'analyseur de photoélectrons pour les mesures de photoémission résolues en temps.

Dans le chapitre 4, je présente les mesures qui ont permis de déterminer la composition, les propriétés structurales ainsi que la stabilité thermique des échantillons CoGd que j'ai produits. Ce chapitre regroupe des mesures de rétrodiffusion Rutherford, d'EXAFS et de photoémission.

Dans le chapitre 5, j'ai regroupé les informations concernant les propriétés magnétiques à température ambiante des échantillons CoGd. Je discute de l'anisotropie magnétique de mes films, de l'importance de la couche de protection et de l'effet de l'oxygène sur les propriétés magnétiques.

Le chapitre 6 présente une étude des propriétés magnétiques d'un alliage CoGd présentant un gradient latéral de composition en fonction de la température. L'utilisation combinée de l'effet Kerr magnéto-optique et du dichroïsme magnétique circulaire permet de mettre en évidence la compensation magnétique.

Dans le chapitre 7, je présente une étude sur la transition de réorientation de spin dans les films Pt/Co(5Å)/Pt et sur le régime de fluctuations qui l'accompagne. Cette étude a pour principal objectif de fournir une base expérimentale pour établir un modèle théorique prenant en compte l'aspect dynamique de cette transition, modèle qui fait défaut actuellement.

Chapitre 1

**Généralités sur le magnétisme, les alliages
Co-Gd et les films Pt/Co/Pt ultraminces**

Dans ce chapitre, mon objectif est de rappeler les notions de magnétisme indispensables pour la compréhension des phénomènes mis en jeu dans cette thèse ainsi que de rappeler quelques résultats sur les alliages CoGd et les films ultraminces Pt/Co/Pt. Je démarrerai avec les concepts fondamentaux et l'origine de l'ordre magnétique dans la matière. La présence et la compétitions entre les différents termes d'énergie magnétiques sont à l'origine de la complexité des structures observées. Je finirai cette partie en parlant de la dynamique d'aimantation sous champ en présentant brièvement la précession et la nucléation. Concernant les alliages CoGd, je commencerai par introduire les propriétés magnétiques du cobalt et du gadolinium purs, pour ensuite décrire la nature du couplage dans les alliages. Je détaillerai les propriétés magnétiques de ces alliages en mettant l'accent sur l'existence de régimes processionnels ultrarapides. Je conclurai cette partie avec l'effet Faraday inverse et les perspectives ouvertes pour la manipulation ultrarapide de l'aimantation. Dans la troisième partie, les propriétés magnétiques des films ultraminces Pt/Co/Pt seront détaillées : l'origine de l'anisotropie perpendiculaire, les conséquences de l'irradiation par des ions hélium. J'introduirai le concept de transition de réorientation de spin.

1.1 Rappels sur le magnétisme

1.1.1 Les interactions magnétiques

1.1.1.1 Quelques définitions autour du magnétisme

A tout moment cinétique \vec{J} associé à une particule chargée correspond un moment magnétique $\vec{\mu}_J$ tel que $\vec{\mu}_J = -g\mu_B\vec{J}$ avec μ_B le magnéton de Bohr et g le facteur de Landé. Dans le cas d'un électron dans le potentiel de l'atome, il existe deux contributions au moment cinétique, le moment cinétique orbital \vec{L} correspondant à l'orbite autour du noyau, et le moment cinétique intrinsèque \vec{S} , le spin de l'électron. Dans une première approche (qui sera raffinée dans la suite), il est possible de définir le moment orbital total \vec{L} et le moment de spin total \vec{S} de l'atome en sommant les contributions individuelles des électrons. A ces moments cinétiques sont associés les moments magnétiques orbital $\vec{\mu}_l$ et de spin $\vec{\mu}_s$. Le facteur de Landé associé au moment orbital est de 1 et le facteur de Landé associé au moment de spin est de 2. Les grandeurs définies jusqu'à présent concernent le magnétisme atomique. Le moment magnétique total \vec{m} est défini comme la somme du moment orbital et du moment de spin. L'aimantation \vec{M} d'un matériau se définit comme la densité volumique de moments magnétiques dans la matière avec $\vec{M} = \frac{1}{V} \sum \vec{m}_i$.

1.1.1.2 L'interaction dipolaire

Tout moment magnétique rayonne un champ magnétique \vec{H}_{dip} qui va perturber la distribution des moments magnétiques voisins (figure 1.1). L'interaction mutuelle de tous les dipôles magnétiques est appelée l'interaction dipolaire. L'énergie d'interaction dipolaire E_{dip} entre deux moments \vec{m}_1 et \vec{m}_2 dont les barycentres de pseudo-charges sont distants d'un vecteur \vec{r} est donnée par l'équation 1.1. Cette équation montre que l'énergie d'interaction dipolaire qui va définir la configuration la plus stable dépend de l'orientation respective des dipôles en interaction. La figure 1.2 représente quatre configurations différentes pour les moments \vec{m}_1 et \vec{m}_2 , dont les valeurs d'énergie dipolaires sont $-\frac{1}{r^3}m_1m_2$ (a), $\frac{1}{r^3}m_1m_2$ (b), $-\frac{2}{r^3}m_1m_2$ (c), $\frac{2}{r^3}m_1m_2$ (d). Les configurations les plus stables sont celles présentant les minimum d'énergie, à savoir la configuration (a) pour des moments perpendiculaires à \vec{r} et (c) pour des moments parallèles à \vec{r} . Ces configurations minimisent le nombre de pseudo-charges magnétiques libres.

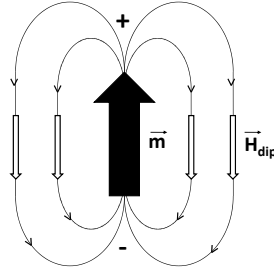


Fig. 1.1 : Champ rayonné par un dipôle magnétique. Les signes + et - désignent respectivement des pseudo-charges magnétiques.

$$E_{\text{dip}} = \frac{1}{r^3}(\vec{m}_1 \cdot \vec{m}_2 - 3(\vec{m}_1 \cdot \vec{r})(\vec{m}_2 \cdot \vec{r})) \quad (1.1)$$

La figure 1.3 représente le cas d'un film magnétique où les moments sont orientés perpendiculairement au plan de l'échantillon. Les moments créent à l'extérieur de l'échantillon un champ magnétique, \vec{H}_{fuite} dit champ de fuite, dont les lignes de champ se referment dans l'échantillon. Dans l'échantillon, les lignes de champ de fuite induisent un champ magnétique, le champ démagnétisant, \vec{H}_d , opposé aux moments magnétiques. C'est l'origine de l'anisotropie de forme. En absence d'autres termes d'anisotropie, l'axe de facile aimantation, l'axe vers lequel l'aimantation va spontanément s'orienter, est celui qui minimise l'énergie dipolaire et donc l'effet du champ démagnétisant. Dans un film mince, où l'épaisseur est faible devant les dimensions latérales, l'anisotropie favorise une aimantation dans le plan, où les moments sont orientés dans la même direction. L'expérience montre que certains matériaux présentent une aimantation spontanée non nulle à température

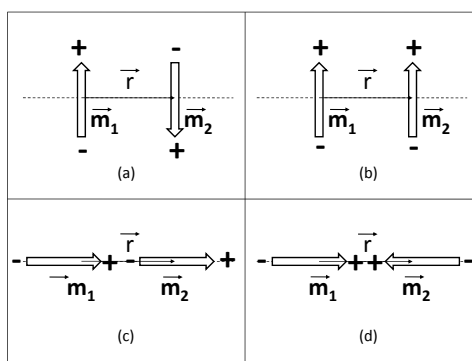


Fig. 1.2 : configuration des dipôles magnétiques en interaction dans le cas perpendiculaire (a et b) et dans le cas planaire (c et d).

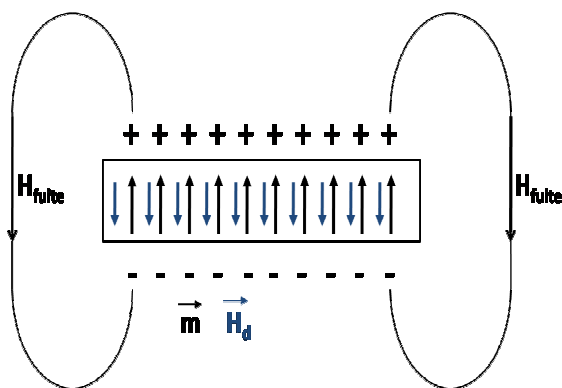


Fig. 1.3 : Champ magnétique rayonné par les moments d'un échantillon magnétique où les moments sont orientés perpendiculairement au plan.

ambiante. Pourtant, l'interaction dipolaire est trop faible pour interpréter l'existence d'une aimantation spontanée dans le cas du fer, du cobalt et du nickel par exemple. Pour expliquer ce phénomène, Pierre Weiss a proposé le modèle du champ moléculaire (ou champ moyen). L'origine de ce champ a été attribuée à l'interaction entre les moments magnétiques qui tend à favoriser une configuration ordonnée même en l'absence d'un champ magnétique. C'est un mécanisme d'origine quantique qui est à l'origine du champ moléculaire, l'interaction d'échange.

1.1.1.3 L'interaction d'échange

L'échange direct La figure 1.4 représente la probabilité de trouver un électron de spin $\pm\sigma$ à une distance r d'un électron de spin $+\sigma$. Quand le spin des électrons sont opposés, les électrons peuvent être aussi proches que le permet la répulsion Coulombienne. Pour deux électrons indiscernables (donc de même spin), en plus de la répulsion Coulombienne, il est nécessaire de prendre en compte le principe de Pauli. Dans ce cas, il existe un trou

dans la probabilité de présence, appelé le trou de Fermi, interdisant à deux électrons indiscernables de se côtoyer de trop près. Ce phénomène est l'origine de l'interaction d'échange : la répulsion Coulombienne est plus faible entre deux électrons de même spin qu'entre deux électrons de spin opposés du fait de l'existence du trou de Fermi. La stabilité du solide est assurée par le recouvrement des orbitales atomiques entre atomes plus proches voisins. Dans ce recouvrement, les électrons vont être soumis à la répulsion Coulombienne et l'interaction d'échange va favoriser un alignement des spins. C'est l'origine de l'ordre magnétique dans la matière. Néanmoins, la longueur d'échange qui détermine la portée des interactions d'échange décroît exponentiellement en fonction de la distance r entre deux électrons, ce qui implique que l'interaction d'échange est à courte portée. L'interaction d'échange ne concerne que l'orientation des spins de l'électron et n'a donc pas d'action directe sur le moment magnétique orbital.

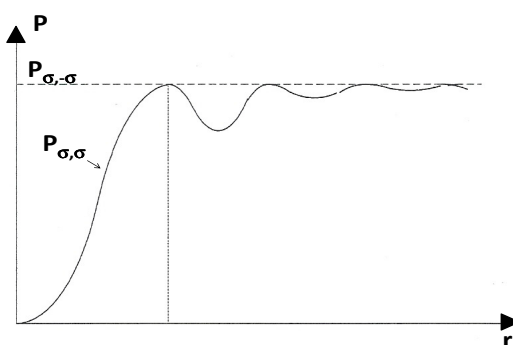


Fig. 1.4 : Probabilités de présence d'un électron de spin σ $P_{\sigma,\sigma}$ et de spin $-\sigma$ $P_{\sigma,-\sigma}$ au voisinage d'un électron de spin σ . Courbe extraite du cours de DEA de M. Héritier

L'énergie d'échange entre deux spins S_i et S_j peut se mettre sous la forme $JS_i \cdot S_j$, où J est la constante d'échange. La valeur de J est proportionnelle au recouvrement des orbitales et dépend de la distance entre les atomes. Le signe de J détermine l'ordre magnétique : pour $J > 0$ le couplage d'échange favorise l'alignement parallèle des spins (couplage ferromagnétique figure 1.5(a)) et pour $J < 0$ le couplage d'échange favorise l'alignement antiparallèle des spins (couplage antiferromagnétique figure 1.5(b)). Le couplage ferromagnétique conduit à une aimantation spontanée différente de zéro, alors que pour le couplage antiferromagnétique l'aimantation est nulle. Dans certains cas, les spins couplés antiparallèlement n'ont pas le même moment magnétique (figure 1.5(c)). Ce cas correspond au ferrimagnétisme, où l'aimantation est définie comme la différence entre les moments des deux sous réseaux magnétiques.

L'ordre magnétique dans la matière est assuré par l'interaction d'échange qui favorise un alignement des spins entre atomes plus proches voisins de par le recouvrement des

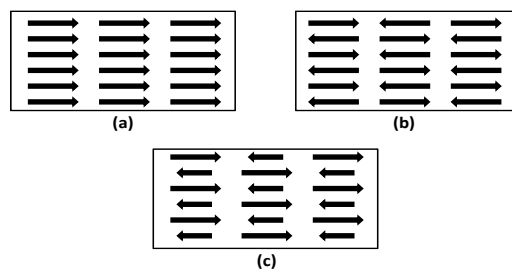


Fig. 1.5 : Différents types d'ordre magnétique en fonction du signe de la constante d'échange : (a) ferromagnétisme, (b) antiferromagnétisme et (c) ferrimagnétisme.

orbitales atomiques. Dans le cas où les moments magnétiques sont localisés autour de l'atome, l'échange direct par recouvrement n'est plus possible. L'ordre magnétique dans cette configuration est assuré par une interaction d'échange indirecte, l'interaction RKKY.

Le couplage RKKY Dans le cas où les électrons responsables des propriétés magnétiques sont délocalisés sur le réseau cristallin, même partiellement, on parle d'interaction d'échange directe. Dans le cas de moments magnétiques fortement localisés autour de l'atome, la superposition directe (ou recouvrement) des orbitales atomiques est impossible. Dans ce cas, l'ordre magnétique est véhiculé de proche en proche par des électrons de la bande de conduction, polarisés par les moments localisés. Ce couplage porte le nom de RKKY (pour Ruderman Kittel Kasuya Yosida) en hommage aux chercheurs en ayant posés les bases théoriques. Dans ce modèle, le moment localisé polarise les électrons de la bande de conduction considérés comme des électrons libres. La diffusion des électrons de conduction par les moments magnétiques va donner naissance à des oscillations de spin qui permettent de diminuer l'énergie d'interaction du système (voir figure 1.6). La polarisation est par conséquent une fonction oscillante dans l'espace, conduisant à une constante de couplage indirecte entre atome voisins, donnée par l'équation 1.2, dont le signe dépend de la distance interatomique. Dans cette équation, A représente la constante d'échange entre les électrons de conduction et le moment localisé, k_F est le vecteur de Fermi, et R la distance par rapport au moment localisé. Cette interaction est à assez longue portée, mais l'intensité du couplage est directement liée à la constante d'échange entre le moment localisé et les électrons de conduction, ainsi qu'à la distance entre les atomes. De plus, la variation du signe peut donner lieu à des couplages très complexes. Le couplage RKKY permet de décrire l'ordre magnétique dans les terres rares ainsi que le couplage entre des deux couches magnétiques séparées par une couche métallique non magnétique [19].

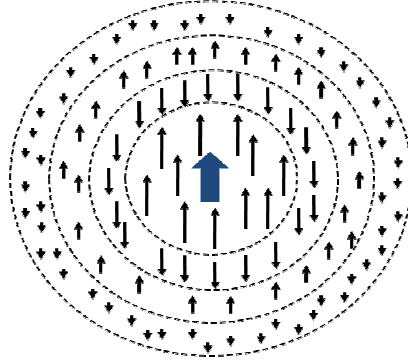


Fig. 1.6 : Schéma représentant la polarisation des électrons de conduction (flèches noires) par un moment magnétique localisé (flèche bleue) en fonction de la distance.

$$J(R) = \frac{2A^2 m_e k_F}{(2\pi)^2 \hbar^2 R^3} \cos(2k_F R) \quad (1.2)$$

1.1.1.4 Le couplage spin-orbite

La configuration électronique des électrons autour du noyau doit respecter le principe de Pauli et minimiser l'interaction Coulombienne. Les électrons ont par conséquent des orbitales d'énergie privilégiées. Une orbitale atomique est définie par son nombre quantique principal n , son moment orbital l et la projection du moment orbital m_l par rapport à l'axe de quantification. Chaque orbitale peut contenir deux électrons de spin s opposés. La fonction d'onde peut se mettre sous la forme $|n, l, m_l, s\rangle$. Une couche d'énergie correspond à l'ensemble des orbitales $|n, l, m_l, s\rangle$ pour une valeur de n et de l fixée et les projections de moments orbitaux comprises entre $-l$ et l . Le remplissage des couches se fait en suivant la loi de Hund, à savoir en maximisant le moment de spin (Respect du principe de Pauli), puis le moment orbital. Dans la configuration de plus basse énergie (état fondamental) on définit L et S comme les sommes des moments orbitaux et des moments de spin des électrons individuels. En première approximation, deux électrons sur une même orbitale atomique occupent des orbites similaires, mais possèdent des spins opposés. Ces deux orbites sont dans ce cas dégénérées. Une approche plus fine prenant en compte l'interaction entre le moment orbital angulaire et le moment intrinsèque de spin montre que l'énergie des orbitales dépend de l'orientation relative des moments. Ce phénomène est appelé couplage spin-orbite. Ce couplage crée une dépendance entre l'espace direct et l'espace de spin. Les grandeurs L et S ne sont plus de bons nombres quantiques, et il est nécessaire d'introduire le moment cinétique total défini par $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$. Les niveaux d'énergie correspondant à la levée de dégénérescences due au couplage spin-orbite sont appelés les multiplets.

Il existe deux façons de prendre en compte l'effet du couplage spin orbite sur les niveaux d'énergie : le couplage L-S ou le couplage j-j. Le couplage L-S correspond au cas où les interactions entre électrons sont plus fortes que l'interaction entre le noyau et les électrons. Le couplage est plus important entre les moments orbitaux et entre les moments de spin conduisant à un moment orbital total L et un moment de spin total S. Le couplage j-j correspond au cas où l'interaction entre le noyau et les électrons est plus forte que les interactions entre électrons. Le couplage est plus fort entre le moment orbital et le moment de spin d'un électron conduisant au moment total j associé à un électron. Dans la plupart des cas, la situation est à mi chemin entre ces deux configurations. Le couplage spin-orbite est nul dans le cas de couches électroniques pleines puisque dans ce cas $L=0$ et $S=0$. Si un électron est retiré de la couche, L et S ne sont plus nuls et le couplage spin orbite va séparer les niveaux en fonction de la valeur du moment orbital total J, défini $J=L+S$ dans le cas d'un moment de spin et d'un moment orbital dans le même sens et $J=|L-S|$ dans le cas contraire. Les règles de Hund stipulent que l'état fondamental dans ce cas est $J=|L-S|$ si la couche est moins qu'à moitié remplie et $J=L+S$ dans le cas contraire. La figure 1.7 illustre la levée de dégénérescence des états 2p due au couplage spin-orbite (couplage L-S). Quand la couche est pleine, le couplage n'a aucun effet. En retirant un électron et en représentant la configuration la plus favorable vis-à-vis des règles de Hund, le moment orbital total est $L=1$ et de spin est $S=\frac{1}{2}$. La couche est séparée entre les états pour lesquels $J=\frac{1}{2}$ (antiparallèle) et $J=\frac{3}{2}$ (parallèle). La différence d'énergie entre ces deux états est proportionnelle à l'intensité du couplage L-S. En présence du couplage

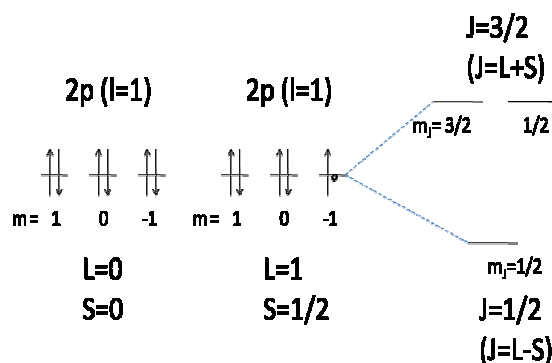


Fig. 1.7 : Schéma représentant la levée de dégénérescence de la couche 2p sous l'effet du couplage spin-orbite.

spin-orbite, les états d'énergie sont définis par le moment cinétique total J et la projection du moment cinétique m_J .

1.1.1.5 L'effet Zeeman

L'effet Zeeman correspond à l'effet d'un champ magnétique sur la configuration électronique d'un atome. Les spectres d'émission d'un élément soumis à un champ magnétique présentent des raies supplémentaires par rapport à l'élément dans son état fondamental. L'écartement entre les raies est proportionnel à l'intensité du champ magnétique. L'énergie d'un moment magnétique \vec{m} soumis à un champ magnétique \vec{H} est donnée par la relation $E = -\mu_0 \vec{m} \cdot \vec{H}$. L'état d'énergie minimum correspond à la configuration où \vec{m} est alignée au champ magnétique. D'un point de vue microscopique, le champ magnétique va se coupler avec le moment orbital μ_l et le moment de spin μ_s des électrons et abaisser le niveau d'énergie des configurations pour lesquelles les moments magnétiques sont orientés dans le sens du champ. Dans le cas où les moments de spin et d'orbite sont couplés, on définit le moment total m_J , projection de J sur l'axe de quantification. Les niveaux d'énergies sous l'action d'un champ \vec{H} prennent les valeurs $E_J = -\mu_0 \mu_B m_J H$. La levée de dégénérescence des états $2p_{3/2}$ ($J = \frac{3}{2}$) sous application d'un champ magnétique est illustrée figure 1.8.

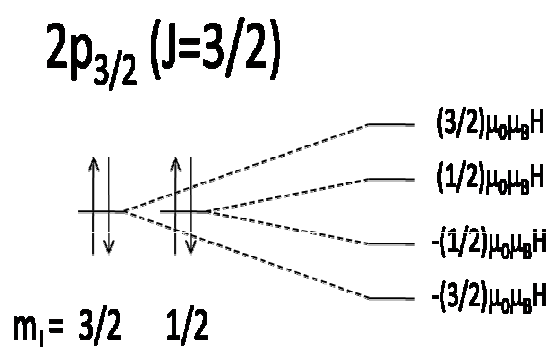


Fig. 1.8 : Schéma représentant la levée de dégénérescence des niveaux $2p_{3/2}$ sous l'effet Zeeman.

L'ensemble des quatre interactions décrites précédemment sont la base du magnétisme. La configuration magnétique macroscopique d'un échantillon résulte de la compétition entre tous ces termes d'énergies. L'état fondamental est celui qui minimise l'énergie totale. Dans la section suivante, nous allons rapidement montrer comment les propriétés magnétiques sont reliées à ces différents termes.

1.1.2 Les compétitions d'énergies et influence sur la configuration magnétique

1.1.2.1 Le champ cristallin

La cohésion des solides est assurée par le recouvrement des orbitales atomiques, ce qui implique que les fonctions d'ondes des électrons sont modulées par la présence du réseau cristallin. Le moment magnétique orbital μ_l , lié aux orbitales atomiques va donc fortement dépendre de la nature du réseau. Dans le cas des métaux de transition, les électrons 3d sont à la fois responsables des propriétés magnétiques et du recouvrement entre plus proches voisins. Le couplage spin-orbite est une perturbation devant l'énergie d'interaction avec le champ cristallin. Pour limiter au maximum l'interaction du moment magnétique avec le réseau, la configuration électronique de l'atome sera celle qui minimise le moment orbital. On parle de blocage du moment orbital (ou quenching en anglais). Les métaux de transitions comme le cobalt, le nickel et le fer ont un moment magnétique orbital très faible, et le moment est principalement porté par le moment de spin. Dans le cas des terres rares, le couplage spin-orbite est beaucoup plus fort que le champ cristallin, qui va agir comme une perturbation sur le moment J total.

1.1.2.2 L'anisotropie magnéto-cristalline et la magnétostriction

Le réseau cristallin va imposer la valeur et l'orientation du moment magnétique orbital en modifiant les orbites des électrons, ce qui induit une direction privilégiée. Le couplage spin-orbite va aligner le moment magnétique de spin suivant cette direction privilégiée du moment magnétique orbital. Cette direction sera appelé axe d'anisotropie magnéto-cristalline, puisque liée au réseau cristallin. Toutes les modifications ou contraintes sur le réseau seront répercutées sur le moment magnétique total de l'échantillon. Une des conséquences les plus familières est la magnétostriction, où l'aimantation va induire une contrainte mécanique sur le réseau. Si la constante de magnétostriction λ_s est positive la contrainte sera une élongation et dans le cas contraire une contraction. L'effet inverse de la magnétostriction consiste à manipuler l'aimantation en exerçant des contraintes sur le réseau. Les effets magnétostrictifs sont primordiaux dans le cas des films magnétiques minces epitaxiés sur des substrats présentant un désaccord de maille.

1.1.2.3 Les domaines magnétiques

Dans les matériaux magnétiques soumis à un champ magnétique \vec{H} , l'aimantation possède une valeur maximale, quand tous les spins sont orientés dans la même direction (définie par le champ). L'échantillon est alors dans un état saturé et son aimantation est appelée aimantation à saturation \vec{M}_s . Quand le champ magnétique est coupé, l'échantillon

peut rester dans son état saturé avec tous les moments dans la même direction, on dit alors qu'il est rémanent. Cet état rémanent minimise l'énergie d'échange et l'énergie d'anisotropie si la direction dans laquelle le champ a été appliqué est un axe d'anisotropie. Par contre cette configuration n'est pas un minimum concernant l'énergie dipolaire. L'aimantation totale va créer des pseudo-charges magnétiques aux surfaces de l'échantillon (voir figure 1.9). La formation de domaines magnétiques va permettre de diminuer la quantité de charges magnétiques comme l'illustre la figure 1.9. La diminution de l'énergie dipolaire lors de la création de domaines va induire un coût en énergie d'échange et en énergie d'anisotropie. Les deux domaines de la figure 1.9 sont séparés par ce que l'on appelle une paroi de domaine. Dans cette paroi l'aimantation pivote continument de l'orientation du premier domaine vers l'aimantation du second domaine. La largeur de la paroi va être déterminée par la compétition entre l'énergie d'échange A et l'énergie d'anisotropie magnétique K . L'échange aura tendance à minimiser l'angle entre deux moments consécutifs favorisant des parois larges alors que l'anisotropie va minimiser le nombre de moments non alignés à l'axe d'anisotropie, favorisant des parois étroites.

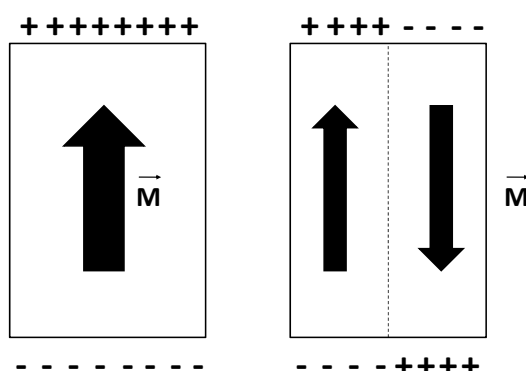


Fig. 1.9 : Formation de domaines magnétiques.

1.1.3 Moment magnétique dans un champ magnétique

1.1.3.1 Précession d'un moment magnétique autour d'un champ magnétique

Le moment magnétique \vec{m} est relié au moment cinétique \vec{M} par la relation $\vec{m} = \gamma \vec{M}$ avec γ le rapport gyromagnétique. Un moment magnétique $\gamma \vec{M}$ dans un champ magnétique \vec{H} subit un couple de la forme $\vec{T} = \gamma \vec{M} \wedge \vec{H}$. Le théorème de conservation du moment cinétique implique que l'évolution temporelle d'un moment magnétique soumis à un champ magnétique \vec{H} s'exprime suivant l'équation 1.3. Le moment magnétique précesse autour de la direction du champ magnétique avec un angle α constant et une

fréquence de précession $\omega = \gamma H$, comme illustré par la figure 1.10. L'équation 1.3 montre que l'application d'une impulsion de champ magnétique perpendiculairement au moment magnétique permet de modifier son orientation de 180° à condition d'en adapter la durée [20].

$$\frac{d\vec{\mathcal{M}}}{dt} = \gamma \vec{\mathcal{M}} \wedge \vec{H} \quad (1.3)$$

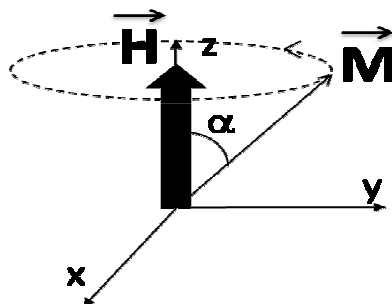


Fig. 1.10 : Précession d'un moment magnétique autour d'un champ magnétique.

1.1.3.2 L'équation LLG

L'expérience montre que l'application d'un champ magnétique a pour conséquence d'aligner les moments magnétiques dans sa direction. La précession induite par l'équation 1.3 est amortie dans le temps. Un couple phénoménologique a été introduit par Landau et Lifshitz pour prendre en compte ce phénomène d'amortissement. La conservation du moment cinétique se réécrit suivant l'équation 1.4, dans laquelle α est la constante d'amortissement de Gilbert. C'est l'équation LLG, en hommage à Landau, Lifshitz et Gilbert.

$$\frac{d\vec{m}}{dt} = \gamma \vec{m} \wedge \vec{H} + \frac{\alpha}{|\vec{m}|} \vec{m} \wedge \frac{d\vec{m}}{dt} \quad (1.4)$$

L'équation LLG est la base du micromagnétisme. Dans cette approche, la norme du moment magnétique est constante. Le champ magnétique qui apparaît dans l'équation LLG prend en considération les champs magnétiques extérieur, d'anisotropie (magnéto-cristallines ou démagnétisant) et d'échange. Il a été montré que l'application d'un courant a pour conséquence de rajouter deux couples supplémentaires dans l'équation LLG. Enfin, une approche plus complète a été proposée récemment pour rajouter la dépendance en température du moment magnétique dans l'équation LLG. Ce formalisme est connu sous le nom d'équation Landau-Lifshitz-Bloch [21]. Elle s'avère essentielle pour la compréhension des phénomènes magnétiques à l'échelle de la femtoseconde.

1.1.3.3 La nucléation et la propagation de parois

L'application d'un champ magnétique perpendiculairement au moment magnétique permet de manipuler l'orientation de ce dernier. Un autre processus de renversement de l'aimantation consiste à appliquer un champ magnétique dans le sens opposé à l'aimantation. Pour un champ suffisamment intense, l'aimantation va se retourner pour s'aligner avec le champ magnétique. A champ nul, les deux orientations de l'aimantation sont équivalentes. En appliquant un champ magnétique, la direction de l'aimantation correspondant à la direction du champ magnétique est favorable. Quand l'énergie d'interaction du champ magnétique avec l'aimantation est suffisante pour outrepasser la barrière d'énergie, déterminée par la valeur de l'anisotropie et de l'interaction d'échange, l'aimantation se retourne par nucléation. La nucléation est initiée dans une petite région de l'échantillon où les barrières d'énergie sont plus basses (anisotropie moins élevée par exemple). Une fois qu'une région est nucléée, la propagation des parois de domaines vont permettre d'agrandir la taille des domaines orientés parallèlement au champ jusqu'à saturation de l'échantillon. Ce phénomène de retournement est illustré sur la figure 1.11. Dans cette figure, l'échantillon est saturé suivant la direction $+z$. L'application d'un champ magnétique dans la direction $-z$ va nucléer des domaines où l'aimantation est dans la direction $-z$. L'augmentation de la valeur du champ va permettre d'agrandir les domaines $-z$ en créant un couple sur l'aimantation des parois, jusqu'à ce que l'échantillon soit saturé dans la direction $-z$. Le champ à partir duquel la nucléation commence est le champ de nucléation H_n , le champ qui permet la propagation des parois est le champ de propagation H_p et le champ pour lequel l'échantillon est saturé est le champ de saturation H_s .

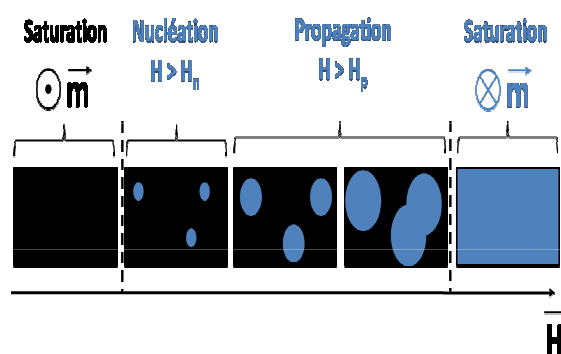


Fig. 1.11 : Illustration du processus de nucléation et propagation de paroi.

L'ensemble de cette section est évidemment loin d'être exhaustif et n'a pour unique objectif que d'introduire les notions de magnétisme nécessaires pour le contenu de ce manuscrit. Pour plus de détails à propos du magnétisme, je dirige le lecteur vers l'ouvrage de référence

publié par Siegmann et Stöhr [22].

1.2 Les alliages CoGd

1.2.1 Sur la nature du couplage magnétique dans les alliages CoGd

1.2.1.1 Quelques généralités sur le cobalt

Le cobalt est un métal de transition dont le moment magnétique est porté par les électrons 3d délocalisés, principalement dû au moment magnétique de spin. Le moment magnétique orbitale et de spin ainsi que la température de Curie du cobalt du fer et du nickel sont données dans le tableau 1.12 [23]. Le couplage magnétique dans le cobalt est dû à l'interaction d'échange directe conséquence du recouvrement des couches 3d entre atomes plus proches voisins. Le couplage est fort et conduit à une température de Curie élevée. Les électrons 3d du cobalt sont à la fois responsables des propriétés magnétiques et de

	N_e	μ_s	μ_l	T_c (K)
Fe	6.11	2.25	0.05	1043
Co	7.20	1.69	0.08	1388
Ni	8.25	0.68	0.05	672

Fig. 1.12 : nombres d'électrons N_e , moment magnétique orbital m_l , moment magnétique de spin m_s et température de Curie pour le fer, le cobalt et le nickel.

la liaison. Les propriétés magnétiques des composés à base de cobalt sont par conséquent fortement dépendantes de l'environnement chimique.

1.2.1.2 Quelques généralités sur le gadolinium

Le gadolinium est une terre rare de configuration électronique $[Xe]4f^75d^16s^2$, qui a la particularité d'avoir une couche 4f à moitié remplie. Suivant les règles de Hund, cela signifie que le moment de spin S est maximum ($S = \frac{7}{2}$) mais que le moment orbital L est nul. L'intuition voudrait que le niveau 4f à moitié remplie soit au niveau de Fermi, avec la bande majoritaire (pleine) au dessous et la bande minoritaire (vide) au dessus. Des mesures cumulées de photoémission et de photoémission inverse ont montré qu'en réalité les électrons 4f majoritaires ont une énergie de liaison de 8 eV alors que les états vides sont situés à 4 eV au dessus du niveau de Fermi. Cet écart est une conséquence des corrélations électroniques très fortes entre les électrons qui les localisent autour du noyau. Le gadolinium, à l'instar des terres rares, est néanmoins un métal, comme l'indique

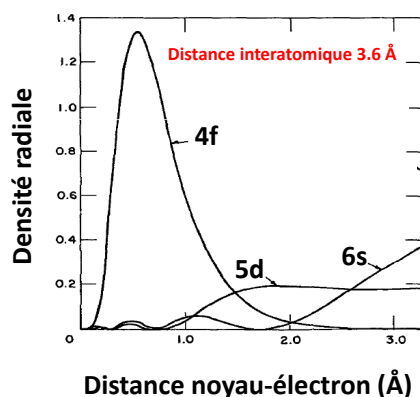


Fig. 1.13 : Distributions radiales des couches 4f, 5d et 6s du gadolinium calculées par Harmon [25].

l'existence d'un électron sur la couche 5d au niveau de Fermi. Il est intéressant de noter que la configuration électronique des terres rares est du type $[Xe]4f^N 5d^1 6s^2$ ce qui justifie la grande ressemblance des propriétés chimiques de la majorité des terres rares. Le moment magnétique du gadolinium est principalement porté par les électrons 4f ($7\mu_B$ à $T=0K$). Des mesures de spectroscopie Auger résolues en spin (SRAES) ont montré que la bande 5d est également polarisée en spin, avec un moment de $0.55\mu_B$ [24]. La figure 1.13 représente la distribution radiale des électrons 4f, 5d et 6s du gadolinium. L'extension spatiale des électrons 4f est très inférieure à la distance entre deux atomes de gadolinium, ce qui exclue le recouvrement de ces orbitales atomique entre plus proches voisins. Les électrons 5d par contre ont une extension spatiale plus importante avec un recouvrement entre plus proche voisins. L'ordre magnétique entre les électrons 4f est véhiculé par un mécanisme de type RKKY. Les moments 4f localisés polarisent les électrons de la bande de conduction, les 5d et dans une moindre mesure les 6s par un échange directe du fait du recouvrement (figure 1.13). Le couplage interatomique entre moments magnétiques localisés est indirect, ce qui explique la température de Curie de 289K du gadolinium.

1.2.1.3 Sur la nature du couplage dans les alliages Co-Gd

Le mécanisme d'interaction entre les atomes de terres rares (RE) et de métal de transition (TM) dans les alliages amorphes a fait l'objet de nombreuses recherches et n'est pas complètement élucidé aujourd'hui. Le couplage RE-TM est communément attribué à une hybridation des bandes TM-3d et RE-5d [26]. Des mesures de dichroïsme magnétique circulaire aux seuils $L_{2,3}$ (2p vers 5d) [27] de terres rares ont montré que la présence d'atomes de métal de transition modifie la polarisation de la bande 5d. Néanmoins, des mesures XMCD aux seuils $M_{4,5}$ (3d vers 4f) de la terre rare et $L_{2,3}$ du métal de transition

pour des alliages CoDy [28] ne présentent pas de signature évidente de cette hybridation. La polarisation de la couche 5d par les électrons 3d du cobalt renforce l'ordre magnétique entre les moments 4f ce qui justifie l'existence d'un moment non nul pour le gadolinium à température ambiante et la température de Curie commune au deux sous réseaux dans les alliages. Le cobalt est un ferromagnétique fort, c'est à dire que sa bande majoritaire est pleine et repose en dessous du niveau de Fermi. Par conséquent, le recouvrement est plus important entre la bande 5d du gadolinium et la bandes 3d minoritaire du cobalt, ce qui explique que l'interaction d'échange va aligner le moment 5d avec la direction minoritaire du cobalt. L'interaction d'échange est ferromagnétique entre les électrons 4f et les électrons 5d du gadolinium [24]. L'ensemble de ces interactions conduit à un couplage antiferromagnétique entre les moments 3d du cobalt et 4f du gadolinium, et à un ordre ferrimagnétique où le moment total est donné par $\vec{M} = | \vec{M}_{Co} - \vec{M}_{Gd} |$. Le moment orbital est nul dans le cas du gadolinium, donc le moment résultant n'est du qu'au moment de spin. Le recouvrement plus important entre la bande minoritaire du cobalt et la bande 5d d'une terre rare est toujours vrai, mais l'interaction d'échange ne concerne que les spins. Si le moment orbital de la terre rare est supérieur au moment de spin, et orienté antiparallèlement (vrai pour les terres rares légères) alors le couplage est ferromagnétique entre le moment résultant des terres rares et du cobalt [29].

1.2.2 Propriétés magnétiques des alliages CoGd

1.2.2.1 La compensation angulaire et magnétique

Le couplage antiferromagnétique entre deux espèces magnétiques différentes est à l'origine de l'existence de deux températures de compensation :

- La température de compensation magnétique T_M quand $\vec{M}_{Co} = -\vec{M}_{Gd}$.
- La température de compensation angulaire T_L quand $\vec{A}_{Co} = -\vec{A}_{Gd}$ avec $\vec{A}_i = \frac{\vec{M}_i}{\gamma_i}$.

Il a été montré [14] que les températures de compensation angulaire et magnétique sont légèrement différentes l'une de l'autre dans les alliages CoGd. Cet écart est dû à la différence des rapports gyromagnétiques. Pour une température inférieure à la température de compensation magnétique, le moment magnétique résultant du gadolinium est supérieur à celui du cobalt. L'application d'un champ magnétique supérieur au champ de saturation aura pour effet d'aligner dans sa direction le sous réseau de gadolinium. Le couplage entre le cobalt et le gadolinium est si fort que le champ de spinflop (c'est à dire pour aligner les deux sous réseaux avec le champ magnétique) est de l'ordre de 50 kOe [30]. Il est néanmoins moins fort que le champ pour de vrais antiferromagnétiques. En traversant la température de compensation, le moment du cobalt va devenir plus important. En présence d'un champ magnétique, c'est lui qui va s'orienter dans le sens du champ.

Les deux sous réseau font une rotation de 180° . Lorsque la température est égale à T_M le moment total défini par $\vec{M} = |\vec{M}_{Co} - \vec{M}_{Gd}|$ est nul. L'application d'un champ magnétique n'aura aucun effet sur le système, ce qui se traduit par une divergence du champ coercitif. Pour une température égale à la température de compensation angulaire, le moment cinétique total est nul. Ceci implique en théorie que le transfert de moment angulaire est infiniment efficace entre les deux sous réseaux.

1.2.2.2 Description des propriétés magnétiques par une approche de champ moyen

Dans une approche de champ moyen, les hypothèses simplificatrices suivantes sont formulées : le système de N moments magnétiques en interaction est remplacé par un système de N moments indépendants, les interactions sont remplacées par le champ ressenti par chaque atome et créé par les moments magnétiques. Dans les alliages CoGd, chaque atome ressent le champ créé par les atomes de cobalt et de gadolinium qui l'entourent. Les champs ressentis par les atomes de cobalt (\vec{H}_{Co}) et par les atomes de gadolinium (\vec{H}_{Gd}) sont donnés par les équations 1.5 et 1.6. Dans ces équations, $J_{i,j}$ est l'intégral d'échange entre l'espèce i et j , $Z_{i,j}$ est le nombre de plus proches voisins de l'élément j autour de l'élément i (coordination), g_i est le facteur de Landé.

$$H_{Co} = \frac{2J_{CoCo}Z_{CoCo}\mu_{Co}(T)}{g_{Co}^2\mu_b^2} + \frac{2J_{CoGd}Z_{CoGd}\mu_{Gd}(T)}{g_{Co}g_{Gd}\mu_b^2} \quad (1.5)$$

$$H_{Gd} = \frac{2J_{GdGd}Z_{GdGd}\mu_{Gd}(T)}{g_{Gd}^2\mu_b^2} + \frac{2J_{CoGd}Z_{CoGd}\mu_{Co}(T)}{g_{Co}g_{Gd}\mu_b^2} \quad (1.6)$$

Il a été démontré que l'évolution thermique des moments magnétiques du cobalt (μ_{Co}) et du gadolinium (μ_{Gd}) vérifient les équations 1.7 et 1.8 où la fonction $B_J(X)$ représente la fonction de Brillouin (donnée équation 1.9) [31].

$$\mu_{Co}(T) = \mu_{Co}(0)B_{0,84}\left(\frac{\mu_B\mu_{Co}(0)H_{Co}}{kT}\right) \quad (1.7)$$

$$\mu_{Gd}(T) = \mu_{Gd}(0)B_{3,5}\left(\frac{\mu_B\mu_{Gd}(0)H_{Gd}}{kT}\right) \quad (1.8)$$

$$B_S(X) = \frac{2S+1}{2S} \cotanh\left(\frac{2S+1}{2S}X\right) - \frac{1}{2S} \cotanh\left(\frac{1}{2S}X\right) \quad (1.9)$$

Ces deux équations sont couplées et la résolution de ce système passe par une résolution numérique. Les résultats de nos calculs seront confrontés aux résultats expérimentaux dans le chapitre 6.

1.2.2.3 La précession dans les alliages CoGd

Dans le cadre de l'approximation du champ moyen, l'équation LLG peut s'appliquer aux deux sous réseaux magnétiques (voir 1.10).

$$\frac{d\vec{M}_i}{dt} = \gamma \vec{M}_i \wedge \vec{H}_{\text{eff}} + \frac{\alpha_i}{|\vec{M}_i|} \vec{M}_i \wedge \frac{d\vec{M}_i}{dt} \quad (1.10)$$

Le champ magnétique \vec{H}_{eff} regroupe le champ magnétique extérieur et le champ moléculaire \vec{H}_i . Dans ce cas, on aboutit une fois de plus à un système couplé par les champs magnétiques H_i que ressentent les atomes i . Il est possible de réécrire l'équation LLG en l'appliquant au moment magnétique total, sous réserve d'introduire un rapport gyromagnétique effectif et un coefficient d'amortissement effectif, donnés respectivement par les équations 1.11 et 1.12 [14]. Dans ce cas, l'équation LLG se réécrit suivant l'équation 1.13. La définition du coefficient d'amortissement et du rapport gyromagnétique montre que ces deux grandeurs divergent au voisinage de la température de compensation angulaire. Des mesures de résonance ferromagnétique [14] et d'effet Kerr résolu en temps [13] ont mis en évidence expérimentalement une augmentation de ces paramètres autour de la température de compensation angulaire, ainsi qu'un régime précessionnel de l'ordre de la picoseconde [32].

$$\gamma_{\text{eff}}(T) = \frac{M_{\text{Co}}(T) - M_{\text{Gd}}(T)}{M_{\text{Co}}(T)/\gamma_{\text{Co}} - M_{\text{Gd}}(T)/\gamma_{\text{Gd}}} \quad (1.11)$$

$$\alpha_{\text{eff}}(T) = \frac{\alpha_{\text{Co}} M_{\text{Co}}(T)/\gamma_{\text{Co}} + \alpha_{\text{Gd}} M_{\text{Gd}}(T)/\gamma_{\text{Gd}}}{M_{\text{Co}}(T)/\gamma_{\text{Co}} - M_{\text{Gd}}(T)/\gamma_{\text{Gd}}} \quad (1.12)$$

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = \gamma_{\text{eff}} \vec{M} \wedge \vec{H} + \frac{\alpha_{\text{eff}}}{|\vec{M}|} \vec{M} \wedge \frac{d\vec{M}}{dt} \quad (1.13)$$

1.2.2.4 La manipulation sub-picoseconde de l'aimantation dans les alliages RE-TM

Il a été démontré que l'interaction entre un matériau magnétique et une impulsion laser femtoseconde peut résulter en un état transitoire caractérisé par une aimantation nulle [4]. L'interprétation proposée de ce phénomène est liée à l'interaction entre l'impulsion de photon et le gaz d'électrons. Ce dernier est rapidement thermalisé à une température qui, si elle est supérieure à la température de Curie, va localement désaimanter le matériau. Le retour à l'équilibre du système électronique se traduit par une restauration de l'aimantation [21]. A titre d'illustration, il a été démontré dans un alliage FeCoGd à anisotropie perpendiculaire qu'il est possible de manipuler l'aimantation en utilisant des impulsions laser femtosecondes polarisées circulairement [11, 12]. Le laser chauffe le système électronique au dessus de la température de Curie et le champ magnétique des photons va induire une

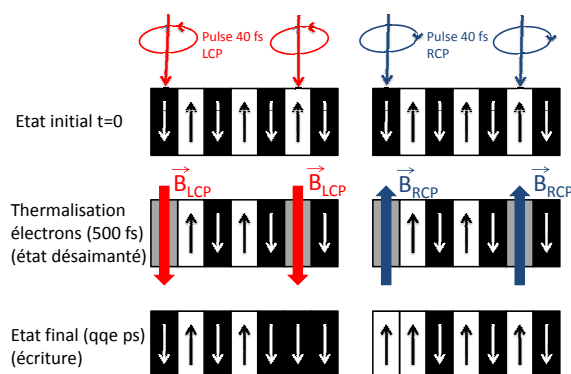


Fig. 1.14 : Illustration de l'écriture d'un domaine magnétique par effet Faraday inverse.

direction d'aimantation pour la partie de l'échantillon qui absorbe l'impulsion laser. Ce processus est illustré par la figure 1.14.

1.2.2.5 L'origine de l'anisotropie magnétique dans les alliages CoGd

Généralités sur les alliages RE-TM Les alliages terres-rares métal de transition amorphes possèdent des axes d'anisotropie magnétique malgré l'absence d'ordre à grande échelle [33, 34, 35]. Ce résultat contre-intuitif a été au coeur de nombreuses études, d'autant plus qu'aucun mécanisme ne peut expliquer convenablement la grande variété des propriétés observées. L'absence d'ordre à grande échelle a été clairement démontré [36] et l'anisotropie de forme a été écartée, car les constantes d'anisotropie dans ce cas devraient être extrêmement faibles autour de la température de compensation magnétique, ce qui n'est clairement pas le cas [37, 38]. Pour comprendre l'existence de l'anisotropie, des mécanismes à l'échelle microscopique ont été proposés. La croissance en microstructure colonnaire pour des échantillons déposés à partir de deux sources (co-évaporation ou pulvérisation) semble être le point commun à tous les alliages quelle que soit la nature des éléments [39]. Le mode de croissance a été attribué à un phénomène d'ombrage des flux qui est responsable de l'ordre à courte distance. Des mesures de diffusion aux petits angles (SAXS) sur des alliages FeTb ont montré que la croissance induit également une anisotropie dans la distribution des paires dans le plan et hors du plan [40]. L'existence de structure à l'échelle microscopique et l'anisotropie dans la répartition des paires atomiques peuvent induire des axes d'anisotropie magnétiques. Les mécanismes envisagés pour l'existence de cette anisotropie peuvent se classer dans deux catégories. La première catégorie regroupe les mécanismes basés sur l'anisotropie de l'interaction dipolaire (voir 1.1). Celle-ci favorise une aimantation suivant l'axe de la liaison entre deux espèces couplées ferromagnétiquement et perpendiculaire à la liaison dans le cas de deux espèces couplées an-

tiferromagnétiquement [41]. Dans ce cas, la répartition inhomogène des paires d'éléments [42] ou l'orientation des liaisons chimiques [43] induisent des directions privilégiées. La deuxième catégorie regroupe les mécanismes d'anisotropie liés au couplage spin-orbite comme la magnétostriction [44] ou l'anisotropie de la liaison chimique due au fort couplage spin-orbite des terres rares et de la non isotropie des moments 4f [45].

Le cas particulier du CoGd L'atome de gadolinium possède un moment orbital total nul ce qui implique que les mécanismes basés sur l'anisotropie des terres rares ne sont pas valables dans ce cas. Il a été montré que l'axe d'anisotropie pour des échantillons CoGd déposés par évaporation ou par pulvérisation cathodique est dans le plan de la couche, et que la direction de cette anisotropie est perpendiculaire au plan d'incidence des vapeurs [46]. L'ajout d'oxygène durant le dépôt [47] ou l'application d'une tension négative dans le cas de la pulvérisation cathodique [48, 49] permet d'induire une anisotropie hors du plan. L'irradiation d'alliages CoGd permet également de modifier l'axe d'anisotropie [50]. Tous ces résultats semblent confirmer que c'est la morphologie même des échantillons CoGd qui est à l'origine de l'anisotropie de ces composés en films minces. Enfin, les effets dus à l'interaction spin-orbite n'étant pas déterminant dans le cas du gadolinium, les mécanismes microscopiques à l'origine de l'anisotropie sont de type dipolaires [46].

L'étude des alliages CoGd durant cette thèse a été motivée par la possibilité offerte sur TEMPO de réaliser des mesures pompe-sonde avec à court terme l'installation d'un laser femtoseconde, puis de la mise en service du mode Slicing, permettant d'atteindre des résolutions temporelles de l'ordre de la femtoseconde. Cette partie a démontré que de par leurs caractéristiques intrinsèques, les alliages TR-TM sont des systèmes modèles pour l'étude de la dynamique ultrarapide de l'aimantation. Les chapitres 4, 5 et 6 sont consacrés à la caractérisation des propriétés structurales et magnétiques en fonction de la température d'alliages amorphes CoGd déposés par co-évaporation thermique.

1.3 Etat de l'art sur les films ultraminces Pt/Co/Pt

Les films ultraminces Pt/Co(5Å)/Pt ont été intensivement étudiés dans le groupe IDMAG (ex-OptSol), et ont fait l'objet de plusieurs thèses [51, 52, 53, 54]. Le coeur de ces travaux a été l'étude de la dynamique du renversement de l'aimantation par propagation de parois de domaines sous champ magnétique et sous courant.

1.3.1 Anisotropie d'un film mince Pt/CoPt

L'anisotropie magnétique de surface joue un rôle prépondérant sur le magnétisme des films minces. Si elle est suffisamment élevée, elle peut s'opposer à l'anisotropie magnétique de forme de l'échantillon et induire une direction de facile aimantation hors du plan. L'origine de cette anisotropie magnétique perpendiculaire (PMA) dans les films ultraminces Pt/Co(d_{Co})/Pt [55], avec d_{Co} de l'ordre de quelques monocouches, provient des effets d'interfaces exacerbés par le caractère bidimensionnel de la couche magnétique. En effet, à l'interface, le système subit une brisure de symétrie et le moment orbital n'est plus bloqué par le réseau. Cette anisotropie du moment orbital conduit à l'anisotropie du moment de spin par l'intermédiaire du couplage spin orbite comme cela a déjà été démontré dans le système Au/Co/Au [56]. L'hybridation des couches 3d du cobalt et 5d du platine renforce cette anisotropie du moment orbital [57]. L'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline par unité de volume E_K peut se mettre sous la forme de l'équation 1.14, avec K_1 et K_2 les constantes d'anisotropies de volume au premier et deuxième ordre et K_s la constante d'anisotropie de surface [58]. L'angle θ représente l'angle entre l'aimantation et la normale au plan de l'échantillon. D'après l'équation 1.14, la position d'équilibre est atteinte pour $\theta = 0$. Seuls les termes de puissance paire sont pris en compte pour respecter l'inversion du signe de l'aimantation par une inversion du temps. On définit K_u , la constante d'anisotropie uni axiale, par l'équation 1.15. En introduisant l'énergie dipolaire $\Omega = 2\pi M_s^2$, on peut définir l'anisotropie effective $K_{eff} = K_u - \Omega$ et le facteur de qualité $Q = \frac{K_u}{\Omega}$ du système. C'est le signe de K_{eff} qui va définir l'orientation de l'axe de facile aimantation.

$$E_K = K_1 \sin^2(\theta) + K_2 \sin^4(\theta) + 2 \frac{K_s}{d_{Co}} \sin^2(\theta) \quad (1.14)$$

$$K_u = K_1 + 2 \frac{K_s}{d_{Co}} \quad (1.15)$$

1.3.2 Effet de l'irradiation

Il a été démontré que l'irradiation de films ultraminces Pt/Co(d_{Co})/Pt par des ions légers permet de modifier finement leur propriétés magnétiques [59]. Pour les ions hélium, dans le cadre de faibles doses et d'énergie modérée (quelques dizaines de keV), la profondeur d'implantation est de l'ordre de 100nm, ce qui limite l'implantation d'ions dans la couche magnétique, entraînant de faibles modifications structurales. Néanmoins, les effets sur les propriétés magnétiques sont multiples puisque l'irradiation va d'une part induire une réorganisation locale des atomes et relaxer les contraintes aux l'interfaces Co/Pt, et d'autre part augmenter la rugosité des interfaces. Le cobalt et le platine étant miscibles, l'irradiation va également augmenter la taille de la couche d'alliage à l'interface CoPt.

Les conséquences sur les propriétés magnétiques sont une diminution de l'anisotropie magnétocristalline (à cause de la formation de l'alliage et de la rugosité), une diminution du champ coercitif, de l'aimantation à saturation, du nombre de centres de piégeage des parois, du champ de nucléation, du champ de propagation, de la vitesse de propagation, de l'énergie nécessaire pour la formation de paroi et enfin de la température de Curie. [60, 61, 62].

1.3.3 Transition de réorientation de spin dans les films minces à anisotropie perpendiculaire

Dans les films magnétiques ultraminces à anisotropie magnéto-cristalline perpendiculaire, la constante d'anisotropie uniaxiale K_u dépend fortement de l'épaisseur de la couche de cobalt et de la température, alors que l'énergie dipolaire Ω reste à peu près constante [63]. Par conséquent, en jouant sur l'épaisseur de la couche magnétique [64] ou la température [65], il est possible de passer d'une aimantation perpendiculaire à une aimantation dans le plan. C'est ce que l'on appelle la transition de réorientation de spin (SRT pour Spin Reorientation Transition). La SRT est une conséquence de la compétition entre l'anisotropie uniaxiale et l'énergie dipolaire, qui conduit à un diagramme de phases magnétiques très riche en fonction de la température et de l'épaisseur de l'échantillon. Dans le cas où la constante d'anisotropie du second ordre K_2 est rigoureusement nulle, la transition est brutale entre la direction perpendiculaire (\perp) et planaire ($//$). Dans le cas où K_2 est non nulle, c'est le signe de celle-ci qui va déterminer la nature de la transition. Dans le cas où K_2 est positive, la transition est progressive de perpendiculaire à planaire avec l'apparition d'un état conique des spins. L'angle du cône est donné par la relation $\sin^2(\theta) = \frac{2\pi M_s - K_u}{2K_2}$ [66]. Si K_2 est négative alors la transition de réorientation se fait par coexistence de nano domaines magnétique planaires et perpendiculaires. En général, en augmentant la température (ou l'épaisseur de la couche) les nano domaines ($//$) grandissent au détriment des domaines (\perp). L'influence du signe de la constante d'anisotropie du second ordre sur l'ordre magnétique dans l'échantillon en fonction de sa valeur est représentée figure 1.15.

L'étude de la transition de réorientation de spin dans les films ultraminces Pt/Co(d_{Co})/Pt sera traitée au chapitre 7. L'idée est de réaliser une étude qualitative complète en température par magnétométrie et microscopie Kerr, de développer un modèle pour décrire les phases magnétiques successives et de le comparer aux modèles théoriques existants [67].

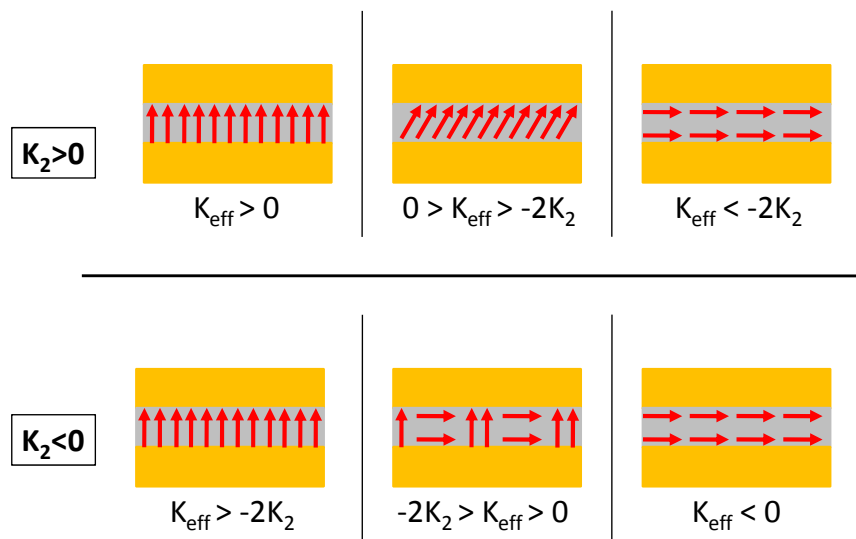


Fig. 1.15 : Orientation de l'axe de facile aimantation en fonction de la valeur de la constante d'anisotropie du deuxième ordre.

Chapitre 2

Techniques expérimentales

2.1 Introduction

Les principales techniques expérimentales utilisées dans cette thèse sont l'absorption des rayons X (XAS), la photoémission (XPS) et l'effet Kerr magnéto-optique (MOKE). Ces techniques ont un point commun, elles sont basées sur l'absorption de photons. Dans ce chapitre, les concepts de base de l'interaction entre les photons et les atomes seront exposés, puis je détaillerai chacune des techniques expérimentales précitées, en insistant sur le dichroïsme magnétique circulaire (MCD) en absorption et en photoémission. Enfin je consacrerai la dernière partie à des techniques annexes, que j'ai utilisées pour compléter la caractérisation des couches. Dans cette optique, j'introduirai la rétrodiffusion Rutherford et l'EXAFS.

2.2 Interaction photon matière

2.2.1 La règle d'or de Fermi

Lors de l'absorption d'un photon par un atome, la probabilité $P_{i,f}$ pour un des électrons de transiter de son état initial $|i\rangle$ vers un état final $|f\rangle$ inoccupé est donnée par la règle d'or de Fermi (équation 2.1). L'état final peut être soit un état du continuum (XPS) ou un état lié (XAS).

$$P_{i,f} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f | H_{int} | i \rangle|^2 \delta(E_f - E_i - h\nu) \quad (2.1)$$

Dans l'équation 2.1 la fonction de Dirac traduit la conservation d'énergie, avec E_i l'énergie de l'électron dans l'état initial $|i\rangle$, E_f l'énergie de l'électron dans l'état final $|f\rangle$ et $h\nu$ l'énergie du photon absorbé. Le premier terme de l'équation représente l'interaction entre l'état initial et l'état final, avec H_{int} l'Hamiltonien d'interaction entre l'électron et le photon. L'ensemble du processus d'absorption est la somme sur tous les états initiaux et finaux possibles.

2.2.2 Description du processus d'interaction lumière-matière

2.2.2.1 L'hamiltonien d'interaction

L'Hamiltonien d'un atome non irradié peut se mettre sous la forme $H=H_0+V$, avec H_0 l'énergie cinétique des électrons et V l'énergie d'interaction Coulombienne (répulsive entre électrons et attractive entre un électron et le noyau). On définit une onde plane par son champ électrique $\vec{E} = E\vec{x} \cos(\vec{k}\cdot\vec{r} - \omega t)$ et son champ magnétique $\vec{B} = B\vec{z} \cos(\vec{k}\cdot\vec{r} - \omega t)$. Le potentiel vecteur $\vec{A} = A\vec{x} \sin(\vec{k}\cdot\vec{r} - \omega t)$ vérifie les relations $\vec{E} = -\frac{\partial\vec{A}}{\partial t}$ et $\vec{B} = \text{rot}\vec{A}$ avec la condition $A = \frac{E}{\omega}$. L'Hamiltonien d'interaction entre l'onde électromagnétique et l'atome

est donné par l'équation 2.4. Dans cette équation, q et m sont la charge et la masse de l'électron, \vec{p} son impulsion, \vec{S} le moment cinétique intrinsèque et g_s le facteur de Landé. Les deux premiers termes représentent l'hamiltonien du système sans perturbation. Le terme quadratique en \vec{A} qui représente les processus à deux photons est négligeable dans les conditions usuelles de flux de photons (voir [68]). Le dernier terme représente le couplage entre le spin de l'électron et le champ magnétique de l'onde incidente. Tous les processus d'absorption sont contenus dans le terme $\vec{p} \cdot \vec{A}$: l'effet Kerr magnéto-optique, l'absorption résonante de photons X, ainsi que la photoémission, en sont des exemples.

$$H = \frac{(\vec{p} - q\vec{A})^2}{2m} + V + g_s \frac{q}{2m} \vec{S} \cdot \vec{B} = H_0 + V + \frac{q^2 \vec{A}^2}{2m} - \frac{q\vec{p} \cdot \vec{A}}{m} + g_s \frac{q}{2m} \vec{S} \cdot \vec{B} \quad (2.2)$$

En général il est possible de négliger le terme $\vec{S} \cdot \vec{B}$ qui représente une faible perturbation par rapport au terme $\vec{p} \cdot \vec{A}$ [69].

2.2.2.2 L'approximation dipolaire électrique

Dans une approche semi-classique, le terme en $\vec{p} \cdot \vec{A}$ de l'équation 2.4, nommé H_{int} peut se simplifier de la manière suivante : $H_{\text{int}} = -\frac{eE}{m\omega} \vec{p} \cdot \vec{x} \sin(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)$ (il suffit d'introduire l'expression du potentiel \vec{A}). Dans cette expression, \vec{k} est le vecteur de propagation de l'onde électromagnétique et \vec{r} l'extension spatiale de l'atome. Dans la gamme d'énergie allant de l'infrarouge aux rayons X mous, la longueur d'onde λ est très grande devant la taille caractéristique des atomes, ce qui se traduit par la relation $\vec{k} \cdot \vec{r} \rightarrow 0$. C'est l'origine de l'approximation dipolaire électrique, qui permet d'aboutir à la relation $H_{\text{int}} = \frac{eE}{m\omega} \vec{p} \cdot \vec{x} \sin(\omega t)$. En introduisant cette expression dans la règle d'or de Fermi (2.1), les transitions autorisées sont celles qui n'annulent pas l'élément de matrice $\langle f | \vec{p} \cdot \vec{x} | i \rangle$. En utilisant le commutateur $[H_{\text{int}}, \vec{r}] = i\hbar \frac{\vec{p}}{m}$, il est possible de faire apparaître l'opérateur dipolaire $\vec{d} = q\vec{r}$ et de réécrire la matrice d'interaction $\langle f | H_{\text{int}} | i \rangle = \langle f | \vec{r} \cdot \vec{x} | i \rangle$. Le vecteur \vec{x} est le vecteur de polarisation de l'onde électromagnétique.

2.2.2.3 Règles de transitions dipolaires électriques

Dans le formalisme quantique, l'opérateur position \vec{r} peut s'exprimer à partir des harmoniques sphériques $Y_{l,m}$ suivant les relations 2.3. Les éléments de la matrice d'interaction s'expriment sous la forme intégrale donnée par l'équation 2.4. Les seuls termes non nuls sont ceux qui vérifient les relations $|l_j - l_i| = \pm 1$ et $|m_j - m_i| = 0, \pm 1$. Ces relations montrent que les termes autorisés lors des transitions dipolaires dépendent de la polarisation de l'onde électromagnétique. Pour une onde polarisée linéairement, seules les transitions $\Delta m = 0$ sont autorisées, alors que pour les ondes polarisées circulairement (dans le plan perpendiculaire à l'axe de quantification) seules les transitions $\Delta m = \pm 1$ sont

autorisées. La loi $\Delta l = \pm 1$ traduit la conservation du moment orbital porté par le photon. L'opérateur n'a pas d'action sur le spin de l'électron, ce qui implique que le retournement de spin (spin-flip) est interdit dans les transitions dipolaires électriques. L'ensemble des conditions autorisant l'absorption d'un photon, regroupées dans le tableau 2.1(a), sont appelées règles de sélection dipolaires électriques.

$$z = r \sqrt{\frac{4\pi}{3}} Y_{1,0} \quad x \pm iy = \mp r \sqrt{\frac{8\pi}{3}} Y_{1,\pm 1} \quad (2.3)$$

$$\langle f | H_{\text{int}} | i \rangle \propto \int d\Omega Y_{l_f, m_f} Y_{1, m} Y_{l_i, m_i} \quad (2.4)$$

$\Delta l = \pm 1$	$\Delta J = 0 \pm 1$
$\Delta m = 0, \pm 1$	$\Delta L = 0 \pm 1$
$\Delta s = 0$	$\Delta S = 0$
$\Delta m_s = 0$	$\Delta M_J = 0 \pm 1$
(a)	(b)

Fig. 2.1 : Règles de sélection dipolaire sans couplage spin-orbite (a) et avec couplage LS (b))

Dans le cas où le couplage spin-orbite est présent, les règles de sélection dipolaires se réécrivent à partir des moments totaux (expressions 2.1(b)), avec J et M_J les moments angulaires (et les projections) totaux, L le moment orbital total et S le moment de spin total. Les règles de sélection dipolaire ont été énoncées dans le cadre de l'absorption d'un photon par un atome isolé. Ces relations sont applicables dans le cas de l'absorption d'un photon par un solide. Dans ce cas, les états $|i\rangle$ et $|f\rangle$ ne sont plus des états atomiques mais des états d'énergie de l'électron dans le solide. On parle alors de bandes d'énergie, et l'absorption résulte en une transition entre un niveau de coeur et la bande de valence.

2.3 L'absorptions des rayons X

2.3.1 Principe

Quand l'énergie des photons irradiant le solide correspond à la différence en énergie entre un état occupé $|i\rangle$ et un état vacant $|f\rangle$ lié à l'atome, l'électron peut transiter vers cet état libre, si cette transition est conforme aux règles de sélection dipolaires. La nature résonante du processus d'absorption fait de la spectroscopie d'absorption une technique de sélectivité chimique. La méthode la plus directe pour mesurer un signal XAS est la transmission, où l'absorption est définie comme le rapport entre l'intensité d'un faisceau

monochromatique avant et après traversée de l'échantillon. La loi qui relie l'absorption à l'intensité du faisceau, connue sous le nom de Beer-Lambert, est donnée par l'équation $I = I_0 e^{-\mu(E)d}$, avec I_0 l'intensité du faisceau incident, I l'intensité transmise, d l'épaisseur de l'échantillon et $\mu(E)$ le coefficient d'absorption, dépendant de l'énergie $E=h\nu$ des photons incidents (figure 2.2). En absorption, la dépendance du coefficient d'absorption, $\mu(E)$, par rapport à l'énergie du photon incident est mesurée et analysée. L'absorption des

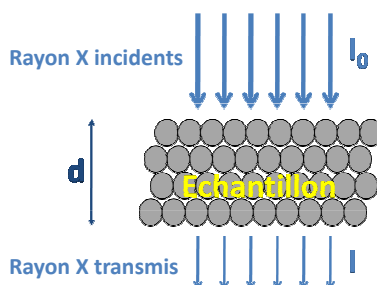


Fig. 2.2 : Schéma illustrant la loi de Beer-Lambert

photons diminue quand l'énergie du photon augmente, ce qui est illustré par la figure 2.3(a) dans le cas d'un échantillon de fer pur sur une gamme d'énergie allant des UV aux rayons X durs. La gamme des rayons X mous (50 à 1500 eV) recouvre les transitions L ($2p \rightarrow 3d$) des métaux de transition et M ($3d \rightarrow 4f$) des terres rares. A ces énergies la longueur de pénétration (inversement proportionnel à l'absorption) des photons dans la matière est trop faible pour réaliser des mesures en transmission sur des films déposés sur des substrats épais. La figure 2.3(b) représente la longueur de pénétration des photons pour une énergie comprise entre 680 et 750 eV pour une couche de fer pur. Autour des seuils L_3 ($2p_{3/2} \rightarrow 3d$) et L_2 ($2p_{1/2} \rightarrow 3d$) du fer la longueur de pénétration diminue fortement et vaut respectivement 200 \AA et 350 \AA [70]. Des mesures d'absorption par transmission dans cette gamme d'énergie ne peuvent être effectuées pour des échantillons dont l'épaisseur est faible devant la longueur de pénétration, et déposés sur des membranes transparentes aux rayons X.

2.3.2 Mesure du signal XAS

Si la mesure directe du coefficient d'absorption dans le régime des rayons X mous est difficile [70], plusieurs possibilités permettent néanmoins de mesurer un signal proportionnel à l'absorption dans la gamme des rayons X mous : la fluorescence et le rendement total d'électrons. Quand un photon correspondant à un seuil caractéristique est absorbé par un solide, un électron du niveau de coeur est promu vers les états libres de la bande

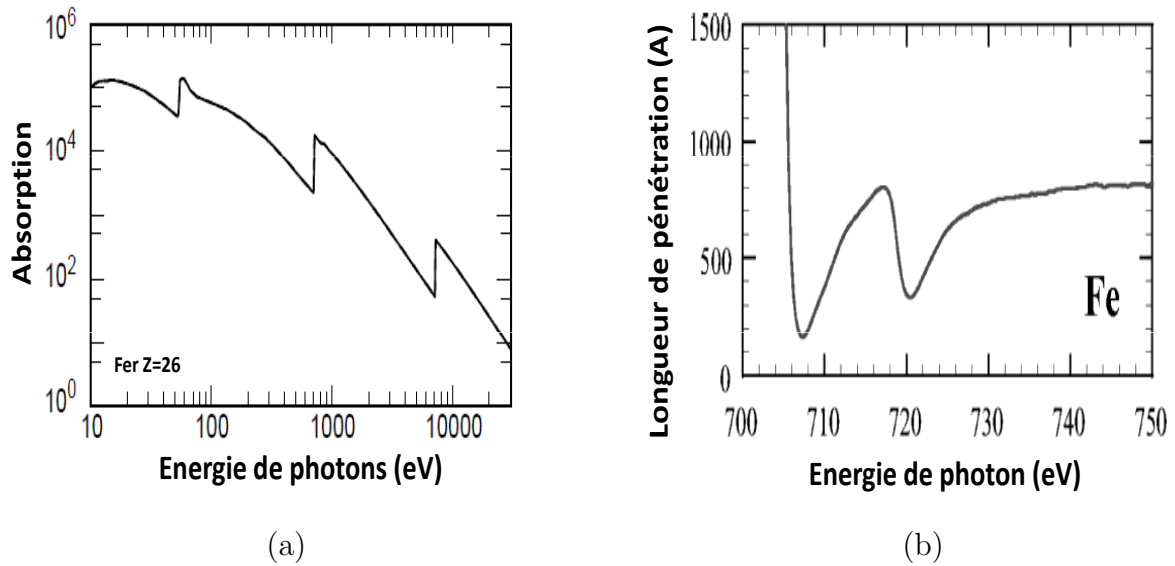


Fig. 2.3 : Absorption des photons en fonction de leur énergie d'un morceau de fer (a) et longueur de pénétration des rayons X en fonction de leur énergie aux seuils L_3 et L_2 du fer (b) (extrait de [70]).

de valence, laissant un trou dans la structure électronique. Ce trou va fortement perturber la répartition des électrons et des processus de relaxation vont avoir lieu pour réduire l'énergie du système. Dans la gamme des rayons X mous (c'est à dire en dessous de 2 keV), la relaxation par émission d'électrons Auger (voir section 2.3.2.2) est favorable alors qu'au dessus de 2 keV, c'est la relaxation par émission de photons (voir section 2.3.2.1). Dans la partie suivante, ces deux processus seront détaillés, ainsi que leur relation avec le coefficient d'absorption.

2.3.2.1 La fluorescence

Quand un trou apparaît dans la structure électronique après absorption d'un photon, il a une durée de vie limitée. Un électron d'une bande d'énergie supérieure peut transiter pour remplir le trou en émettant un photon dont l'énergie est donnée par la différence d'énergie entre les états de départ et d'arrivée de l'électron. La figure 2.4 représente un diagramme d'énergie avant et après relaxation, au seuil K du cobalt. Un photon correspondant à la transition entre la bande 1s et la bande de valence est absorbé par le solide. L'électron 1s est promu vers la couche 4p, vide dans le cas du cobalt. Cette transition entre un état de moment $l=1$ (1s) et un état de moment $l=2$ (4p) est autorisée par les règles de transitions dipolaires. Un électron d'une bande supérieure en énergie à la bande de la lacune transite vers la bande 1s et émet un photon. Dans le cas de la figure 2.4,

c'est l'émission K qui est représentée avec transition d'un état 2p vers l'état 1s vacant. Le

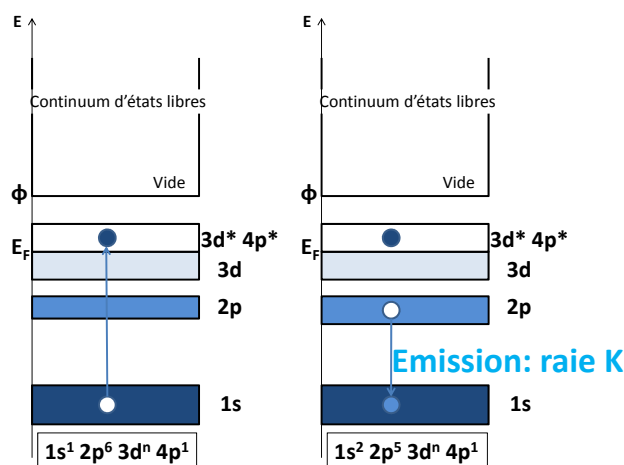


Fig. 2.4 : Illustration du processus de désexcitation par fluorescence : à gauche création d'un trou 1s après absorption d'un photon et à droite un électron 2p transite vers le trou 1s en transférant le différentiel d'énergie à un photon.

nombre de trous créés est proportionnel au nombre de photons absorbés, et par conséquent le nombre de photons émis par fluorescence est également proportionnel à l'absorption. L'avantage de la fluorescence est que la particule émise est un photon, qui a une longueur de pénétration élevée ($> 100 \mu\text{m}$) dans les gammes d'énergies au delà de 2 keV (voir figure 2.3(a)). Dans un film mince, la mesure d'un spectre d'absorption par fluorescence donne donc une information sur l'ensemble de l'échantillon. Dans le cas de l'absorption des seuils K des métaux de transition ainsi que les seuils L des terres rares, c'est le mode de mesure privilégié (voir section 2.6.2). Par contre la faible section efficace du processus de fluorescence dans les X mous rend cette technique peu adaptée à l'étude des seuils L des métaux de transition et M des terres rares, essentiels dans l'étude des propriétés magnétiques de ces matériaux, et en particuliers des alliages CoGd qui nous intéresse. L'émission de photons par fluorescence est isotrope, ce qui implique que la surface des détecteurs limite la section efficace de détection. L'autre limitation de la détection par fluorescence vient du phénomène de ré-absorption qui peut perturber la proportionnalité entre l'absorption et l'émission par fluorescence [71].

2.3.2.2 Le rendement total d'électrons et l'émission Auger

Les seuils les plus intéressants au point de vue du magnétisme sont les seuils L des métaux de transition et M des terres rares. Dans cette gamme d'énergie allant de 500 à

1500 eV, les rayons X ont une longueur de pénétration faible ($< 100 \mu\text{m}$), de l'ordre de grandeur du libre parcours moyen des électrons dans certains cas (voir 2.21). La mesure du coefficient d'absorption est possible en utilisant la relaxation par émission d'électron Auger. La figure 2.5 illustre le processus d'émission d'électrons Auger, avant et après relaxation. Un photon est absorbé et un électron du niveau 2p (pour les transitions L_3 et L_2) est envoyé vers un état libre de la bande de valence. Un électron peut transiter vers le trou dans le niveau de coeur en transférant son énergie à un autre électron de la bande de valence, qui peut être éjecté du solide si l'énergie transférée est supérieure à l'énergie de liaison de l'électron. L'électron qui est éjecté de l'atome, nommé électron Auger, va créer une cascade électronique par collision et être à l'origine d'un signal électrique mesurable. La nomenclature dans le cas de l'émission Auger est du type XYZ, avec X l'état de départ de l'électron qui absorbe le photon, Y son état d'arrivée et Z l'état de départ de l'électron éjecté.

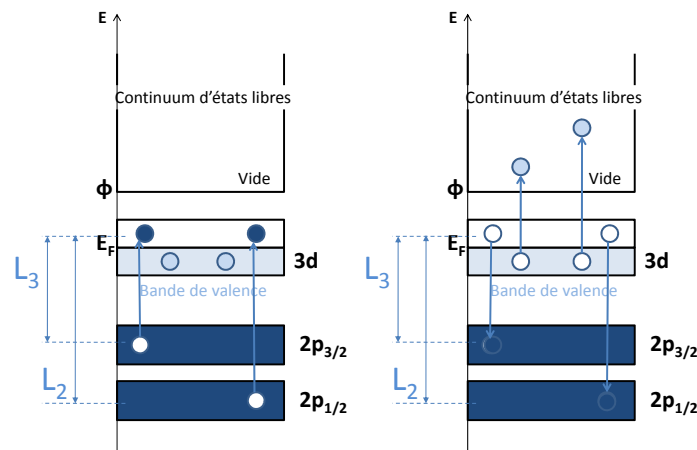


Fig. 2.5 : Illustration du processus de désexcitation par émission d'électrons Auger

Le nombre d'électrons Auger créée est proportionnel au nombre de photons absorbés. Le libre parcours moyen des électrons dans la matière fait qu'un électron Auger primaire subit de nombreuses collisions inélastiques et crée donc de nombreux électrons secondaires. La mesure en rendement total d'électrons consiste à récolter tous les électrons produits lors du processus d'absorption, c'est à dire les électrons photoémis et les électrons Auger ainsi que tous les électrons secondaires. Le rendement total d'électron contient différentes sources mais reste proportionnel à l'absorption [70]. La mesure d'un spectre par rendement total d'électrons est très simple dans le cas d'échantillons métalliques et conducteurs mais s'avère inadaptée pour les échantillons isolants. Bien que les électrons secondaires aient une profondeur d'échappement plus importante que les électrons primaires, la mesure

de spectre d'absorption en rendement total d'électrons reste une technique de surface, avec une profondeur sondée de 5 nm au maximum. Des effets de saturations liés à la longueur de pénétration des rayons X mous dans la matière comparable à la profondeur d'échappement des électrons peuvent perturber les mesures. Ces effets seront étudiés en détail au paragraphe suivant.

Analyse d'un spectre XAS mesuré par rendement total d'électron (TEY) La figure 2.6 représente un spectre d'absorption aux seuils $L_{2,3}$ d'un monocristal de fer mesuré par rendement total d'électron. La transition L_3 correspond à la transition d'un électron de la couche $2p_{\frac{3}{2}}$ vers la couche 3d et L_2 correspond à la transition d'un électron de la couche $2p_{\frac{1}{2}}$ vers la couche 3d. La distinction entre les sous états 2p est due à la levée de dégénérescence induite par le couplage spin-orbite dans l'état final (voir section 1.1). Dans l'état initial (avant absorption) la couche 2p est complète et donc le moment total de spin et le moment orbital total sont nuls, par conséquent le couplage spin-orbite est nul. En créant un trou dans la couche 2p (par absorption d'un photon), le moment total n'est plus nul. Le couplage spin-orbite va lever la dégénérescence entre les configurations où le moment de spin et le moment orbital sont parallèles ($|L + S| = \frac{3}{2}$) et les configurations où le moment de spin et le moment orbital sont antiparallèles ($|L - S| = \frac{1}{2}$). La sous couche $2p_{\frac{3}{2}}$ possède quatre états électroniques, contre deux pour la sous couche $2p_{\frac{1}{2}}$. Ce rapport se retrouve dans la différence de hauteur entre les transitions L_3 et L_2 . Pour une énergie inférieure au seuil L_3 , le courant mesuré est non nul (A) sur la figure 2.6. Ceci est dû à la contribution de tous les électrons du solide irradié dont l'énergie de liaison est inférieure à l'énergie du photon qui sont émis par photoémission (voir section 2.5). Tous ces électrons émis vont créer des électrons secondaires par collision et apporter une contribution au courant total mesuré. Quand l'énergie des photons est égale à un seuil d'absorption, le phénomène est résonnant, l'interaction entre les photons et le solide est amplifié conduisant à un signal beaucoup plus important. Enfin lorsque l'énergie des photons est supérieure aux seuils L_3 et L_2 (C), le courant mesuré est encore donné par les électrons dont l'énergie de liaison est inférieure à cette énergie, augmenté des électrons 2p (C) sur la figure 2.6. Entre les deux pics, la contribution au signal est la même qu'avant le seuil, plus les électrons de la couche $2p_{\frac{3}{2}}$, dont l'énergie de liaison est inférieure à l'énergie du photon (B) sur la figure 2.6. La différence entre le signal avant et après les seuils d'absorption ((C)-(A)) est appelée le saut. L'amplitude de ce saut est proportionnelle à la section efficace de l'élément sondé ainsi qu'à la proportion de cet élément dans le solide étudié.

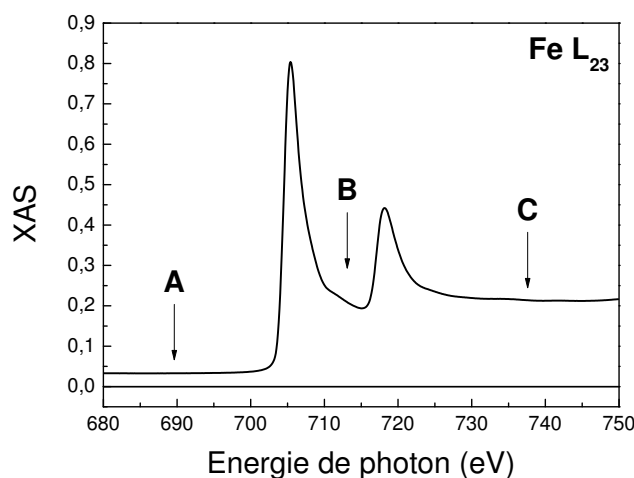


Fig. 2.6 : Spectre d'absorption aux seuils $L_{2,3}$ d'un monocristal de fer.

2.3.2.3 Effet de saturation en rendement total d'électrons

La possibilité de travailler en fluorescence ou en rendement total d'électrons est du au fait que ces signaux sont proportionnels à l'absorption. Il existe néanmoins des cas pour lesquels le coefficient d'absorption ne dépend plus de l'énergie des photons incidents mais du flux. Dans des mesures d'absorption par rendement total d'électrons, ce sont les effets de saturation, dus à la longueur de pénétration des rayons X. Si celle ci est du même ordre de grandeur que la longueur d'échappement des électrons secondaires l'allure du spectre est modifiée. Dans le cas extrême où la longueur de pénétration des photons est inférieure à la profondeur d'échappement des électrons, tous les photons sont convertis en électrons. Le signal électrique mesuré ne dépend plus de l'énergie des photons mais du flux. La méthode utilisée pour supprimer les effets de saturation des spectres expérimentaux présentée ici est entièrement calquée sur la méthode proposée par Stöhr et collaborateurs [70].

Détermination du facteur de correction Le nombre d'électrons Auger $dY_e(z)$ créé dans une couche z , d'épaisseur dz est donné par la relation 2.5, avec I_0 l'intensité de photons incidents, μ le coefficient d'absorption et θ l'angle d'incidence des photons par rapport à la normale. Cette relation reflète la diminution de la production d'électrons avec la profondeur due à la diminution du nombre de photons.

$$dY_e(z) = I_0 e^{-\mu \frac{z}{\cos \theta}} \frac{\mu dz}{\cos \theta} \quad (2.5)$$

Le nombre d'électrons dN de la couche d'épaisseur dz à une distance z de la surface qui atteignent la surface de l'échantillon et qui sont donc détectés en rendement total

d'électron est donné par la relation 2.6, avec λ_e la profondeur d'échappement des électrons.

$$dN = dY_e(z)e^{-\frac{z}{\lambda_e}} \quad (2.6)$$

En combinant les équations 2.6 et 2.5, il est possible de reconstruire le signal mesuré lors d'une mesure de rendement total Y_e . Il suffit d'intégrer le signal sur l'épaisseur de l'échantillon. L'équation 2.7 donne le résultat dans le cas d'un échantillon semi-infini, avec $\lambda_x \cos\theta$ la longueur de pénétration des rayons X dans la matière et G le gain (nombre d'électron secondaires créé par un électron Auger).

$$Y_e = \frac{I_0 G \lambda_e}{\cos\theta} \frac{1}{1 + \frac{\lambda_e}{\lambda_x \cos\theta}} \mu = \frac{I_0 G \lambda_e}{\cos\theta} f(\theta, \lambda_e, \lambda_x) \quad (2.7)$$

Tous les effets de saturation sont contenus dans le facteur de correction $f(\theta, \lambda_e, \lambda_x)$. Ce facteur correctif est représenté figure 2.7(a) au seuil L_3 et L_2 du fer en fonction de l'angle d'incidence des rayons X.

Correction des spectres expérimentaux Pour s'affranchir des effets de saturation du spectre d'absorption mesuré en rendement total d'électrons, il suffit pour chaque énergie de photon de diviser le signal Y_e expérimental par le facteur de correction correspondant à l'angle d'incidence ainsi qu'à l'énergie du photon. Cette opération est représentée figure 2.7(b) pour un spectre XAS d'un monocristal de fer, que nous avons mesuré sur la ligne TEMPO à Soleil. La correction au seuil L_3 n'est pas du tout négligeable et peut avoir un impact important pour des études quantitatives. Un monocristal de fer peut être considéré comme semi-infini, mais dans l'étude de films minces, dont l'épaisseur d est de l'ordre de la dizaine de nanomètres, un terme dépendant de l'épaisseur apparait dans le facteur correctif, qui se réécrit comme indiqué dans l'équation 2.8.

$$f(\theta, \lambda_e, \lambda_x, d) = \frac{1}{1 + \frac{\lambda_e}{\lambda_x \cos\theta}} (1 - e^{-d(\frac{1}{\lambda_e} + \frac{1}{\lambda_x \cos\theta})}) \quad (2.8)$$

Dans le cas des métaux de transition, la longueur de pénétration des rayons X reste tout de même supérieure à la profondeur d'échappement des électrons et les effets sont modérés. Dans le cas du gadolinium, les corrections peuvent atteindre 50% du signal.

Les deux techniques de mesures par fluorescence et rendement total d'électrons sont complémentaires et présentent chacune leurs avantages et leurs inconvénients. Le choix dépend de la gamme d'énergie de photon nécessaire et/ou des contraintes liées à l'environnement et à la structure de l'échantillon.

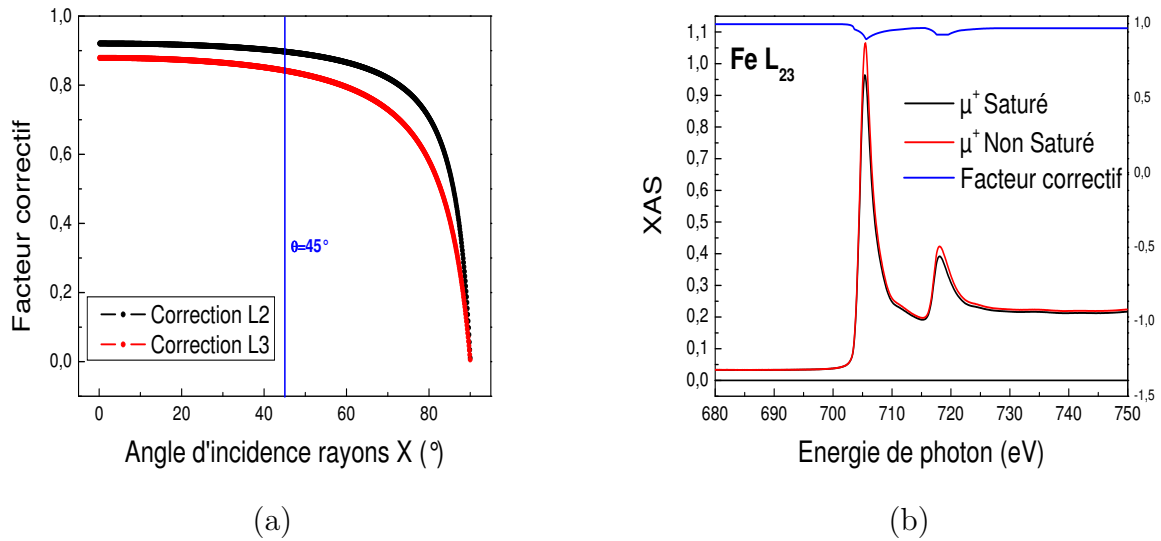


Fig. 2.7 : Facteur de correction en fonction de l'angle pour les seuils L_3 et L_2 fer (a) et exemple de correction d'un spectre d'absorption aux seuils $L_{2,3}$ d'un monocristal de fer pour une incidence de photon de 45° .

2.3.3 Le dichroïsme magnétique des rayons X en absorption

2.3.3.1 Origine du dichroïsme

Le dichroïsme magnétique des rayons X désigne la dépendance du coefficient d'absorption par rapport à la polarisation des photons incidents [72]. Dans l'approximation dipolaire, les transitions autorisées dépendent de la polarisation des photons. En effet, la règle $\Delta l = \pm 1$ traduit la conservation du moment orbital porté par le photon et $\Delta m = 0, \pm 1$ est lié à la conservation de la projection du moment. Pour un photon de polarisation linéaire (parallèle à l'axe de quantification), seules les transitions $\Delta m = 0$ sont autorisées, alors que pour un photon polarisé circulairement gauche (droite), seules les transitions avec $\Delta m = 1$ (-1) sont autorisées (voir section 2.2). Il est bon de rappeler qu'une onde polarisée linéairement est la superposition de deux ondes polarisées circulairement (une à gauche et une à droite) en phase. En présence du couplage spin-orbite, le spin des électrons n'est plus indépendant du moment orbital, et les transitions deviennent polarisées en spin. Par exemple, dans le cas des transitions $2p$, le spin est antiparallèle au moment orbital ($2p_{\frac{1}{2}}$) ou parallèle ($2p_{\frac{3}{2}}$). Une transition $\Delta m = 1$ concerne les électrons d'un moment orbital donné (le même pour les deux canaux) mais de polarisation opposée. Dans les matériaux ferromagnétiques, la bande de valence est polarisée en spin, c'est à dire que le nombre de spin \uparrow et le nombre de spin \downarrow (par rapport à l'axe de quantification) n'est pas identique. Dans ce cas, une des bandes (la bande majoritaire) est plus peuplée que l'autre (la bande minori-

taire). Le phénomène d'absorption dépend de la densité d'états libres au niveau de Fermi, ce qui implique que pour un matériau magnétique, l'absorption sera plus importante pour des électrons dont le spin est minoritaire que pour les électrons majoritaires.

La polarisation des photons, l'existence d'un couplage spin-orbite ainsi que la différence de population en spin de la bande de valence sont les trois conditions nécessaires pour l'existence d'un effet de dichroïsme magnétique circulaire des rayons X (XMCD). Il faut également prendre en compte les probabilités de transitions données par les coefficients de Clebsch-Gordan. Le schéma de la figure 2.8 représente le mécanisme conduisant au signal dichroïque, ainsi que les coefficients de Clebsch-Gordan correspondant aux transitions $L_{2,3}$ d'un matériau magnétique.

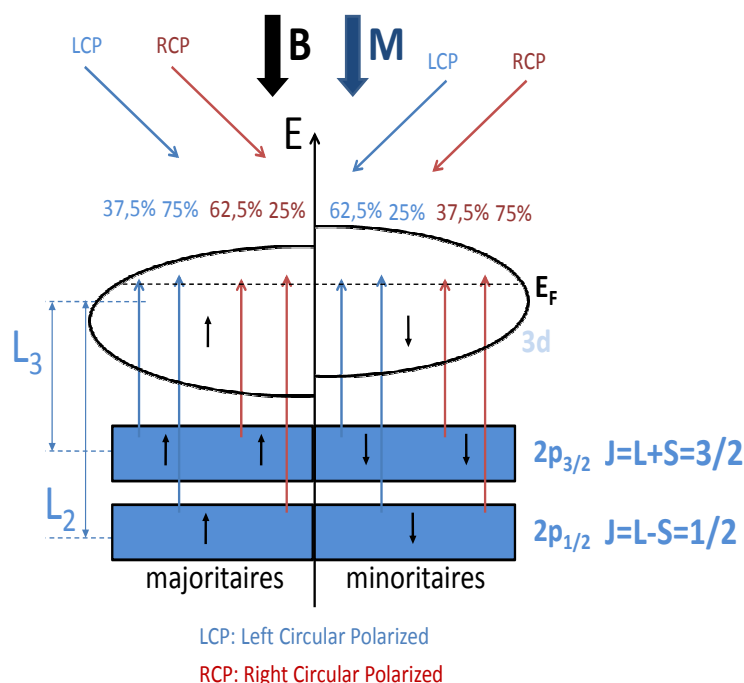


Fig. 2.8 : Schéma représentant les transitions des états $2p \rightarrow 3d$, en fonction du spin et de la densité d'état au Niveau de Fermi.

2.3.3.2 Mesures d'un signal XMCD

Pour obtenir un spectre de dichroïsme magnétique circulaire (XMCD), il suffit de mesurer un spectre d'absorption pour deux polarisations de photon : un en polarisation gauche, un en polarisation droite. La différence entre ces deux spectres est le spectre XMCD. Il est équivalent de mesurer les deux spectres d'absorption avec une même polarisation de photon mais en renversant la direction d'aimantation de l'échantillon. En pratique, les

spectres XAS sont mesurés pour les deux polarisations de photons et les deux orientations de champ pour éliminer tous les effets non magnétiques dans la différence. Les deux principaux atouts de la mesure de l'aimantation par XMCD sont la résolution chimique et par conséquent la possibilité de déterminer l'aimantation portée par une espèce chimique, et la possibilité de remonter à la contribution du moment de spin et du moment orbital au moment magnétique total grâce aux règles de sommes [73, 74]. Pour être plus précis, les spectres XMCD permettent de remonter à la projection du moment magnétique selon \vec{k} par atome, moyenné sur le volume sondé. La figure 2.9 représente les spectres d'absorptions pour des photons polarisés circulairement à gauche et à droite aux seuils $L_{2,3}$ d'un monocristal de fer ainsi que la différence entre ces deux spectres. Les spectres XAS ont été obtenus pour une incidence des rayons X de 45° par rapport à la normale à la surface de l'échantillon. L'aimantation du monocristal de fer est planaire, dans le plan d'incidence de la lumière. La géométrie de la mesure du spectre XMCD est représentée figure 2.10. Pour obtenir le signal XMCD que donnerait une mesure avec un angle d'incidence rasant, soit une projection maximale de l'aimantation par rapport au vecteur de propagation, il suffit de multiplier le spectre obtenu à 45° par $\frac{1}{\cos \theta}$. Cette opération est réalisée et représentée figure 2.11. Dans le cas d'une aimantation perpendiculaire à la surface des échantillons, l'angle d'incidence des photons doit être le plus proche possible de l'incidence normale.

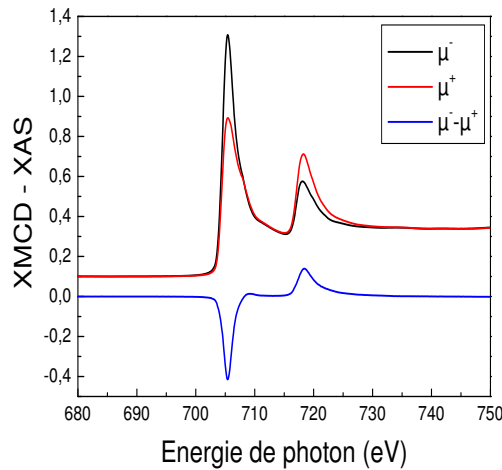


Fig. 2.9 : Spectres d'absorption aux seuils $L_{2,3}$ d'un monocristal de fer pour une polarisation circulaire gauche (μ^+) et droite (μ^-) obtenus sur TEMPO.

La figure 2.12 donne les spectres d'absorption en polarisation gauche (μ^-) et en polarisation droite (μ^+) corrigés par les effets de saturations et la prise en compte de l'angle d'incidence, en comparaison à des spectres d'absorptions mesurés en transmission [75]. Les spectres sont parfaitement identiques, ce qui permet de valider la méthode de correc-

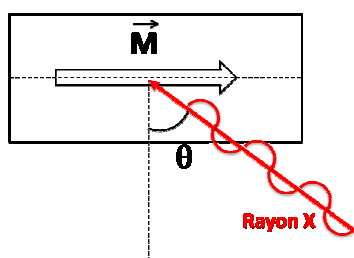
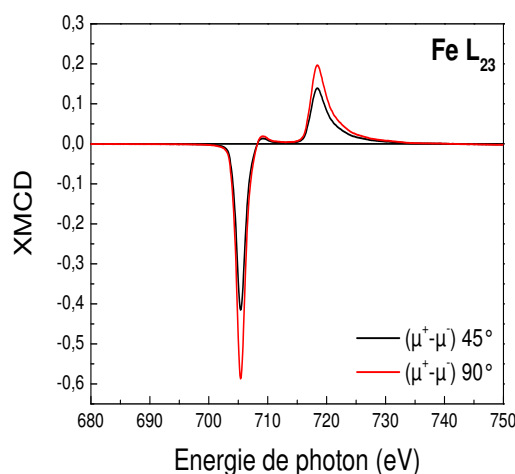


Fig. 2.10 : Géométrie des mesures d'absorption

Fig. 2.11 : Spectres XMCD aux seuils $L_{2,3}$ d'un monocristal de fer pour un angle d'incidence de 45° et après correction.

tion des spectres. Une fois cette correction effectuée, il est possible de calculer le moment magnétique orbital et de spin par atome, grâce aux règles de somme qui vont être détaillées dans le chapitre suivant.

2.3.3.3 Les règles de somme

Les règles de somme permettent de déterminer séparément la contribution orbitale [73] et la contribution de spin [74] au moment magnétique total. Depuis leurs démonstrations, les règles de sommes ont été confirmées expérimentalement dans plusieurs matériaux [75, 76]. Néanmoins, leur mise en pratique est délicate puisqu'il est nécessaire d'extraire du signal d'absorption la seule contribution des électrons 2p vers 3d et de retirer la contribution de tous les autres électrons. Ce paragraphe a pour objectif de détailler la procédure employée dans ce travail pour déterminer les moments orbitaux et les moments de spin de nos spectres XMCD. Toute la démonstration sera faite sur le monocristal de fer, où une comparaison avec la littérature est aisée. Il est démontré que les corrections sont valides et

permettent de retrouver la valeur du moment magnétique du fer. C'est cette comparaison qui permettra de valider la méthode employée pour appliquer la règle des sommes.

Le spectre isotrope est le spectre d'absorption en polarisation linéaire. Dans le cas présent, le spectre isotrope est la moyenne des spectres XAS obtenus pour les deux polarisations de photon. Pour retirer la contribution des électrons autres que les électrons 2p, il est nécessaire de construire une fonction marche. La figure 2.13 représente le spectre isotrope ainsi que deux fonctions marches différentes (a) et (b). La première est une fonction marche que l'on peut qualifier de simple, où les cassures coïncident avec les seuils d'absorptions L_3 et L_2 . Les hauteurs de marches sont calculées de manière à ce que la première soit égale à $\frac{2}{3}$ de la hauteur du saut et que la deuxième soit égale à $\frac{1}{3}$ de la hauteur du saut. Ce rapport prend en compte du rapport de branchement entre les états $2p_{\frac{3}{2}}$ et $2p_{\frac{1}{2}}$. L'inconvénient de cette technique est l'erreur commise en ajustant les marches. La deuxième fonction marche, plus sophistiquée, consiste à intégrer le spectre XAS en énergie. L'intégrale en fonction de l'énergie est ajustée de manière à ce que les parties constantes au début et à la fin se superposent au spectre isotrope. L'aire du spectre après soustraction est également représentée sur les figures 2.13 (a) et (b), ainsi que la valeur du paramètre r , qui est un des paramètres introduit dans la règle des sommes.

La plus grande source d'erreur est liée à la soustraction de la fonction marche du spectre XAS isotrope. Sur le signal XMCD, les grandeurs nécessaires pour les règles de

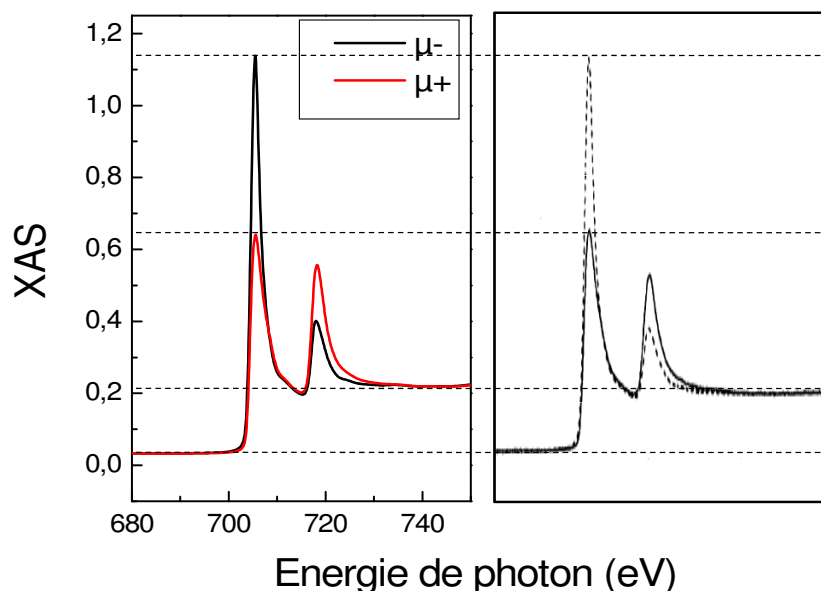


Fig. 2.12 : Spectres XAS aux seuils $L_{2,3}$ d'un monocristal de fer corrigé comparés (à gauche) à des données expérimentales obtenues par transmission [75] (à droite).

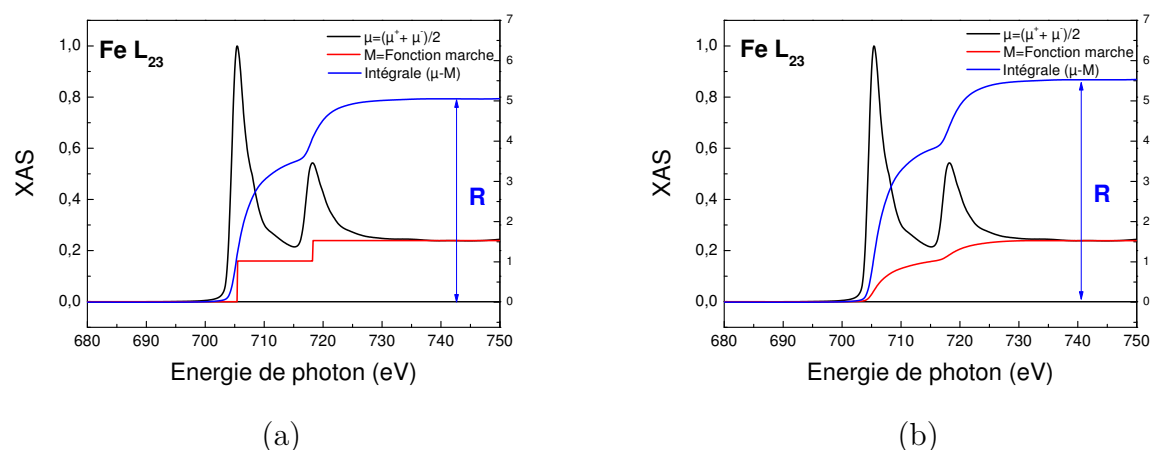


Fig. 2.13 : Spectre XAS aux seuils $L_{2,3}$ du fer, son intégrale ainsi que la fonction marche standard (a) et la fonction marche "élaborée" (b) permettant d'isoler la contribution des électrons 2p.

sommes sont l'aire du pic L_3 et l'aire du pic L_2 . La procédure de calcul consiste à intégrer le signal XMCD sur la gamme d'énergie nécessaire et de la tracer en fonction de l'énergie. Sur le graphique 2.14, le spectre XMCD et son intégrale sont représentés, ainsi que les coefficients P et Q qui permettent de calculer l'aire des pics L_3 et L_2 .

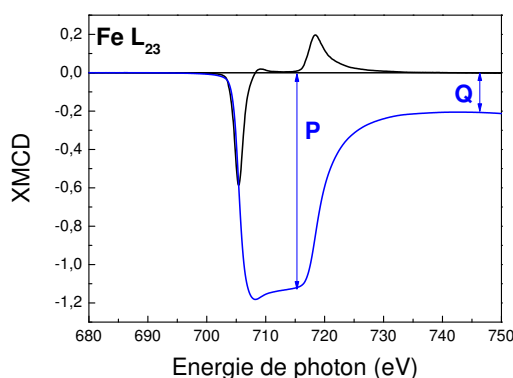


Fig. 2.14 : Spectre XMCD aux seuils $L_{2,3}$ du fer et son intégrale.

En utilisant les notations de Stöhr et al [76], le moment orbital et le moment de spin s'expriment en fonction des coefficients p, q et r suivant les équations 2.9 et 2.10. Le terme N_h désigne le nombre de trous dans la couche 3d. Ce terme est déterminé par des calculs de structure de bandes assez compliqués [77, 78, 79]. Les termes $\langle T_z \rangle$ et $\langle S_z \rangle$ représentent respectivement la moyenne des opérateurs dipolaires et de spin. Ces termes sont également issus de calculs de bandes. Pour plus de simplicité, tous les moments

calculés par les règles de sommes de ce manuscrit seront exprimés en μ_B par nombre de trou. Le moment de spin sera un moment de spin effectif pour lequel $\langle T_z \rangle$ et $\langle S_z \rangle$ sont négligés [80]. Il est toutefois important de noter que dans des matériaux magnétiques amorphes le terme dipolaire est rigoureusement nul [76].

$$m_l = \frac{-2q}{3r} N_h \quad (2.9)$$

$$m_s = -\frac{3p - 2q}{r} N_h \left(1 + \frac{7 \langle T_z \rangle}{2 \langle S_z \rangle}\right)^{-1} \quad (2.10)$$

En appliquant les règles de somme sur les spectres correspondant au monocristal de fer mesuré sur TEMPO, on peut extraire une valeur de moment orbital et de moment de spin. Lors des mesures d'absorption, le monocristal est saturé magnétiquement et nettoyé de toute contamination. Les valeurs obtenues avec les deux types de fonctions marches sont données dans le tableau 2.3.3.3, qui inclut aussi les valeurs obtenues par Chen et al correspondant au spectre de la figure 2.12 [75].

	$m_{\text{orb}} (\mu_B/n_h)$	$m_{\text{spin}} (\mu_B/n_h)$
Règle de somme 1	0.027	0.58
Règle de somme 2	0.025	0.53
Littérature [75]	0.025	0.58

Comparaison du moment magnétique orbital et de spin pour un monocristal de fer calculés en utilisant les règles de sommes par rapport à la littérature

Les valeurs obtenues sont en parfait accord avec les résultats trouvés dans la littérature, ce qui valide la méthode expérimentale pour appliquer les règles de sommes. En pratique, après avoir mesuré les spectres XAS pour deux polarisations (de photons ou de champ), les effets de saturations sont soustraits, puis la différence est calculée et corrigée par l'angle d'incidence. A partir du spectre XMCD corrigé par l'angle et du spectre isotrope corrigé des effets de saturation, on reconstruit les spectres d'absorption réels. C'est ce qui a été effectué pour les spectres de la figure 2.12. Le calcul en utilisant la fonction marche simple est plus précise, c'est donc celle qui sera utilisée dans ce manuscrit.

2.3.3.4 La microscopie PEEM

L'imagerie XPEEM (pour X ray PhotoEmission Electron Microscopy) est une technique de photon-in, electron out. L'absorption de photons X va induire l'émission de photoélectrons, dont la distribution est dominée par les électrons secondaires. L'installation d'un microscope électronique à la sortie de l'échantillon permet de collecter ces électrons et d'obtenir une image. Le XPEEM permet une analyse chimique en fixant

l'énergie au seuil d'absorption caractéristique d'un élément mais permet aussi une analyse magnétique en utilisant des photons polarisés. La résolution latérale d'un microscope PEEM peut descendre jusqu'à 20 nm, limitée par les optiques du microscope électronique. Un schéma représentant la géométrie d'un microscope PEEM est présenté figure 2.15. Pour une description complète de la théorie et de l'aspect expérimental de la microscopie PEEM, j'invite le lecteur à consulter le livre de J. Stöhr et H.C. Siegmann [22].

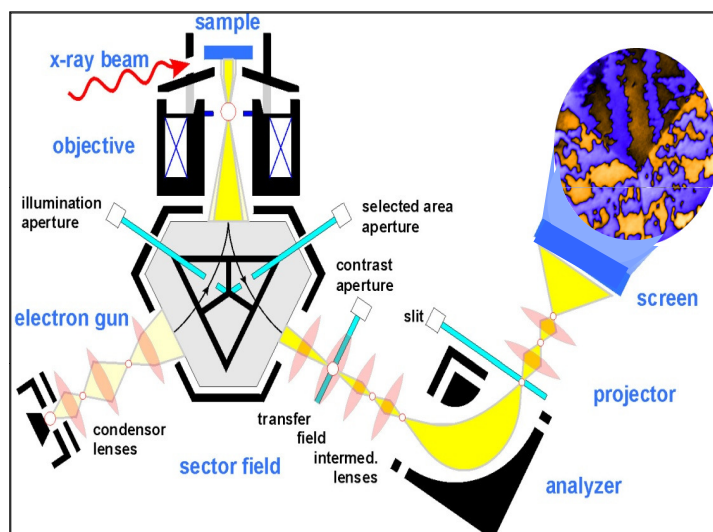


Fig. 2.15 : Schéma d'un montage de microscopie PEEM. Schéma fourni aimablement par Rachid Belkhou.

2.4 La magnéto-métrie Kerr

Les effets magnéto-optiques regroupent l'ensemble des modifications induites par un matériau magnétique sur la polarisation d'une onde électromagnétique. L'effet Kerr correspond à la rotation de l'axe de polarisation et à l'ellipticité qu'acquiert une onde électromagnétique polarisée linéairement lorsqu'elle est réfléchie ou transmise par un matériau magnétique. Il existe trois configurations différentes, nommées respectivement configuration polaire, longitudinale et transverse (voir figure 2.16). Dans la configuration polaire (a), l'aimantation est perpendiculaire au plan de l'échantillon. Le maximum de sensibilité est atteint pour une incidence normale de l'onde électromagnétique. En configuration longitudinale (b), l'aimantation est dans le plan de l'échantillon et parallèle au plan d'incidence. Le maximum de sensibilité est atteint pour une incidence rasante de l'onde. Enfin, dans la configuration transverse, l'aimantation est dans le plan de l'échantillon mais perpendiculaire au plan d'incidence (c). Dans ce cas, il n'y a pas de rotation de la polarisation de la lumière mais une variation de l'intensité lumineuse est obtenue. L'effet

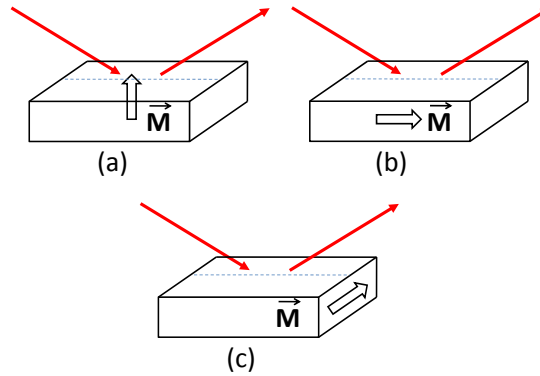


Fig. 2.16 : Configurations polaire (a) longitudinale (b) et transverse (c) en effet Kerr.

Kerr peut être décrit par le formalisme des équations de Maxwell, qui fera l'objet de la première partie. Dans un deuxième temps, l'origine microscopique de l'effet Kerr sera abordée. L'objet de ce chapitre n'est pas de définir tout le formalisme optique inhérent à l'interaction d'une onde électromagnétique avec la matière, mais d'expliquer rapidement l'origine de l'effet Kerr. Pour plus de détail, le lecteur est invité à se reporter aux manuscrits de thèse de Jaroslav Hamrle [81] et de Nicolas Weiss [82], ainsi que l'ouvrage de Sugano et Kojima [83].

2.4.1 L'effet Kerr magnéto-optique (MOKE) : description macroscopique

La propagation des ondes électromagnétiques dans la matière est décrite par les équations de Maxwell (expressions 2.11). Dans ces équations, \vec{D} est le vecteur déplacement électrique du milieu, \vec{B} l'induction magnétique du milieu, \vec{E} et \vec{H} les champs électrique et magnétique de l'onde incidente, \vec{j} la densité de courant et ρ la densité de charge électrique. Toutes ces grandeurs sont reliées entre elles par les expressions 2.12, avec ϵ le tenseur de permittivité électrique, μ le tenseur de permittivité magnétique et σ le tenseur de conductivité électrique. Dans la gamme des fréquences optiques, le tenseur de permittivité magnétique est égal au tenseur unité. Toutes les interactions entre l'onde électromagnétique et le matériau magnétique sont contenues dans le tenseur de permittivité électrique ϵ . En considérant des ondes planes, il est possible de montrer que les équations de Maxwell aboutissent à l'équation 2.13. La résolution de cette équation nécessite de connaître le tenseur de permittivité électrique. Pour un matériau possédant une aimantation $\vec{M}=(M_x, M_y, M_z)$ quelconque, le tenseur diélectrique peut se mettre sous la forme 2.4.1, où C_v est la constante de Voigt du matériau.

$$\operatorname{div}(\vec{D}) = \rho \quad (\text{a}) \quad \operatorname{div}(\vec{B}) = 0 \quad (\text{c}) \quad (2.11)$$

$$\operatorname{rot}(\vec{E}) = -\frac{d\vec{B}}{dt} \quad (\text{b}) \quad \operatorname{rot}(\vec{H}) = \vec{j} + \frac{d\vec{D}}{dt} \quad (\text{d})$$

$$\vec{D} = \epsilon\vec{E} \quad (\text{a}) \quad \vec{j} = \sigma\vec{E} \quad (\text{b}) \quad \vec{B} = \mu\vec{H} \quad (\text{c}) \quad (2.12)$$

$$\vec{k} \cdot (\vec{k} \cdot \vec{E}) - k^2 \vec{E} + \omega^2 \mu_0 \epsilon_0 \epsilon \vec{E} = 0 \quad (2.13)$$

$$\epsilon = n^2 \begin{bmatrix} 1 & -iC_v M_z & iC_v M_y \\ iC_v M_z & 1 & -iC_v M_x \\ -iC_v M_y & iC_v M_x & 1 \end{bmatrix}$$

La résolution de l'équation 2.13, dans laquelle le tenseur ϵ est injecté, permet de définir deux modes propres de propagation, définis par des indices complexes $N^+ = n^+ + i\mu^+$ et $N^- = n^- + i\mu^-$. Les indices n^\pm correspondent à la propagation et les indices μ^\pm à l'absorption associées à ces modes propres. Ces deux modes se propagent avec des vitesses différentes ce qui modifie l'orientation de la polarisation et ont des coefficients d'absorption différents, ce qui cause l'ellipticité qu'acquiert l'onde. L'amplitude de l'onde réfléchie est donnée par les coefficients de réflexion du matériau, eux-mêmes dépendant de l'indice de réfraction du matériau par l'intermédiaire des relations de Fresnel. Les relations de Fresnel font le lien entre les propriétés magnétiques du matériau (au travers des indices de réfraction) et la rotation de la polarisation (au travers des coefficients de réflexion). En suivant les conventions adoptées dans la figure 2.17, il est possible de définir la matrice de réflexion R dont les éléments sont données par la relation $r_{j,k} = E_r^j / E_i^k$, qui vérifie $\vec{E}_r = R\vec{E}_i$. Les indices j et k désignent les projections de la polarisation sur la base $[\vec{E}_p, \vec{E}_s]$. En optique, le rapport entre les composantes complexes d'une onde électromagnétique contient toutes les informations sur la polarisation. Ainsi le rapport E_i^p / E_i^s est égal à $\theta_K + i\eta_K$, avec θ_K l'angle du grand axe de l'ellipse et η_K l'ellipticité de l'onde réfléchie.

2.4.2 Origine microscopique de l'effet Kerr

Dans la section 2.3, l'origine du dichroïsme magnétique a été discutée dans le cas de l'absorption de rayons X. Dans le cas d'un laser, l'énergie des photons n'est que de quelques eV, insuffisante pour autoriser des transitions d'un niveau de coeur vers la bande de valence. Pour les métaux de transition, le niveau de Fermi est composé des états 3d et 4s ainsi que des états libres 4p. L'énergie des photons d'un rayon laser dans le domaine du visible permet de faire transiter un électron 3d vers la bande libre 4p. Ces transitions sont soumises aux règles de transitions dipolaires qui en présence d'un couplage spin-orbite

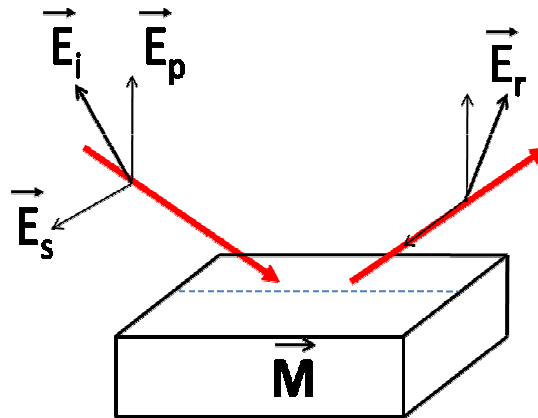


Fig. 2.17 : Réflexion sur un matériau aimanté d'une onde électromagnétique : \vec{E}_i est l'onde incidente et \vec{E}_r l'onde réfléchie. Les vecteurs \vec{E}_p et \vec{E}_s forment une base dans le plan perpendiculaire à l'axe de propagation.

et d'une bande de valence polarisée en spin, vont induire des effets de dichroïsme. La figure 2.18, extraite de la thèse de Jaroslav Hamrle [81], représente l'ensemble des transitions permises dans le cas de l'absorption d'un laser polarisé. Le lien entre la description

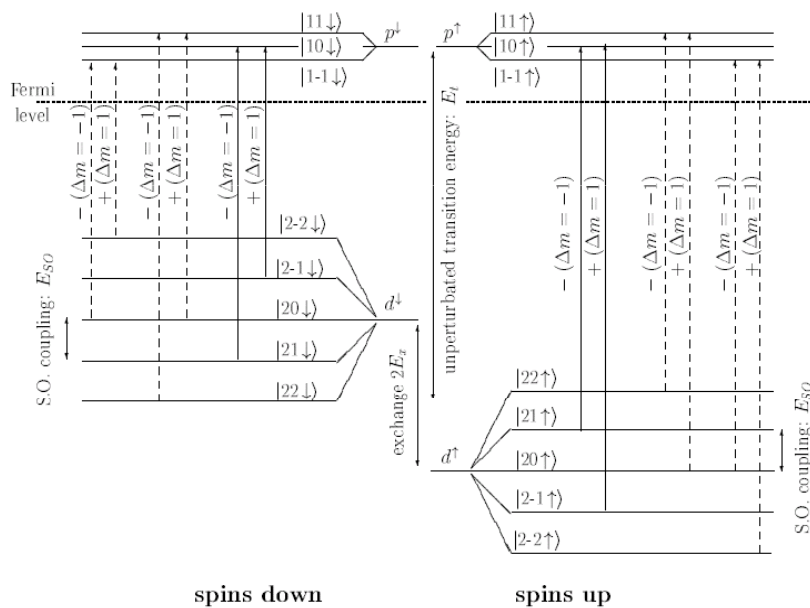


Fig. 2.18 : Schéma des niveaux d'énergies et des transitions 3d vers 4p permises par les règles de transition dipolaire. Les signes + (respectivement -) correspondent à des transitions $\delta m = +1$ (respectivement $\delta m = -1$)

microscopique et la description macroscopique est donné par la formule de Kubo [83].

Cette formule permet de relier les composantes du tenseur de permittivité électrique aux différentes transitions électroniques.

2.5 La photoémission (X-Ray Photoelectron Spectroscopy)

2.5.1 Un peu d'histoire

En 1887, Hertz met en évidence l'effet photoélectrique [84] : un solide irradié par des rayons X produit un courant électrique. Il faudra attendre 1905 pour qu'Albert Einstein donne une interprétation théorique de ce phénomène [85], qui lui vaudra le prix Nobel en 1921. Dans les années 60, Kai Siegbahn démontre l'intérêt de la spectroscopie électronique pour l'étude de la matière en développant un spectromètre efficace et en mesurant les premiers spectres de photoémission à haute résolution. Le développement de la photoémission est corrélé à l'amélioration des techniques ultraviolettes, puis par l'apparition d'une nouvelle source de rayons X : les synchrotrons. Aujourd'hui, la spectroscopie de photoélectrons est devenue une technique standard d'analyse des propriétés électroniques des surfaces et interfaces.

2.5.2 Principe

Quand un photon est absorbé par un atome, il transfère son énergie à un électron (section 2.2). Si l'énergie transférée est plus grande que l'énergie de liaison de l'électron dans l'atome, cet électron transite vers le continuum, puis est éjecté du solide en emportant l'excès d'énergie sous forme d'énergie cinétique. Cet électron est appelé photoélectron. L'énergie cinétique du photoélectron, E_k , est reliée à l'énergie du photon absorbé $E_{h\nu}$, l'énergie de liaison E_{bin} et au travail de sortie ϕ par $E_k = E_{h\nu} - E_{\text{bin}} - \phi$, qui traduit la conservation d'énergie. Le processus de photoémission est schématisé figure 2.19, sur laquelle sont représentées la bande de valence (bande partiellement remplie), et deux niveaux de coeur (bande pleine) ainsi que le continuum d'états non liés qui correspond aux états électroniques de l'électron libre [69]. En plus de l'énergie, le processus de photoémission conserve la quantité de mouvement (ou l'impulsion) et le spin de l'électron.

Les principales informations que l'on peut obtenir en analysant des photoélectrons sont la distribution en énergie cinétique, la distribution angulaire et la distribution en spin. La distribution énergétique des photoélectrons donne une information directe sur les états électroniques occupés et les énergies de liaisons des électrons dans le solide. Les énergies de liaison sont caractéristiques des éléments, ce qui fait de la spectroscopie

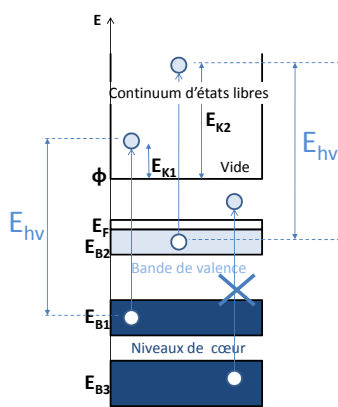


Fig. 2.19 : Schéma illustrant le mécanisme de photoémission et la conservation de l'énergie du processus.

XPS une technique sensible à la chimie. La conservation du moment des électrons lors du processus de photoémission permet de déterminer la structure de bande ainsi que la courbe de dispersion (ARPES). Enfin, la conservation du spin permet de résoudre les sous bandes liées aux deux orientations de spin (SRXPS).

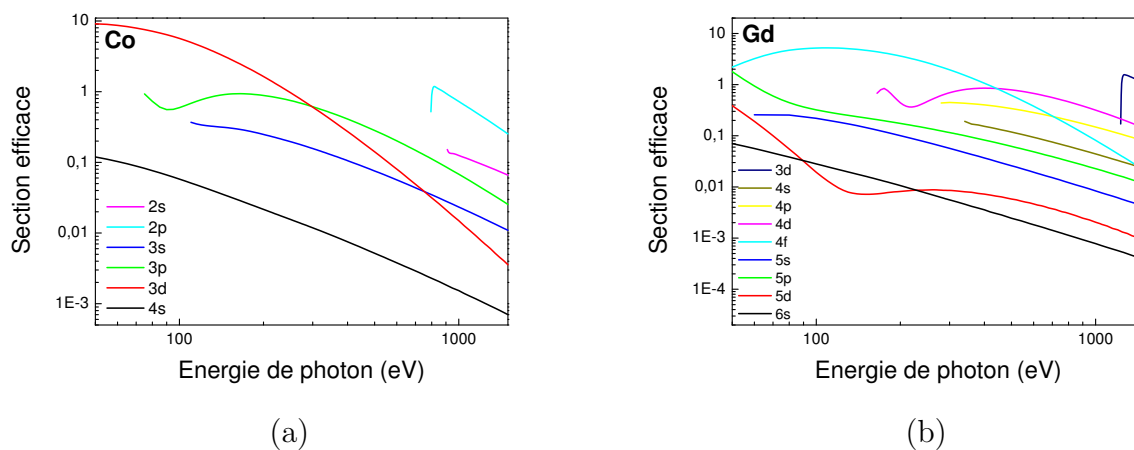


Fig. 2.20 : Sections efficaces du processus de photoémission pour les états électroniques du cobalt (a) et du gadolinium (b) sur la gamme d'énergie de photon [50-1500] eV.

La règle d'or de Fermi permet de calculer les sections efficaces de photoionisation des atomes. Les valeurs de sections efficaces pour le cobalt et le gadolinium sont représentées

figures 2.20(a) et 2.20(b) en fonction de l'énergie de photon [86]. Quand l'énergie de photon augmente, la section efficace d'absorption diminue 2.3(a) et par conséquent la profondeur de pénétration des rayons X augmente. Dans la gamme d'énergie s'étendant de 50 à 1500 eV, les sections efficaces de photoémissions des électrons de la couche 4f du gadolinium et les électrons de la couche 3d du cobalt sont très élevées.

2.5.3 Le modèle à trois étapes

La description la plus simple du processus de photoémission utilise une approximation d'électrons sans interaction les uns avec les autres. C'est la base du modèle à trois étapes [87, 88], proposé pour interpréter le processus de photoémission. La première étape consiste en l'absorption d'un photon et la transition d'un électron de l'état initial $|i\rangle$ dans l'atome à un état final $|f\rangle$ dans le continuum, suivant la règle d'or de Fermi (relation 2.1). La deuxième étape concerne la propagation de l'électron chaud (énergétique) dans le solide jusqu'à la surface. Le libre parcours $\lambda(e)$ dépend essentiellement de l'énergie cinétique de l'électron et dans une moindre mesure de la nature du solide. La relation entre le libre parcours moyen des électrons dans la matière en fonction de l'énergie cinétique est appelée la courbe universelle. Cette courbe est donnée figure 2.21 [89][90] et montre que dans la gamme d'énergie usuellement utilisée dans des expériences de photoémission, le libre parcours moyen d'un photoélectron est inférieur à 1nm. Le faible libre parcours des électrons dans la matière fait de la spectroscopie XPS une technique d'analyse de surface, puisque seuls les électrons primaires (ceux n'ayant subi aucune collision) portent avec eux une information directe sur la nature chimique de l'élément, sur la structure de bande, sur la polarisation en spin ou sur l'environnement. La troisième étape est l'échappement de l'électron s'il a une énergie cinétique suffisante pour passer outre le travail de sortie.

2.5.4 Les corrélations électroniques

Le modèle à trois étapes permet de comprendre le phénomène mais est beaucoup trop simpliste pour rendre compte de la richesse d'un spectre XPS. Dans un solide les électrons sont en interaction forte ce qui va fortement influencer le spectre XPS. Pour analyser un spectre de photoémission, il faut distinguer les effets dus à l'état initial et les effets dus aux états finaux.

2.5.4.1 Les effets de l'état fondamental

Dans l'atome, les électrons occupent une orbitale énergétique bien particulière, signature de la nature chimique de l'atome. Dans le cadre du modèle des liaisons fortes, la stabilité chimique d'un solide est liée au recouvrement des orbitales atomiques qui forment

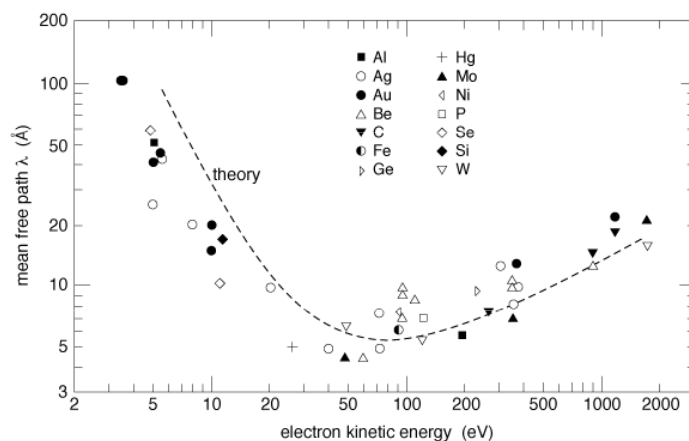


Fig. 2.21 : Courbe universelle du libre parcours moyen en fonction de l'énergie cinétique des électrons.

des bandes d'énergie. Ces bandes d'énergie sont également une signature unique de la nature de l'élément formant le solide. En l'absence de corrélations électroniques, un spectre de photoémission consiste en une cartographie des bandes d'énergie. Dans l'état initial, l'électron de coeur occupe un état électronique fondamental qui est caractéristique de l'environnement chimique (oxydation, hybridation). Ainsi, il est possible en photoémission de distinguer l'état d'oxydation d'un élément [91] ou encore la modification de la structure électronique induite par la présence d'un élément particulier à proximité [92]. Les modifications se traduisent par l'apparition de pics satellites, ou alors par la modification de la forme du pic.

2.5.4.2 Les effets dus à l'état final

Dans un solide les électrons sont en interaction forte. La transition d'un électron de coeur vers le continuum va créer un trou dans la structure électronique qui va perturber cette dernière. Cet état final n'est pas stable et des processus de relaxation vont avoir lieu. La durée de vie de l'état final est liée à l'interaction du trou créé avec les électrons de la structure électronique. Plus le trou est profond en énergie (niveau de coeur profond) et plus la durée de vie sera courte. La présence de trou dans l'état final permet également la levée de dégénérescence liée au couplage spin-orbite qui conduit au dédoublement de certains pics (voir figure 2.25(a)).

2.5.5 Applications de la spectroscopie XPS pour l'analyse quantitative

2.5.5.1 Sensibilité à la surface

Le libre parcours moyen d'un électron dans la matière est faible et dépend de son énergie cinétique. En augmentant l'énergie de photon, on augmente l'énergie cinétique des électrons et donc le libre parcours moyen. Par conséquent des spectres XPS mesurés pour différentes énergies de photons conduisent à des profondeurs d'échantillon sondées différentes (voir figure 2.22). Pour une énergie photon fixée, deux électrons provenant de deux niveaux de coeur différents n'auront pas la même énergie cinétique et donc en fonction du niveau étudié, la sensibilité sera plus ou moins surfacique. Le minimum du libre parcours moyen correspond à 50eV d'énergie cinétique, soit une sensibilité maximale à la surface.

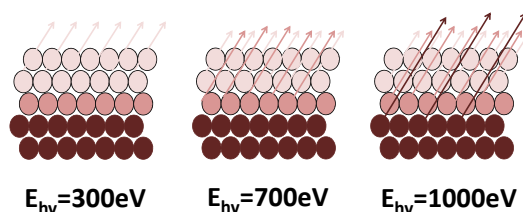


Fig. 2.22 : Illustration de la profondeur sondée en fonction de l'énergie des photons. A 300 eV seules les deux premières couches émettent des électrons primaires mesurables (a). En augmentant l'énergie à 700 eV la troisième couche produit un signal (b) et à 1000 eV, des électrons des couches inférieures sont émis (c).

2.5.5.2 Analyse chimique

La conservation de l'énergie montre que la mesure de l'énergie cinétique d'un photoélectron primaire apporte une information sur son énergie dans le solide. Il est possible de déterminer l'énergie de l'électron dans le solide, et grâce aux tables de déterminer la composition chimique de l'échantillon. Il est ainsi possible de déterminer la composition d'un matériau, son état d'oxydation, la propreté de sa surface. A titre d'exemple, la figure 2.23 représente le spectre XPS d'un monocristal de fer mesuré sur la ligne TEMPO pour une énergie de photon $E_{h\nu} = 700\text{eV}$. La lecture de ce spectre indique que la surface est contaminée par

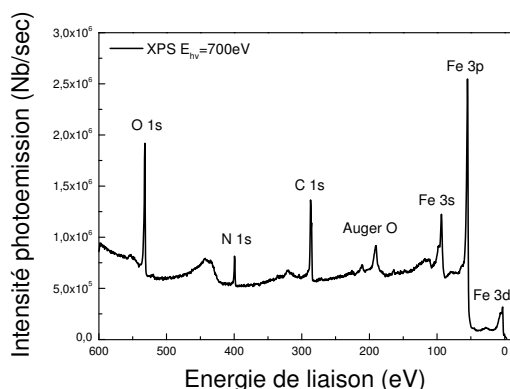


Fig. 2.23 : Spectre XPS en fonction de l'énergie de liaison à 700eV d'énergie de photon d'un monocristal de fer.

de l'oxygène, du carbone et de l'azote. La spectroscopie XPS permet également d'évaluer la composition relative entre deux constituants d'un échantillon. Il est essentiel pour cela de respecter deux conditions. La première consiste à utiliser des pics élastiques proches en énergie de liaison, pour que l'énergie cinétique des photoélectrons soit à peu près identique de manière à sonder la même épaisseur. Ensuite, il est nécessaire de normaliser les pics par la section efficace du processus de photoionisation [86]. Si ces deux conditions sont vérifiées, il suffit de mesurer l'aire des pics élastiques, en soustrayant le fond, et d'appliquer la relation $P_x = (A_x)/(A_x + A_y)$, avec A_x et P_x l'aire du pic et le pourcentage de l'élément x et A_y l'aire de l'élément y. La valeur obtenue donne une information sur la composition de la surface de l'échantillon et ne peut pas être représentative de la composition totale de l'échantillon.

2.5.5.3 Mesure d'épaisseur d'une couche

Une couche d'épaisseur d à la surface d'un échantillon aura pour effet d'atténuer le signal XPS d'un facteur $e^{-\frac{d}{\lambda_e}}$. La figure 2.24 reflète le processus d'atténuation, avec d l'épaisseur de la couche de surface, I l'intensité du signal atténué et I_0 l'intensité du signal non atténué, c'est à dire en l'absence de couche à la surface. La relation entre I et I_0 est donnée par l'équation 2.5.5.3.

$$I = I_0 \cdot e^{-d/\lambda_e} \quad (2.14)$$

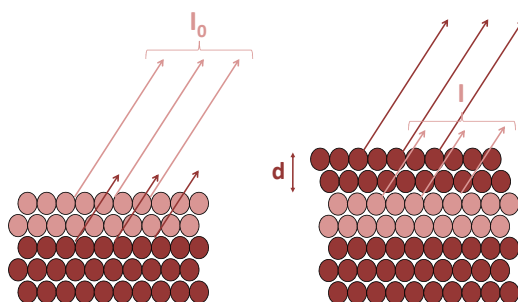


Fig. 2.24 : Illustration de l'atténuation du signal XPS d'une couche enterrée sous une autre d'épaisseur d .

2.5.6 Application au magnétisme : le dichroïsme magnétique circulaire en photoémission

2.5.6.1 Origine du dichroïsme magnétique en photoémission

Des phénomènes de dichroïsme ont également été observés en photoémission [93], et a connu un fort développement théorique, consistant à calculer la dépendance de l'intensité de photoémission de l'angle d'émission et de la polarisation des photons [94, 95, 96]. Le dichroïsme magnétique des rayons X par photoémission implique les trois ingrédients conduisant au dichroïsme magnétique des rayons X en absorption, mais l'origine du signal est différente. Les photons polarisés vont privilégier la transition d'électrons d'une polarisation en spin à cause du couplage spin-orbite. Les électrons ainsi créés sont éjectés du solide, et peuvent être collectés dans un détecteur résolu en spin (un détecteur de Mott par exemple). C'est le principe de la photoémission résolue en spin, qui n'est pas le sujet de ce paragraphe. L'électron polarisé en spin va laisser un trou lui même polarisé en spin dans le niveau de coeur. L'interaction entre la bande de valence polarisée en spin et le trou va dépendre de la polarisation en spin du trou. Cela revient à dire que d'un point de vue énergétique, en présence d'une polarisation de la bande de valence, il n'est pas équivalent de retirer un spin majoritaire ou un spin minoritaire. Un spectre de dichroïsme en photoémission consiste par conséquent à mesurer des spectres XPS pour deux polarisations de photons. La figure 2.25 présente les spectres XPS des états 2p (a) et 3p (b) du fer obtenus pour deux polarisations de photons d'énergie 700eV ainsi que les spectres de dichroïsme magnétiques circulaires en photoémission. Sur ces figures il est évident qu'en changeant la polarisation des photons, la forme du spectre XPS change.

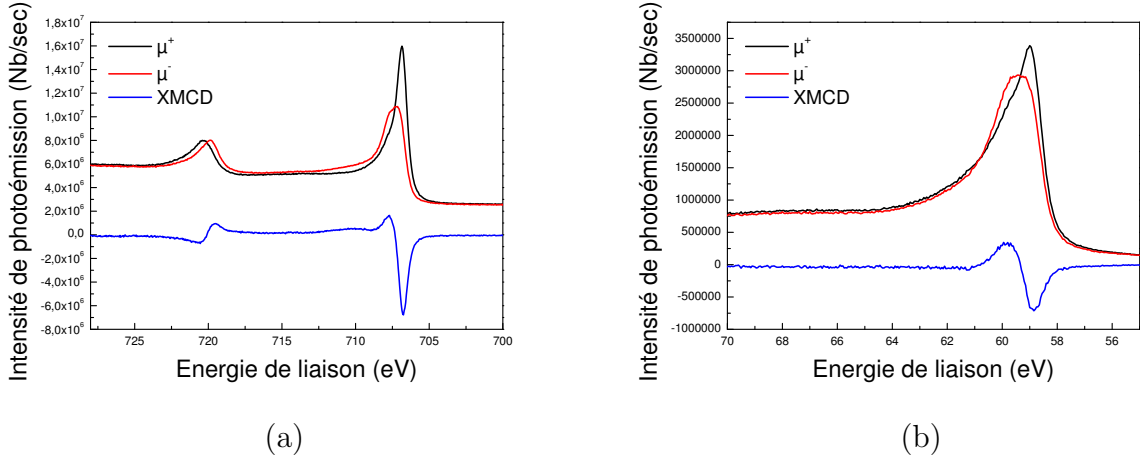


Fig. 2.25 : Spectres XPS et MCD des états 2p (a) à 820 eV d'énergie de photon et 3p (b) à 705 eV d'énergie de photon d'un monocristal de fer.

2.5.6.2 Informations obtenues en MCD

Un spectre de photoémission est une superposition complexe de l'état initial et des états finaux, et de nombreux paramètres peuvent modifier l'allure d'un spectre XPS. La difficulté d'interprétation des spectres est la raison du manque de support théorique. Notamment, il n'existe pas d'équivalent des règles de sommes pour calculer des moments magnétiques. Néanmoins l'étude des propriétés magnétiques en utilisant les spectres MCD possède de nombreux avantages. Tout d'abord pour l'étude du magnétisme de surface, il est possible de choisir la profondeur sondée en choisissant l'énergie cinétique des photoélectrons. Cet atout a été utilisé par exemple pour mesurer l'aimantation d'une couche de gadolinium sur un monocristal de fer [97]. Ensuite, le MCDAD ne nécessite pas l'utilisation de détecteurs résolus en spin. Un détecteur de photoélectron standard équipé d'un channeltron suffit pour ces mesures, ce qui assure un temps d'acquisition inférieur à des mesures de SRXPS. Enfin, bien que le MCD ne puisse pas fournir une valeur absolue du moment magnétique, il est possible d'utiliser le signal qualitativement pour suivre l'évolution des propriétés magnétiques. Dans ce cas le signal à extraire est ce que l'on appelle l'asymétrie magnétique, définie par l'équation 2.5.6.2. Cette asymétrie magnétique est proportionnelle à l'aimantation du matériau. La mesure de l'asymétrie en fonction d'un paramètre particulier (pression d'oxygène, température) permet de déterminer le comportement de l'aimantation.

$$M_{MCDAD} = \frac{\mu^- - \mu^+}{\mu^- + \mu^+} \quad (2.15)$$

2.6 Techniques annexes

2.6.1 Généralités sur la spectroscopie RBS (Rutherford Back Scattering).

La rétrodiffusion d'ions (Rutherford Back Scattering) consiste à irradier une cible par un faisceau d'ions (He, Ar ...) monochromatique de haute énergie (de l'ordre du MeV). Les ions rétrodiffusés perdent une énergie qui dépend de la nature de l'atome diffuseur et de la section efficace, permettant ainsi la quantification du nombre d'atomes dans la cible. Ce petit paragraphe a pour unique but de démontrer comment exploiter le RBS pour obtenir la composition et l'épaisseur d'un alliage.

2.6.1.1 Mesure de la composition

L'énergie des ions après rétrodiffusion E_i est fonction de leur énergie initiale E_0 , de leur masse m_i , de la masse de l'atome diffuseur M_a , et de l'angle du détecteur θ . La relation entre E_i et E_0 est donnée par l'équation 2.16, avec k le facteur cinématique dont l'expression est donnée équation 2.17.

$$E_i = k(m_i, M_a, \theta)E_0 \quad (2.16)$$

$$k = \left[\frac{\sqrt{M_i^2 + M_a^2 \sin^2(\theta)} + m_i \cos \theta}{m_i + M_a} \right]^2 \quad (2.17)$$

La connaissance de m_i , E_0 et θ permet, si on mesure l'énergie de la particule rétrodiffusée E_D , de remonter à la masse de l'atome diffuseur M_a et donc à sa nature chimique. Le nombre d'ions rétrodiffusés n_i à un angle donné est proportionnel au nombre d'atomes diffuseurs N_a dans la cible et au nombre d'ions incidents n_0 . Il est donc possible de déterminer la quantité d'atomes contenus dans la cible, à partir de la relation 2.18.

$$n_i = n_0 N_a S \quad (2.18)$$

Le terme S dans l'équation 2.18 est la section efficace du processus de rétrodiffusion, qui est la principale inconnue dans une expérience RBS (équation 2.19).

$$S = \left[\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{Z_i Z_a}{4E_0 \sin^2 \frac{\theta}{2}} \right]^2 \quad (2.19)$$

La détermination quantitative du nombre d'atomes rétrodiffuseurs dans une cible irradiée implique la connaissance de la section efficace. Celle ci ne dépend que de l'énergie des ions incidents, de l'angle de détection de la charge atomique de l'ion diffusé, Z_i et de l'atome diffuseur Z_a . Le rapport Υ entre les sections efficaces d'un atome a et d'un atome

b est donné par l'équation 2.20. La connaissance de la section efficace de rétrodiffusion d'un élément permet de déterminer, dans des conditions expérimentales équivalentes (flux, angle du détecteur) la section efficace de n'importe quel autre élément chimique.

$$\Upsilon = \frac{S_a}{S_b} = \frac{Z_a^2}{Z_b^2} \quad (2.20)$$

Soit une cible d'élément chimique b dont le nombre d'atomes N_b est connu, avec n_b le nombre d'atomes rétrodiffusés par l'élément b, et S_b la section efficace du processus. Soit une cible d'élément a dont le nombre N_a d'atomes est inconnu mesurée par RBS. Le rapport entre le nombre d'ions rétrodiffusés par la cible a (n_a) et par la cible b (n_b) dans les mêmes conditions expérimentales est donnée par la relation 2.21.

$$\frac{n_a}{n_b} = \frac{N_a S_a}{N_b S_b} = \frac{N_a Z_a^2}{N_b Z_b^2} \quad (2.21)$$

La seule inconnue de l'équation 2.21 est N_a , le nombre d'atomes a rétrodiffuseurs.

2.6.1.2 Mesure de l'épaisseur

Pendant leur traversée de la matière, les ions rétrodiffusés subissent des pertes d'énergies dues aux collisions (élastiques ou inélastiques) avec les atomes ou les électrons. Cela se traduit par une distribution gaussienne de l'énergie des atomes rétrodiffusés. La variance Ω_b^2 , qui correspond à la mi-largeur de la gaussienne, est proportionnelle à l'épaisseur x de la cible. L'équation 2.22 donne la relation entre la variance et l'épaisseur x de la cible. N_a est le nombre d'atome dans la cible, Z_a la charge atomique des atomes rétrodiffuseurs et Z_i la charge de l'ion incident [98].

$$\Omega_b^2 = 4\pi(Z_i e^2)^2 Z_a N_a x. \quad (2.22)$$

Une mesure de la variance de la distribution gaussienne des ions rétrodiffusés donne directement accès à l'épaisseur du film.

2.6.2 Généralités sur l'EXAFS

Le principe de l'absorption a été détaillé section 2.3, ainsi que la désexcitation par fluorescence. L'EXAFS, pour Extended X-ray Absorption Fine Structure, est une technique qui consiste à mesurer le coefficient d'absorption en fonction de l'énergie de photon $\mu(E)$ autour d'un seuil caractéristique d'absorption. Le coefficient d'absorption après seuil présente un régime d'oscillations, conséquence directe de la nature ondulatoire des électrons. Ces oscillations contiennent des informations sur la structure du matériau, ainsi que l'environnement chimique et la nature des voisins de l'atome absorbeur.

2.6.2.1 Origine du régime d'oscillation

Quand un photon est absorbé par l'atome, il transfère son énergie à un électron de coeur qui transite vers un état libre. Si l'énergie du photon est supérieure à l'énergie de liaison de l'électron dans l'atome, l'excédent d'énergie est transformé en énergie cinétique et l'électron est éjecté de l'atome. Dans le continuum d'états électroniques, le photoélectron est considéré comme quasi-libre et l'électron peut être décrit comme une onde sphérique définie par $\phi(r) = \frac{e^{ikr}}{kr}$, d'impulsion k et de longueur d'onde λ . Cette onde se propage dans le solide et va interférer avec les électrons des atomes environnants. Les interférences peuvent être destructives conduisant à la réabsorption ou la rétrodiffusion de l'électron (minimum d'absorption) ou constructives conduisant à une propagation de l'électron (maximum d'absorption) en fonction de la valeur de l'impulsion k du photoélectron. Cette impulsion k du photoélectron est reliée à l'énergie du photon incident E par la relation 2.23, où E_0 est l'énergie de liaison de l'électron et m la masse de l'électron. Le schéma représentant le processus d'interaction entre l'onde sphérique et les fonctions des électrons liés aux atomes plus proches voisins est donné figure 2.6.2.1.

$$k = \sqrt{\frac{2m(E - E_0)}{\hbar^2}} \quad (2.23)$$

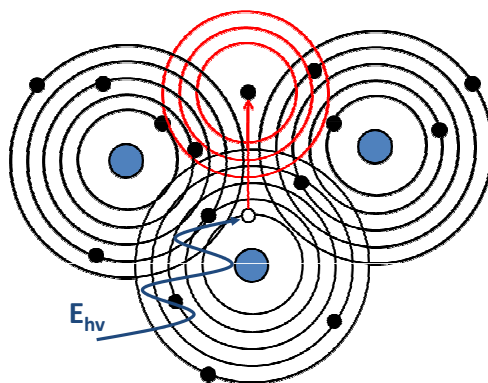


Fig. 2.26 : Schéma du processus d'interaction entre l'onde sphérique de l'électron libre et les électrons des atomes environnants.

2.6.2.2 Théorie de l'EXAFS

Le signal EXAFS contient l'information sur la structure, la nature des voisins ainsi que la coordination des atomes. Il est défini comme la différence entre le spectre d'absorption en présence des atomes diffuseurs et l'absorption d'un atome isolé. L'équation 2.24 donne la relation entre le signal EXAFS, $\chi(E)$, le signal d'absorption $\mu(E)$ et l'absorption de

l'atome isolé μ_0 . $\Delta\mu_0(E)$ est la hauteur du seuil d'absorption. Le signal EXAFS étant lié à la nature ondulatoire de l'électron, il est exprimé en fonction de l'impulsion du photoélectron, reliée à l'énergie du photon E par la relation 2.23.

$$\chi(E) = \frac{\mu(E) - \mu_0(E)}{\Delta\mu_0(E)} \quad (2.24)$$

La fonction $\chi(k)$ contient toute les informations sur la nature des atomes diffuseurs, leur nombre ainsi que leur distance. Ce terme est donnée par la relation 2.25, où N_j représente le nombre d'atomes de l'élément j à une distance R_j , $f_j(k)$ est l'amplitude de diffusion et $\delta(k)$ la phase de diffusion. Le terme $e^{-2k^2\sigma_j^2}$ est le facteur de Debye-Waller prenant en compte les vibrations autour des positions d'équilibres et le terme $e^{-\frac{2R_j}{\lambda(k)}}$ prend en compte le libre parcours moyen des électrons. C'est ce dernier terme qui limite la sensibilité de l'EXAFS aux premiers voisins.

$$\chi(k) = \sum_j \frac{N_j e^{-2k^2\sigma_j^2} e^{-\frac{2R_j}{\lambda(k)}} f_j(k)}{kR_j^2} \sin(2kR_j + \delta_j(k)) \quad (2.25)$$

La relation 2.25 montre que le signal EXAFS est une superposition de fonctions sinusoïdales, où chaque fréquence d'oscillations correspond à une couche ou une nature d'élément spécifique.

2.6.2.3 Extraction des données

Pour réaliser un spectre EXAFS, il est nécessaire de mesurer l'absorption d'un matériau sur une gamme étendue d'énergie de photons. C'est la raison pour laquelle les sources de photons X des lignes d'EXAFS sont des aimants de courbures, qui fournissent un spectre continu de radiation. La nature du signal EXAFS est une superposition d'oscillations qui peut être très complexe. Le signal d'absorption brut doit être normalisé puis transformé en signal EXAFS. Un logiciel couramment utilisé est Athéna, basé sur le programme FEFF, qui permet d'extraire le signal EXAFS. Une fois extrait, ce signal est traité avec le logiciel Artemis, qui permet de reconstruire les signaux à partir d'une base de données complète.

Chapitre 3

**Développement d'une chambre d'évaporation
et montages expérimentaux sur la ligne
TEMPO et au LPS**

3.1 Introduction

Dans ce chapitre, je présente les équipements et les instruments que j'ai utilisé : la chambre de dépôt, les montages de magnétométrie et microscopie Kerr ainsi que la ligne de lumière TEMPO à Soleil. La première section est consacrée à la chambre de dépôt que j'ai conçu et développée ainsi que tous les équipements disponibles pour maîtriser la croissance par co-évaporation thermique. Dans la deuxième, je présente les bancs de magnétométrie et microscopie Kerr au Laboratoire de Physique des Solides, que j'ai utilisé pour les premières caractérisations des propriétés magnétiques de mes échantillons. Enfin, je parlerai de la ligne de lumière TEMPO, des possibilités offertes en termes d'étude des propriétés magnétiques. L'accent sera mis sur l'analyseur de photoélectrons de type Scienta ainsi que les modifications apportées pour les mesures résolues en temps. Enfin je terminerai la discussion en introduisant la notion de mesures résolues en temps et les concepts de base du mode Slicing, projet en cours au synchrotron Soleil.

3.2 La chambre de dépôt pour les alliages CoGd

3.2.1 Conception d'une chambre ultravide pour le dépôt de films minces Co-Gd

3.2.1.1 Importance de la qualité du vide

Pour la fabrication de films minces Co-Gd, j'ai conçu une chambre ultravide, que nous avons ensuite fait fabriquer par la société Ferrovac (figure 3.1). La réactivité du Gd est telle que le vide est une contrainte primordiale pour la croissance d'échantillons Co-Gd. La chambre est pompée en premier lieu par une pompe turbo moléculaire Pfeiffer 100, assistée par une pompe primaire Varian, permettant d'atteindre un vide de 10^{-8} mbar avant étuvage. Un étuvage de deux jours à 150°C permet de descendre à 9×10^{-10} mbar, puis une pompe ionique Varian prend le relai pour pousser le vide jusqu'à 1×10^{-10} mbar. Enfin, une vanne d'équerre permet d'isoler la chambre de la pompe turbo. La chambre n'est pompée alors que par la ionique. Ceci permet d'améliorer le vide limite dans la chambre mais aussi de s'assurer que la chambre est à l'abri de tous problèmes liés par exemple à l'arrêt de la pompe primaire ou de la pompe turbo. Le vide n'est pas seulement limité par le pompage, mais aussi par le matériel à l'intérieur de la chambre. Un dégazage de tous les composants ultravide (jauges, évaporateurs, balance...) doit être effectué en fin d'étuvage. Une grande partie du gadolinium évaporé va se déposer sur les parois de la chambre, créant ainsi un piège à oxygène. Plus le nombre de dépôt est important, meilleur est le vide. Le vide ultime atteint dans la chambre est de 6×10^{-11} mbar, pression donnée

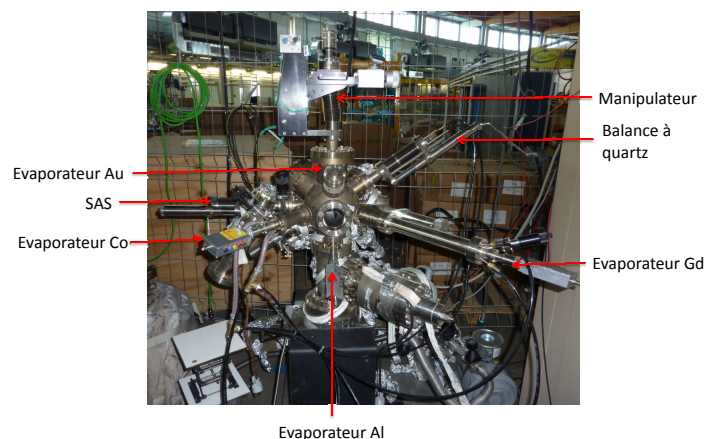


Fig. 3.1 : Photo de la chambre de croissance.

par la jauge. Le vide de croisière est plutôt autour de 9×10^{-11} mbar.

3.2.1.2 L'équipement de la chambre

Le vide est un paramètre essentiel pour les propriétés magnétiques de couches minces contenant du gadolinium. Par conséquent un sas a été fabriqué pour introduire des substrats propres depuis l'extérieur, sans altérer le vide dans la chambre principale. Le système de transfert est le même que sur la chambre principale de la ligne TEMPO, ainsi que le porte échantillon. Le porte échantillon est fixé sur un manipulateur pourvu d'une rotation de 360° et d'un déplacement suivant les trois coordonnées spatiales. La chambre est équipée de quatre évaporateurs, deux commerciaux (Ferrovac) pour l'évaporation du cobalt et du gadolinium et deux fabriqués par nos soins, pour l'évaporation de l'or et de l'aluminium. Ces quatre évaporateurs montés sur quatre brides faisant face au centre de la chambre sphérique, présentent un angle d'incidence de 30° par rapport au plan du substrat. La géométrie des évaporateurs permet d'évaporer quatre métaux simultanément sur un substrat. Une balance à quartz montée sur un translateur peut être placée au niveau de la position de l'échantillon. Elle permet de calibrer les taux de dépôts de chaque évaporateur en fonction de la puissance fournie. Un cache en inox percé d'une fente (1×5 mm) est monté sur un translateur motorisé pour réaliser des échantillons présentant un gradient de composition. Une des alimentations de tension est dans cette optique programmable pour créer des rampes de tension sur un des évaporateurs. Un cryostat qui permet de maintenir le substrat à la température de l'azote liquide a été monté pour le dépôt d'échantillon à basse température. L'agencement de tous ces équipements permet également de monter la chambre sur la branche secondaire de la ligne TEMPO.

3.2.1.3 La croissance par co-évaporation

Le mode de dépôt choisi pour les alliages est la co-évaporation thermique. Cette technique permet a priori à la fois un bon contrôle de la composition, puisqu'il suffit de contrôler le flux de chacun des évaporateurs, et une bonne reproductibilité. Le principe du dépôt pour les évaporateurs Ferrovac de gadolinium et de cobalt est simple. Un creuset de tungstène contenant le métal pur est porté à une tension de 2 kV. Le cobalt et le gadolinium massifs utilisés sont purs à 99,99% et stockés dans une armoire, à l'air. Des filaments placés à proximité du creuset sont chauffés à blanc et émettent des électrons. Les électrons sont accélérés vers le creuset, provoquant une élévation de la température au delà du point de fusion des métaux. Le tout est refroidi par un circuit d'eau à 17°. Le creuset est quasiment fermé, et ne possède qu'une petite ouverture d'un millimètre sur l'avant. Par conséquent le flux de vapeur est très directif, et la quantité de métal dans le creuset diminue très lentement. Le taux de dépôt des évaporateurs a été mesuré par la balance à quartz en fonction de la puissance appliquée sur le creuset (figure 3.2). Les taux de dépôts n'excèdent pas les 2Å/min ce qui implique des temps de croissance longs pour déposer des couches de plusieurs nanomètres d'épaisseur. La précision de la balance est de l'ordre de 0.1Å/min. Le taux d'évaporation du cobalt mesuré pendant toute une nuit est représentée figure 3.3. Le taux d'évaporation est très stable dans le temps ce qui permet d'envisager la croissance d'échantillons d'une dizaine de nanomètres d'épaisseur. Nous avons travaillé avec des taux de dépôt faibles, assurant une bonne stabilité et un vide inférieur à 5×10^{-10} mbar dans la chambre pendant la croissance. Les inconvénients liés à ce mode de croissance sont d'ordre géométrique : difficulté de superposer les flux de vapeurs et d'effets d'ombrages sur le substrat [99]

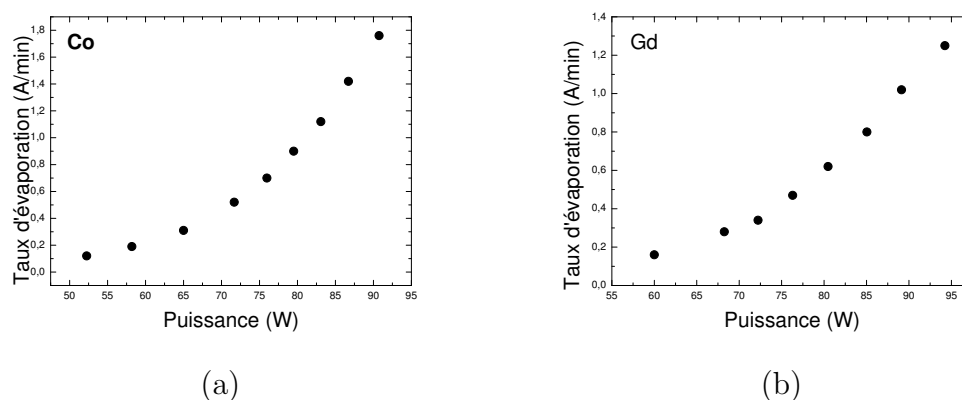


Fig. 3.2 : Vitesse de dépôt en fonction de la puissance sur le creuset pour le cobalt (a) et le gadolinium (b).

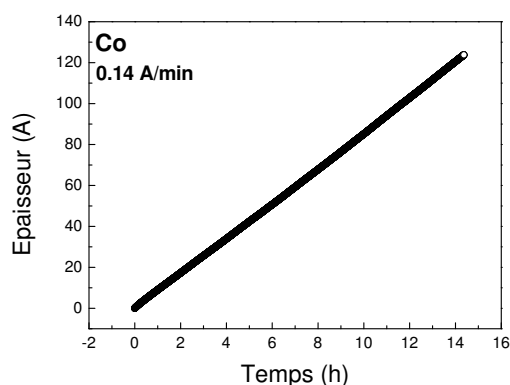


Fig. 3.3 : Epaisseur de cobalt déposée en fonction du temps pour l'évaporateur de cobalt.

Les évaporateurs d'or et d'aluminium servent pour déposer une couche de protection en fin de croissance pour préserver les films de la contamination lorsqu'ils sont transférés vers la ligne de lumière ou pour des expériences de magnétométrie Kerr. L'évaporateur d'aluminium fonctionne sur le même principe que les évaporateurs de type Ferrovac. Cependant, la température de fusion de l'aluminium n'est que de 600°C et cet évaporateur n'est pas refroidi ce qui permet d'atteindre des taux de dépôts de l'ordre de $10\text{Å}/\text{min}$. L'évaporateur d'or consiste en une boule d'or soudée sur un filament de tungstène. Le passage d'un courant électrique dans le filament va chauffer la boule d'or qui va émettre des atomes. Le taux de dépôt est extrêmement faible (moins de $1\text{Å}/\text{min}$) et la moindre vibration mécanique peut faire décrocher la boule d'or. Un chauffage trop important peut également faire fondre l'or qui s'écoule au fond de la chambre.

3.2.1.4 Les substrats

Les alliages sont déposés à température ambiante sur des substrats de silicium. Le dépôt à température ambiante signifie qu'aucun systèmes cryogéniques ni de chauffages ne sont utilisés pour modifier la température du substrat. Cela ne signifie pas forcément que la température du substrat reste constante au cours du dépôt. Il est possible que la proximité des évaporateurs élève la température réelle des substrats. Un montage avec des résistances de platines est prévu pour la suite. Les substrats de silicium de forme rectangulaire et de dimensions latérales 5×10 mm ont une épaisseur de $500\ \mu\text{m}$. Une couche d'oxyde de silicium d'épaisseur 100nm a été créée par voie chimique à la centrale de technologie universitaire à Orsay. La couche d'oxyde est amorphe et permet l'isolation électrique de pistes lithographiées pour des études de transport dans les alliages CoGd. Les échantillons déposés ont une épaisseur comprise entre 10 et 20 nm et sont couverts par une couche de 5 nm d'or ou d'aluminium.

3.2.2 Calcul de la composition à partir des taux d'évaporation

La composition attendue du film peut être obtenue à partir des vitesses v_i de chaque constituant i . Soit e l'épaisseur du film et S la surface du substrat sur lequel on dépose l'élément i , de densité volumique ρ_i et de masse molaire M_i . L'épaisseur du film n'est autre que le produit du taux de dépôt de l'élément i (v_i) par le temps de dépôt (t). Le nombre d'atomes de l'élément i (N_i) déposé est donné par l'équation 3.1, où \mathcal{N} est la constante d'Avogadro.

$$N_i = \frac{v_i \cdot t \cdot S \cdot \rho_i \cdot \mathcal{N}}{M_i} \quad (3.1)$$

Soit x la proportion de gadolinium dans l'alliages Gd_xCo_{1-x} , et R le rapport entre le nombre d'atomes de gadolinium et d'atomes de cobalt. Il est possible de relier ces deux paramètres aux expressions de N_{Gd} et N_{Co} (3.1) par l'équation 3.2.

$$R = \frac{x}{1-x} = \frac{N_{Gd}}{N_{Co}} = \frac{v_{Gd} \rho_{Gd}}{M_{Gd}} \frac{M_{Co}}{v_{Co} \rho_{Co}} \quad (3.2)$$

3.3 Bancs de magnétométrie et de microscopie Kerr

3.3.1 La magnétométrie Kerr

On a vu à la section 2.4 que l'effet Kerr se manifeste par une rotation de l'axe de polarisation de la lumière, donc le montage est basé sur des techniques de polarimétrie. Le montage comprend une source de photons (laser vert ou rouge), un polariseur, un jeu de bobine ou un électroaimant, un modulateur photoélastique (PEM) et un analyseur. La détection de l'intensité du signal se fait via un photomultiplicateur (PM). Le modulateur est un milieu biréfringent, c'est à dire possédant deux directions avec des indices de réfractions différentes. Les composantes sur ces axes d'une onde électromagnétique ce propageant dans le PEM acquièrent un déphasage. Dans ce montage, les axes de biréfringences du PEM correspondent aux directions p et s (respectivement parallèle et perpendiculaire au plan d'incidence) de la polarisation de la lumière (voir section 2.4) et l'axe du polariseur est fixé suivant un de ces axes. L'axe de l'analyseur forme un angle de 45° avec l'axe du polariseur. Dans le cas où l'axe du polariseur est suivant la direction p , la réflexion à la surface d'un matériau ferromagnétique va induire une composante suivant la direction s . L'onde réfléchi est ensuite transmise par le PEM qui va induire un déphasage entre les composantes p et s à une fréquence f caractéristique. Il est possible de démontrer que l'intensité lumineuse en sortie du montage possède une composante continue, une composante de fréquence f proportionnelle à l'ellipticité qu'acquière l'onde après réflexion et une fréquence $2f$ proportionnelle à la rotation qu'acquière l'onde après réflexion. L'utilisation d'un Lock-in permet de mesurer la tension sur le PM correspondant à la composante à f

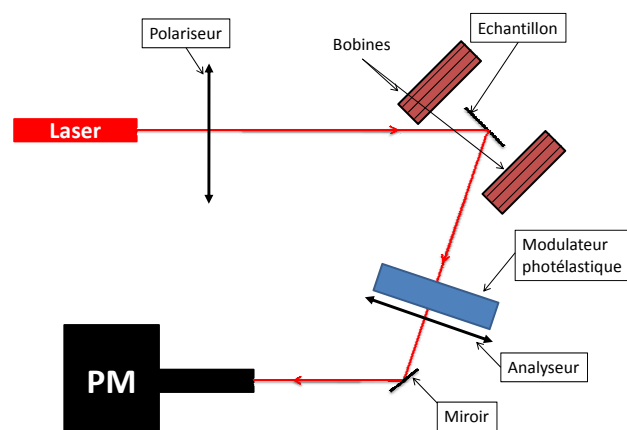


Fig. 3.4 : Schéma du banc de magnétométrie Kerr en configuration longitudinale.

ou à $2f$. Le modulateur photoélastique que nous utilisons a une fréquence de $f=50$ kHz, ce qui permet de filtrer les bruits basses fréquences. L'effet Kerr est sensible à la composante de l'aimantation suivant le vecteur d'onde, ce qui justifie les trois configurations polaire, longitudinale et transverse. Le montage décrit est modulable ce qui permet de travailler en configuration polaire ou longitudinale (voir section 2.4). Un schéma du montage en configuration longitudinale est représenté figure 3.4. Le champ magnétique est fourni par un couple de bobines, ou un électroaimant, parcourus par un signal électrique triangulaire de fréquence pouvant varier de 0.05 à 1 Hz. Le champ magnétique est mesuré par une sonde de Hall. Dans la configuration longitudinale, l'écartement entre les bobines doit être suffisant pour qu'un faisceau rasant qui se réfléchit sur l'échantillon puisse ressortir sans réflexions parasites. Cet écartement limite fortement le champ magnétique ressenti par l'échantillon, inférieur à 1kOe dans notre cas.

3.3.2 La microscopie Kerr

Un microscope Kerr fonctionne comme un microscope optique classique auquel on adjoint un analyseur de polarisation. Un schéma du microscope utilisé dans cette thèse est présenté figure 3.5. Une diode joue le rôle de source de faisceau non cohérent, qui passe par un polariseur puis par un cube séparateur. La moitié de la lumière est réfléchie vers l'échantillon en passant par l'objectif du microscope. La source éclaire une partie de l'échantillon, qui peut être considéré comme une source secondaire. L'échantillon étant au point objet de l'objectif, les règles de l'optique géométrique nous permettent de déterminer le parcours des faisceaux issus de n'importe quel point de la source lumineuse secondaire.

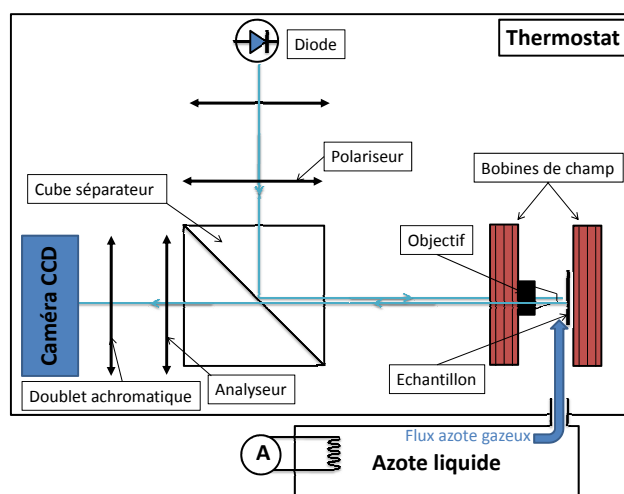


Fig. 3.5 : Schéma du banc de microscopie Kerr en configuration polaire.

Cette construction est présentée figure 3.6. Les faisceaux issus d'un même point sont tous parallèle entre eux à la sortie de l'objectif. Ces faisceaux parallèles sont équivalents à des points sources situés à l'infini. A chaque point de l'échantillon correspond un point sur le détecteur de la caméra CCD (également figure 3.6). Le détecteur de la caméra CCD, refroidie à -15°C est placé dans le plan image du doublet achromatique, ce qui permet de reconstruire une image de la source, qui dans ce cas est la partie de l'échantillon éclairée par la diode. Le détecteur de la CCD à une surface efficace de 748 par 512 pixels. La géométrie du montage implique que chaque pixel est équivalent à une surface de $0.106 \times 0.106 \mu\text{m}^2$ dans les conditions optimales de réglage. La cadence d'acquisition d'image de la CCD est de 1 par seconde au maximum. Le banc de microscopie est placé dans une enceinte dont la température est régulée pour s'affranchir des dérives. Un espace est aménagé sur l'enceinte pour faire passer un tuyau relié à une bouteille d'azote liquide. Le chauffage de la bouteille par un filament permet d'évaporer de l'azote qui va refroidir l'échantillon. CE montage permet de réaliser des mesures en température. Malgré l'aspect rudimentaire du montage, une régulation de la température à mieux de 0.5°C est possible sur une durée de plusieurs heures. Dans le cas de films ultraminces de cobalt entre deux couches de platine, le rapport entre l'intensité du signal Kerr et le fond continu est de l'ordre de 10^{-3} , ce qui nous oblige à travailler en différence d'images, pour obtenir un contraste suffisant.

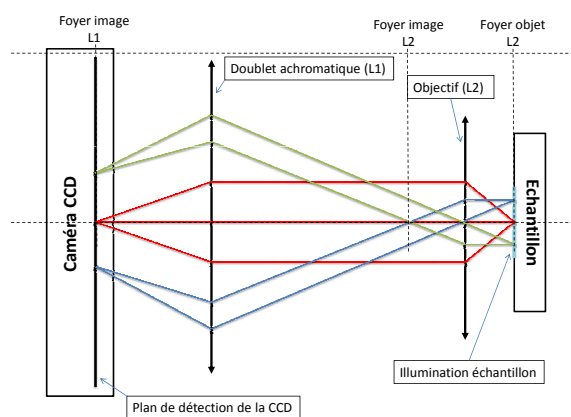


Fig. 3.6 : Construction d'une image en microscopie optique.

3.4 Time resolved Experiments on Materials with PhotOemission spectroscopy : TEMPO Beamline

3.4.1 Description générale

TEMPO est une ligne de rayons-x mous, adaptée à l'étude dynamique de la structure électronique et magnétique de la matière. Les principaux thèmes de recherches menés sur la ligne sont l'étude du magnétisme dans des micros et nanostructures, la cinétique de réaction de molécules déposées sur des surfaces et enfin les mesures pompes sondes à deux photons (laser + synchrotron). La gamme d'énergie disponible sur la ligne s'étend de 50 à 1600 eV, ce qui recouvre les seuils K des composés organiques (carbone, oxygène, azote), les seuils L des métaux de transition de la quatrième période (Ni, Co, Fe ...), et les seuils M des terres rares (Gd, Eu ...).

Le faisceau de photons de la ligne TEMPO est fourni par deux onduleurs de type HU80 et HU44, de type Apple II Insertion Devices, qui permettent de couvrir la gamme d'énergie (de 50 à 900eV avec HU80 et de 600 à 1500 eV pour HU44) et de fournir une polarisation circulaire ou linéaire (verticale ou horizontale). Un onduleur est composé de deux mâchoires de part et d'autre du faisceau d'électron. Chacune des mâchoires est une succession d'aimants permanents dont les pôles magnétiques sont inversés entre plus proches voisins. Le schéma de l'onduleur le plus simple qui produit du rayonnement en polarisation horizontale est représenté figure 3.7. L'alternance des pôles va induire une trajectoire oscillante aux paquets d'électrons qui passent entre les mâchoires, leur faisant émettre des photons. La période λ_s des aimants ainsi que l'écartement (plus communément appelé le GAP) vont moduler les interférences entre les photons émis par les paquets d'électrons, ce qui a pour conséquence une émission à des fréquences (ou énergies) bien

précises. Les mâchoires sont mobiles et peuvent être déphasées parallèlement au faisceau d'électrons. Si chaque mâchoire est divisée en deux parties, la combinaison des quatre directions de champ permet d'obtenir des photons de polarisation variable et en particulier des photons polarisés circulairement (gauche ou droite). Les deux onduleurs sur la ligne TEMPO correspondent à des périodes $\lambda_s = 80$ mm (HU80) pour les basses énergies et $\lambda_s = 44$ mm (HU44) pour les hautes énergies. La figure 3.8 présente le flux de photon émis par l'onduleur HU44 pour trois valeurs de gap, correspondant à des énergies de 700, 800 et 1300 eV. Les secondes harmoniques apparaissent à 1400 et 1600 eV.

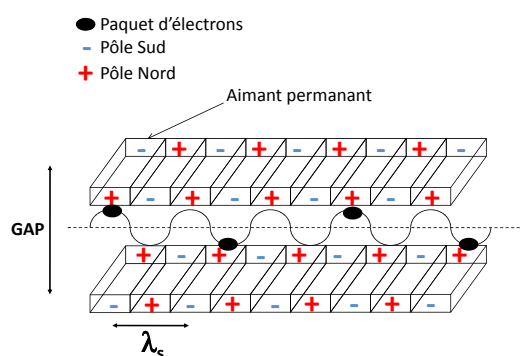


Fig. 3.7 : Schéma d'un onduleur.

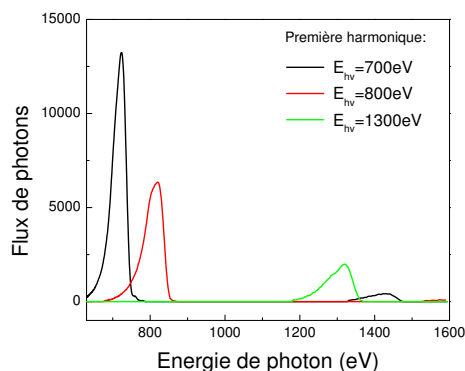


Fig. 3.8 : Flux en sortie de l'onduleur pour trois valeurs de gap correspondant à des énergies de 700, 800 et 1300 eV en polarisation circulaire.

La dispersion énergétique des photons émis par les onduleurs est obtenue par des réseaux plans, avec une résolution $\frac{E}{\Delta E} > 5000$, pour un flux de photons d'à peu près $4 \cdot 10^{13}$ Phot/s/0.1bw sur l'échantillon. Ces réseaux sont usinés de manière à rejeter les harmoniques supérieures. La ligne est équipée de trois réseaux (monochromateurs) ayant cha-

cun un nombre de traits par mm différent de manière à couvrir la gamme d'énergie. Deux chemins optiques distincts permettent de ramener le faisceau sur le dispositif expérimental après monochromatisation. La combinaison entre le réseau diffractant et le chemin optique dépend de l'énergie du faisceau après le réseau. Le flux de photons en fonction de l'énergie pour cinq configurations est donné figure 3.9. L'onduleur HU44 ne descend pas à basse énergie alors que le HU80 peut monter jusqu'à 900eV, mais pour des flux très faibles à haute énergie. Ces mesures de flux ont été réalisées pour un faisceau polarisé linéairement horizontale (la polarisation est dans le plan de l'orbite des électrons). Le trou dans les courbes de flux en fonction de l'énergie à 284 eV correspond au seuil du carbone. Le faisceau monochromatisé peut-être envoyé soit vers la chambre principale

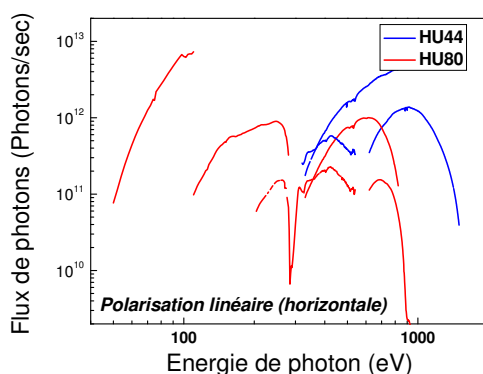


Fig. 3.9 : Flux en sortie des réseaux en fonction de l'énergie de photons.

d'analyse, soit vers une branche annexe pouvant accueillir les stations expérimentales des utilisateurs. La taille du faisceau est de l'ordre de $100 \times 100 \mu\text{m}$ sur l'échantillon. La figure 3.10 représente la trace du faisceau de la branche secondaire au point focal sur un objet luminescent (YAG) comparée à un calcul réalisé par B. Lagarde et F. Polack, du groupe optique de Soleil.

Toutes ces informations sont disponibles sur le site web de la ligne [100].

3.4.2 Station expérimentale principale de la ligne TEMPO

La station expérimentale de la ligne TEMPO est consacrée à la photoémission et au dichroïsme magnétique des rayons X. Elle est constituée de deux chambres, une chambre d'analyse et une chambre de préparation. Les paragraphes suivants ont pour objectifs de présenter les équipements disponibles.

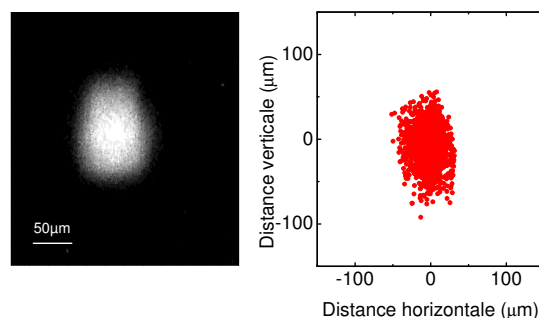


Fig. 3.10 : Taille du faisceau par mesure directe (à gauche) et par calcul (à droite).

3.4.2.1 La chambre de préparation

La chambre de préparation est maintenue sous ultravide et permet de préparer les échantillons ou de réaliser des dépôts in-situ. Un sas permet d'introduire des substrats (pour des dépôts in-situ) ou des échantillons sans détériorer le vide. Cette chambre est équipée d'un canon à argon, d'un four (chauffage par bombardement électronique ou chauffage direct), d'une cellule d'évaporation (choix de cible à évaporer) et d'une bobine magnétique. Plusieurs brides permettent de rajouter des éléments spécifiques à chaque utilisateur, comme des évaporateurs supplémentaires ou des vannes de fuites pour l'introduction de gaz dans la chambre. Le système de manipulation des échantillons dans la chambre a été développé par la société Ferrovac [101]. Une fourchette permet de manipuler les objets et un charriot permet de stocker jusqu'à quatre échantillons sous ultravide. Ce chariot permet également le transfert des échantillons vers la chambre d'analyse.

3.4.2.2 La chambre d'analyse

La technique expérimentale principale de la ligne TEMPO est la photoémission, ce qui implique la nécessité de travailler sous ultravide. Le système de pompage comprend une pompe ionique, trois pompes turbos et une pompe cryogénique. L'utilisation de toute la puissance de pompage permet d'assurer un vide de l'ordre de 10^{-10} mbar. La chambre est équipée d'un LEED (low energy electron diffraction) pour la caractérisation de la structure des surfaces, d'un canon à argon pour le nettoyage des échantillons, d'un détecteur de photoélectrons Scienta 2002 équipé d'une ligne à retard bi-dimensionnelle (dont le principe est exposé au paragraphe suivant) et d'un laser continu. Un cryostat permet de descendre à 80K au niveau de l'échantillon sous azote et à 48K sous hélium. Enfin, un câble BNC gainé est relié au porte échantillon pour des mesures de courant échantillon. Le porte

échantillon est maintenu au bout du cryostat tout en assurant un bon contact thermique. La diversité des thématiques abordées sur la ligne impose l'utilisation de deux types de portes échantillons, un dédié au magnétisme et l'autre dédié à la physique de surfaces et interfaces, aux semi-conducteurs et à la chimie. Le montage dit magnétisme comprend une petite bobine qui permet d'appliquer un champ magnétique de 50 Oe en statique et 200 Oe en pulsé dans le plan de l'échantillon. Le montage dit semi-conducteur permet de fixer un filament directement sous l'échantillon pour chauffer ce dernier. Il est possible de passer d'un montage à l'autre en deux jours. Les deux montages offrent la possibilité de changer l'angle azimutal de l'échantillon. Le porte échantillon ainsi que le cryostat sont fixés sur un manipulateur qui permet la rotation polaire de l'échantillon ainsi que ces translations dans les trois directions de l'espace. Ce manipulateur est contrôlé par des moteurs qui permettent des déplacements avec une précision de $20\mu m$.

3.4.2.3 L'environnement échantillon

La figure 3.11(a) représente une photographie du support échantillon dans la configuration magnétisme. Le champ magnétique est appliqué dans le plan de l'échantillon (en bleu sur la photo). Le champ magnétique est produit par passage de courant dans une bobine, dont les lignes de champ se referment sur l'échantillon. Le courant est fourni par une Kepco bipolaire qui permet d'envoyer des impulsions de 10A ayant une durée de 500 ms dans la bobine, produisant un champ de 200 Oe d'amplitude. En statique, le fil de cuivre utilisé ne permet pas de supporter les 10A ce qui limite le champ à 50 Oe. La figure 3.11(b) est une photographie du porte échantillon dans la chambre de photoémission de la ligne TEMPO. Dans cette configuration, les rayons X ont une incidence de 45° et l'échantillon fait face à l'analyseur de photoélectrons (Scienta).

3.4.3 Mesures de spectres d'absorption sur TEMPO

3.4.3.1 Le rendement total d'électrons

Il existe deux façons de mesurer un spectre d'absorption : la fluorescence et le rendement total d'électrons (section 2.3). La gamme d'énergie de la ligne TEMPO s'étend de 50 à 1600 eV, dans laquelle la désexcitation par émission Auger a une section efficace beaucoup plus importante. Tous les spectres d'absorption mesurés sur la ligne TEMPO ont été obtenus dans le mode de rendement total d'électrons. Il ya deux manières de mesurer les photoélectrons issus du processus d'absorption : soit en mesurant directement le courant avec un pico-ampèremètre soit en utilisant l'analyseur de photoélectron Scienta. Dans le premier cas, la mesure est extrêmement simple puisqu'il suffit de lire la valeur affichée par le pico-ampèremètre en fonction de l'énergie des photons. Il est également possible

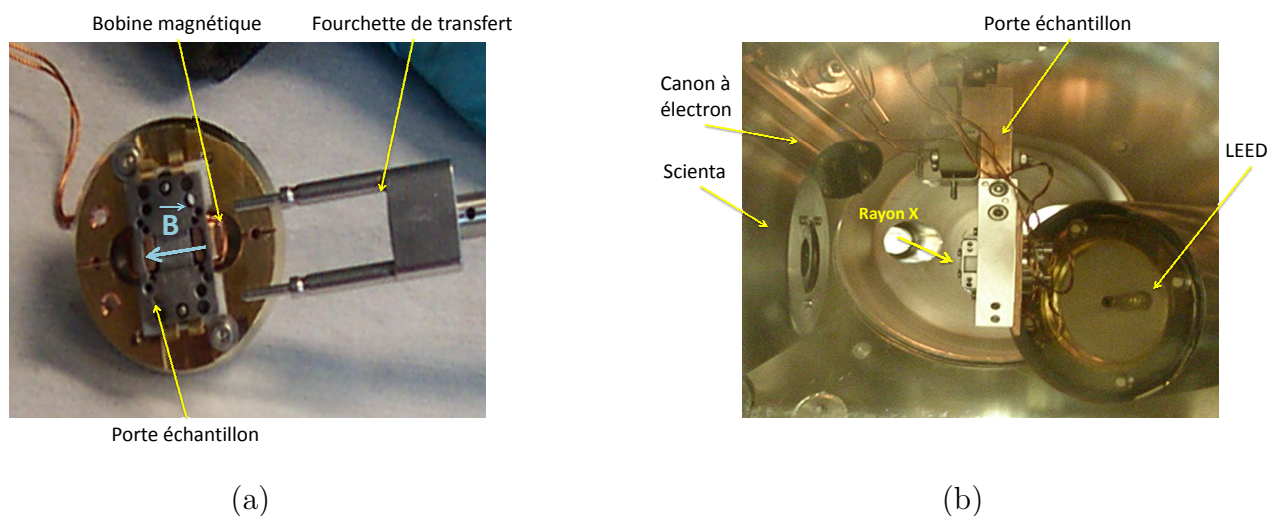


Fig. 3.11 : Photographie représentant le porte échantillon (a) et l'intérieure de la chambre d'analyse, avec le manipulateur en position de mesure (b).

de réaliser des mesures d'absorption sous champ magnétique dans cette configuration. L'utilisation du Scienta permet de réaliser des spectres d'absorption avec une résolution énergétique des photoélectrons, ce qui permet de récolter des photoélectrons spécifiques, comme les électrons Auger primaires. Il n'est par contre pas possible d'utiliser de champ magnétique, puisque celui-ci modifierait la trajectoire des électrons qui n'atteindraient plus l'analyseur.

3.4.3.2 Acquisition d'un spectre XAS

Pour réaliser un spectre d'absorption, il est nécessaire de balayer l'énergie des photons et de mesurer un signal proportionnel au coefficient d'absorption du matériau. Le balayage en énergie est assuré par la rotation du monochromateur (figure 3.9). Le réseau est choisi pour optimiser l'intensité de photons. Sur la ligne TEMPO, la gamme d'énergie sur laquelle s'étend un spectre d'absorption aux seuils $L_{2,3}$ des métaux de transition est de l'ordre de la largeur du pic d'émission de l'onduleur (voir figure 3.8). L'acquisition d'un spectre réalisé en ne bougeant que le monochromateur va présenter un fond variable avec un maximum de flux correspondant au centre du pic d'émission et des bords avec beaucoup moins d'intensité. Pour obtenir des spectres exploitables, le gap de l'onduleur et la phase sont choisis de manière à ce que l'ensemble du spectre d'absorption soit acquis dans une zone de montée du pic de l'onduleur, pour avoir un fond linéaire. La mesure de l'intensité incidente est obtenue par insertion d'une grille d'or qui va absorber une partie du faisceau et permettre de mesurer le flux de photons en fonction de l'énergie. Cette

mesure sert de référence et permet de normaliser le signal sur l'échantillon afin d'obtenir le spectre d'absorption.

Il existe deux modes d'acquisition des données : le mode point par point ou le mode balayage rapide. Dans le mode point par point, le monochromateur est ajusté pour chaque valeur d'énergie et le système d'acquisition enregistre une valeur de courant (en rendement total d'électron). Le pas ΔE entre chaque acquisition est choisie par l'utilisateur. Dans le mode balayage, le monochromateur est mis en mouvement à vitesse continue et l'acquisition des valeurs de courant se fait à la volée. Ce mode permet d'acquérir des spectres d'absorption aux seuils $L_{2,3}$ des métaux de transition en environ une minute, avec une bonne statistique. Si le gap de l'onduleur et le monochromateur sont mis en mouvement simultanément sur la gamme d'énergie du spectre, le flux de photons correspond au maximum du pic de l'onduleur. Ce mode est appelé le turboscan. Tous les spectres d'absorption présentés dans ce manuscrit ont été obtenus dans cette configuration.

3.4.3.3 Acquisition d'un spectre XMCD

Un spectre XMCD implique la mesure de deux spectres d'absorption pour deux polarisations de photons circulaires (gauche et droite). En théorie, le déphasage de l'onduleur est symétrique pour obtenir des photons gauche ou droite pour une même énergie. En pratique, les onduleurs sont rarement purement symétriques entraînant des spectres non parfaitement superposables. Ce problème est en partie corrigé par l'utilisation de la grille d'or décrite précédemment, qui permet une calibration précise de chaque polarisation. De plus, le déphasage des onduleurs est un processus qui peut fortement perturber l'orbite du faisceau nécessitant une correction en temps réelle. Pour que la correction des orbites soit effectuée dans des conditions optimales, la vitesse de déphasage des onduleurs est faible, de l'ordre du mm par seconde : il faut de fait quelques minutes pour passer d'une polarisation à une autre. Nous avons par conséquent décidé de travailler avec une polarisation de photon fixée, et de retourner l'aimantation grâce à un champ magnétique. L'application d'un champ magnétique pour renverser la polarisation du matériau est très rapide et permet donc de raccourcir l'acquisition des deux spectres. Nous avons systématiquement vérifié les résultats en répétant la mesure avec la polarisation opposée. La contre partie est de s'assurer que le champ magnétique disponible sur la ligne est suffisant pour saturer l'aimantation dans l'échantillon et que l'aimantation à rémanence est de 100% (pour pouvoir utiliser les règles de sommes par exemple).

En résumé, tous les spectres d'absorption et de dichroïsme aux seuils $L_{2,3}$ du cobalt et du fer et aux seuils $M_{4,5}$ du gadolinium ont été mesurés en turboscan à rémanence après saturation de l'échantillon. Tous les échantillons étudiés ont été préalablement caractérisés en magnétométrie Kerr pour déterminer le champ coercitif, le champ de saturation, les

axes d'anisotropie et l'aimantation à rémanence (voir section 5.2).

3.4.4 Mesures de photoémission sur la ligne TEMPO

3.4.4.1 Le détecteur de photoélectron

La chambre principale de la ligne est équipée d'un analyseur de photoélectrons Scienta SES 2002, dont un schéma est présenté figure 3.12. L'analyseur de photoélectron doit discriminer les photoélectrons en fonction de leur énergie cinétique et de leur angle d'émission (voir section 2.5). Les trajectoires des photoélectrons dans l'analyseur sont contrôlées par des champs électriques, qui permettent de sélectionner les électrons qui parviennent jusqu'au détecteur. Les lentilles électrostatiques permettent de ralentir les photoélectrons et d'imposer aux électrons photoémis avec une énergie cinétique précise de sortir des lentilles avec une énergie cinétique égale à l'énergie de passage. L'énergie de passage correspond à la valeur en énergie de l'électron dont l'orbite dans l'hémisphère passe par le centre de la fente de sortie. L'hémisphère permet également de disperser les électrons dont l'énergie cinétique est inférieure ou supérieure à l'énergie de passage. Les électrons dont les trajectoires passent par la fente de sortie vont percuter un détecteur bidimensionnel. La position de l'impact permet de remonter à l'angle d'émission ainsi qu'à l'énergie cinétique du photoélectron. La géométrie de l'analyseur permet de disperser les trajectoires en fonction de l'énergie dans une direction et en fonction de l'angle dans la direction orthogonale. Les modes d'acquisition des spectres XPS sont le mode balayage et le mode fixe. Dans le mode balayage l'énergie de passage et les tensions de l'hémisphère sont optimisées pour détecter les électrons d'énergie cinétique en sortie de l'échantillon bien déterminée. Un point correspond au nombre d'électrons détectés sur un temps donné. Le spectre est obtenu en répétant l'opération pour toutes les valeurs d'énergie cinétique dans la gamme étudiée. Le mode fixe consiste à fixer la gamme d'énergie cinétique autour d'une valeur déterminée. Le résultat consiste en une image du détecteur où le nombre d'électrons pour toutes les valeurs d'énergie cinétique sont mesurées simultanément. L'acceptance angulaire du détecteur sur la ligne TEMPO est de 12° , ce qui signifie qu'en incidence normale, seuls les électrons dont l'angle d'émission est inférieur à 6° par rapport à la normale sont collectés. Il découle deux modes de fonctionnement pour le détecteur : le mode en transmission et le mode angulaire. Dans le mode en transmission, les électrons avec une énergie cinétique donnée sont collectés. Dans le mode angulaire, un spectre est pris pour chaque valeur d'angle.

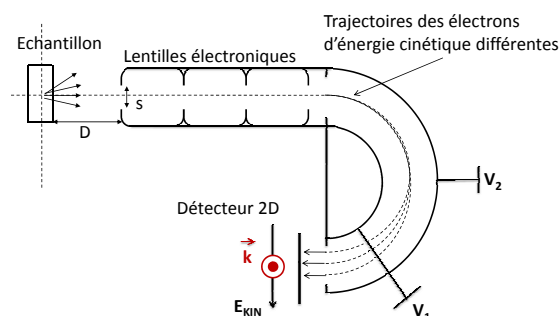


Fig. 3.12 : Schéma illustrant brièvement le principe d'un détecteur de photoélectrons hémisphérique.

3.4.4.2 La photoémission résolue en temps

Dans les analyseurs de photoélectrons standard, le détecteur bidimensionnel est une caméra CCD placée derrière un écran phosphorescent. Sur la ligne TEMPO, le détecteur est une double ligne à retard dont le fonctionnement consiste à convertir un photoélectron en une impulsion de courant qui va circuler dans les deux lignes. La mesure précise de la différence des temps d'arrivées des impulsions en bout de chaque ligne va permettre de déterminer la position exacte de l'impact du photoélectron avec le détecteur. Le temps d'arrivée des électrons est mesuré avec une précision de 50ps, ce qui correspond à une résolution de $100\mu\text{m}$. Une photographie du détecteur ainsi qu'un spectre représentant les impulsions de courant issus du même photoélectron sont représentés figure 3.13. Le temps caractéristique de trajet des impulsions dans les lignes à retard est de l'ordre de 5 ns. C'est la résolution temporelle du détecteur. Cette résolution est adaptée à la structure temporelle de la machine de Soleil. Les modes de fonctionnement de la machine de soleil en structure temporelle sont le mode 8 paquets et le mode hybride. Dans le mode 8 paquets, des impulsions de largeur 50 ps sont espacées de 148 ns. Dans le mode hybride, l'anneau est remplie au trois-quarts avec un mode standard avec un paquet isolé dans le dernier quart. La résolution du détecteur est suffisamment élevée pour distinguer les électrons provenant d'impulsions X différentes. Si le temps de réponse de détecteur est très rapide, le temps de parcours des électrons dans l'analyseur est de l'ordre de la microseconde. Il a été nécessaire de réaliser une calibration précise de ce temps de parcours des photoélectrons. Les courbes représentées figures 3.14(a) et (b) donnent le temps de vol des électrons de l'échantillon jusqu'au détecteur. Ces mesures ont été réalisées sur un échantillon de silicium recouvert d'une couche d'oxyde. L'horloge du synchrotron envoie un signal de trigger au détecteur signifiant l'arrivée d'une impulsion lumineuse. Le détecteur déclenche son horloge et calcul

le temps qu'il s'écoule entre le signal de départ et l'arrivée des photoélectrons.

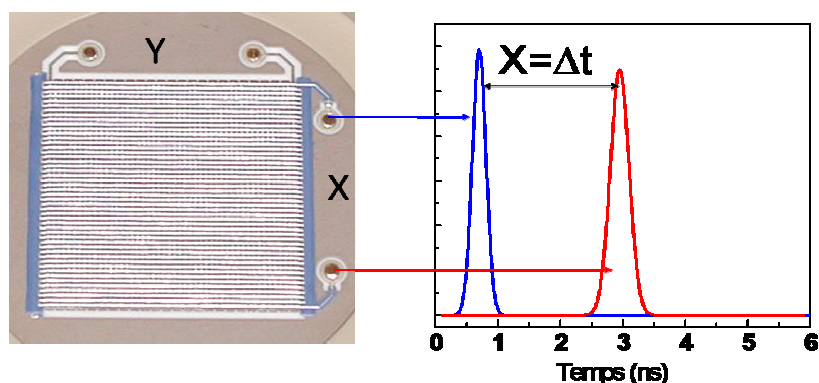


Fig. 3.13 : Détermination de la position d'un électron sur le détecteur.

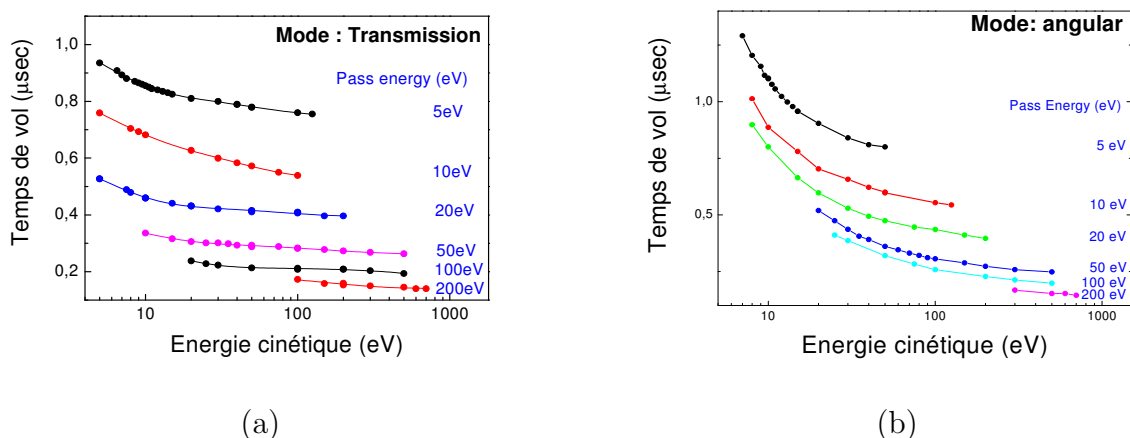


Fig. 3.14 : Mesure du temps de vol des électrons en mode transmission (a) et angulaire (b) dans l'analyseur en fonction de l'énergie cinétique et de l'énergie de passage

La mesure du temps de vol des électrons a été réalisée en fonction de l'énergie cinétique et de l'énergie de passage. Un point crucial à vérifier est la dispersion des électrons dans l'analyseur. Les impulsions de photon utilisées pour la calibration du temps de vol ont une durée de l'ordre de 50 ps et un taux de répétition de 148 ns. Les électrons issus d'une impulsion de photons vont voyager ensemble avec une certaine distribution de vitesse. L'analyseur va sélectionner les électrons en fonction de leurs énergies et de leur angle d'émission. La distribution énergétique des photoélectrons font qu'ils ne vont pas tous voyager à la même vitesse dans l'analyseur, ce qui crée une dispersion. Pour chaque pulse de photon, des images du détecteur de photoélectrons ont été obtenues avec une

résolution de 5 ns (voir figure 3.15). La figure 3.16 présente la distribution des électrons en fonction du temps d'arrivée, avec une résolution de 5 ns. Le premier histogramme correspond à une énergie cinétique de 500 eV et une énergie de passage de 200 eV et montre une distribution peu dispersée. Le deuxième histogramme montre que même pour une énergie de passage de 2eV et une énergie cinétique de 20eV, c'est à dire des photoélectrons très lents, l'étalement est inférieur à 148 ns. Cela signifie que les photoélectrons de deux impulsions de photons successives ne se chevauchent pas.

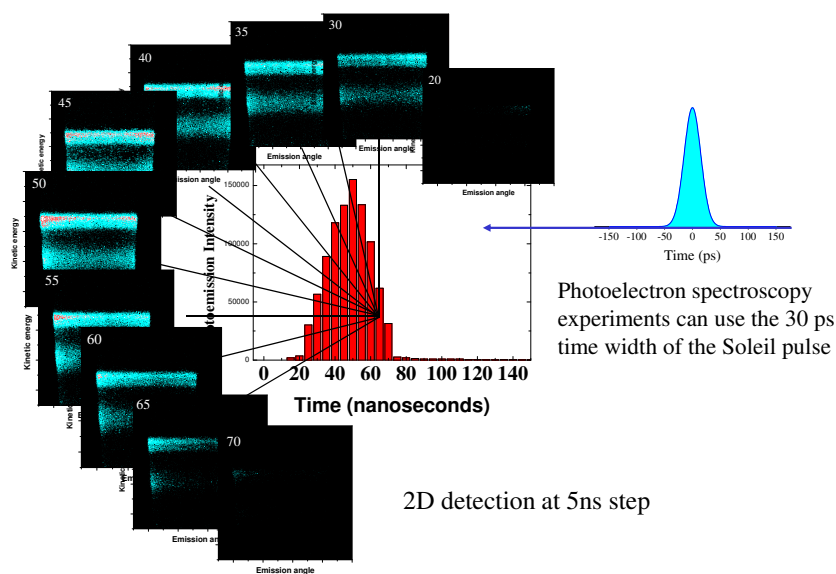


Fig. 3.15 : Distribution du temps de parcours des photoélectrons provenant d'une même impulsion de photon après passage dans l'analyseur sur une période de 148 ns.

3.4.4.3 Le mode slicing

La résolution temporelle du détecteur a été déterminée (5 ns) et est adaptée à la cadence de la machine à Soleil car elle permet de distinguer les électrons provenant de deux impulsions successives. Le principe des expériences pompe-sonde envisagées consiste à exciter le système avec une impulsion très courte et de venir sonder l'état excité avec une impulsion de rayon X également très courte. A partir du moment où la résolution du détecteur est meilleure que l'intervalle entre deux impulsions lumineuses, la résolution temporelle d'une expérience pompe-sonde est déterminée par la résolution temporelle de la pompe (ex : laser) et de la sonde (ex : rayonnement synchrotron). Il suffit d'établir un délai variable entre l'excitation par la pompe et la mesure par la sonde pour réaliser

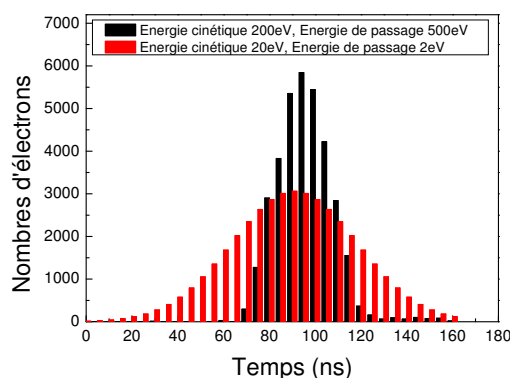


Fig. 3.16 : Distribution des électrons d'un paquet isolé pour deux valeurs d'énergie cinétique et deux valeurs d'énergie de passage.

des études de dynamiques en fonction du temps. Les impulsions de photons en mode huit paquets ont une largeur temporelle à mi hauteur d'environ 50 ps. Pour augmenter encore la résolution temporelle des expériences pompe-sonde, le mode Slicing a été approuvé et est en cours de mise en place à Soleil. Le mode Slicing consiste à venir pomper les électrons oscillant dans un onduleur avec une impulsion laser femtoseconde. Le champ électrique du laser va perturber l'orbite et la distribution temporelle du paquet d'électrons pompé. Par conséquent, deux catégories de paquets d'électrons circulent dans l'onduleur après interaction : ceux qui n'ont pas été pompés qui restent des impulsions de photons de 50 ps sur l'orbite habituelle et ceux qui ont été pompés qui vont changer d'orbite et forment des impulsions de l'ordre de la centaine de femtosecondes. Pour fonctionner

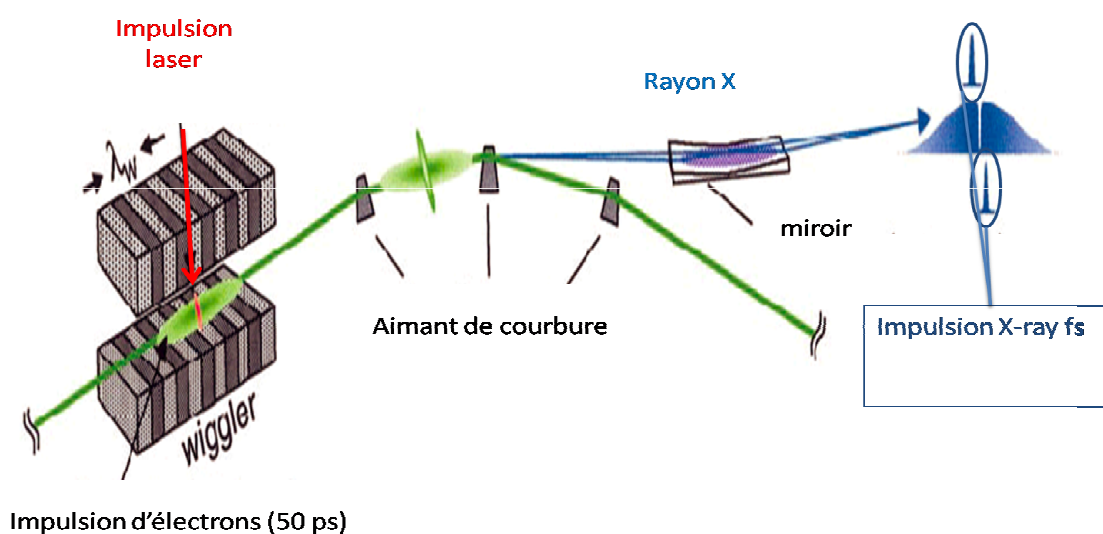


Fig. 3.17 : Génération d'impulsions femtoseconde dans le mode Slicing. D'après [15].

en mode Slicing, seuls les électrons en dehors de l'orbite standard sont utilisables. Les optiques de la ligne doivent par conséquent être adaptées; une fente supplémentaire est introduite pour intercepter les photons provenant des électrons non pompés. La figure 3.18 représente le flux de photons ainsi que l'orbite du faisceau non pompé et du faisceau pompé, calculée par O. Chubar. Le décalage spatial entre les deux faisceaux est suffisant pour les séparer mais il faut réadapter les optiques pour focaliser le faisceau sélectionné sur l'échantillon. Un laser doit être installé pour pomper les électrons dans l'onduleur et créer des impulsions X courtes. Le point critique dans l'installation consiste à synchroniser le laser de la machine et celui de la pompe du poste expérimental.

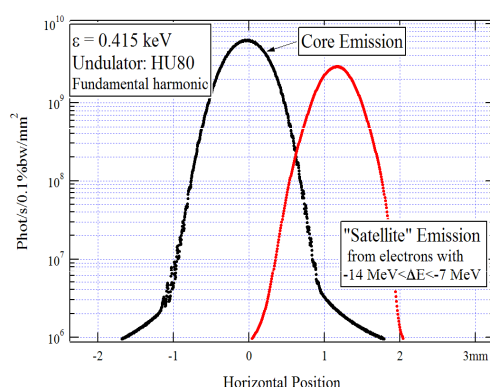


Fig. 3.18 : Position horizontale par rapport au centre de l'orbite des impulsions femtosecondes et du faisceau en mode standard.

3.5 Conclusion

L'installation d'un laser pulsé sur la ligne TEMPO permettra à court terme de réaliser des mesures pompes sondes (TR-XPS et TR-XMCD) avec une résolution limitée par la durée des impulsions synchrotrons. Ce montage sera adapté à l'étude de la dynamique d'aimantation ainsi que la dynamique des propriétés électroniques des alliages CoGd. Dans l'attente du laser, un des objectifs de cette thèse était de produire des échantillons avec une température de compensation proche de la température ambiante. Les chapitres 4, 5 et 6 seront consacrés respectivement à l'étude des propriétés structurales des alliages, aux propriétés magnétiques à température ambiante et à l'étude d'un échantillon présentant un gradient de composition.

Chapitre 4

**Croissance, structure, composition des alliages
amorphes CoGd**

4.1 Introduction

Dans ce chapitre, je présente les mesures qui ont permis de déterminer la composition, l'homogénéité, la structure ainsi que la stabilité thermique des échantillons. La composition réelle a été mesurée en RBS pour six échantillons. Ces mesures ont été réalisées à Paris en collaboration avec Marie D'Angelo et Emrick Briand. L'homogénéité des échantillons a été mesurée en XPS sur la ligne TEMPO. La structure a été caractérisée pour trois échantillons par EXAFS sur la ligne de lumière SAMBA à Soleil lors d'un projet soumis au comité de programme de Soleil. Enfin, la stabilité thermique des échantillons a été mesurée par XPS et XAS également sur la ligne TEMPO. L'objectif de ce chapitre est de montrer que les échantillons sont homogènes, amorphes et qu'ils ont une stabilité thermique suffisante pour les soumettre à des procédés de lithographie, dans le but de produire des nanostructures.

4.2 Application de la spectroscopie RBS pour déterminer la composition et l'épaisseur absolues des films.

4.2.1 Le poste expérimental

Le principe de la rétrodiffusion Rutherford est décrit 2.6.1. Cette technique permet d'obtenir une mesure précise de la composition de l'échantillon mais ne permet pas d'obtenir d'information sur la structure ou l'ordre à l'échelle atomique. Les spectres RBS ont été réalisés à l'Institut des Nanosciences de Paris (INSP) dans le groupe Couches nanométriques : Formation, Interface et Défaut (CONFID) avec l'aide de Marie D'Angelo. La source d'ions est fournie par l'accélérateur SAFIR, un accélérateur électrostatique Van de Graaff de Type AN-200. Les ions sont monocinétiques, leur énergie est variable de quelques eV à 2 MeV. Un schéma succinct de l'expérience est présenté figure 4.1. Le faisceau irradie l'échantillon en incidence normale. Une série d'échantillons, dont la composition varie de 83 à 75% de cobalt, a été produite spécialement pour les mesures RBS. Leur composition a été estimée en utilisant la formule 3.2. Tous ces échantillons ainsi qu'un échantillon de Bismuth de référence ont été montés sur le même support. La première étape consiste à mesurer le spectre de l'échantillon de bismuth (figure 4.2). Le nombre d'atome de la cible de bismuth est connu, il est donc possible de remonter à la section efficace de rétrodiffusion du bismuth (équation 2.18). A partir de cette mesure et sans changer les conditions expérimentales (angle du détecteur, nombre d'ions incidents...), il est possible de déterminer la section efficace de rétrodiffusion du cobalt et du gadolinium

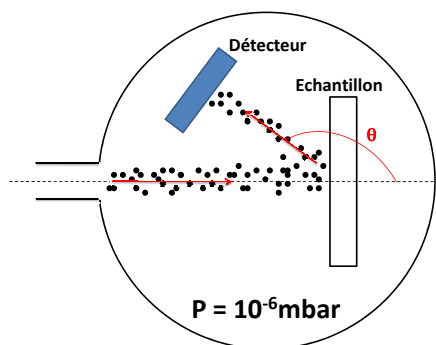


Fig. 4.1 : Schéma du montage RBS à l'INSP.

(équation 2.20).

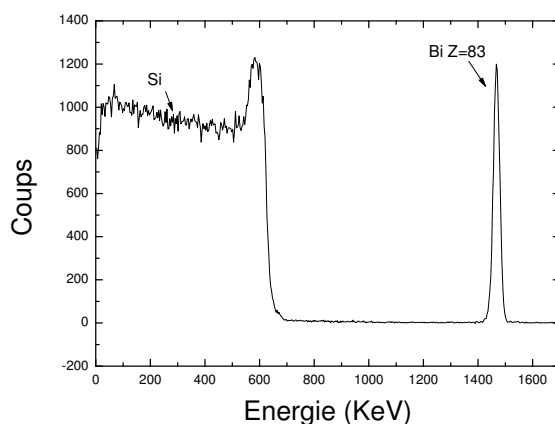


Fig. 4.2 : Spectre RBS pour une cible teste de Bismuth.

4.2.2 Résultats et comparaison avec la balance à quartz

La figure 4.3(a) présente le spectre RBS d'un échantillon $\text{Co}_{83}\text{Gd}_{17}$ couvert par 5 nm d'or. Le nombre de particules rétrodiffusées est proportionnel à la charge atomique de l'élément (équation 2.21), ce qui explique les tailles respectives des trois pics. L'énergie des ions rétrodiffusés par l'or et le gadolinium est très proche, ce qui explique la superposition partielle des pics. La figure 4.3(b) présente le spectre RBS d'un échantillon $\text{Co}_{75}\text{Gd}_{25}$, non couvert. En comparant avec l'échantillon de la figure 4.3(a), il est immédiat que la composition en gadolinium est plus importante dans l'échantillon $\text{Co}_{75}\text{Gd}_{25}$. L'allure du pic est une gaussienne due à la perte d'énergie des ions dans la matière, sa largeur à

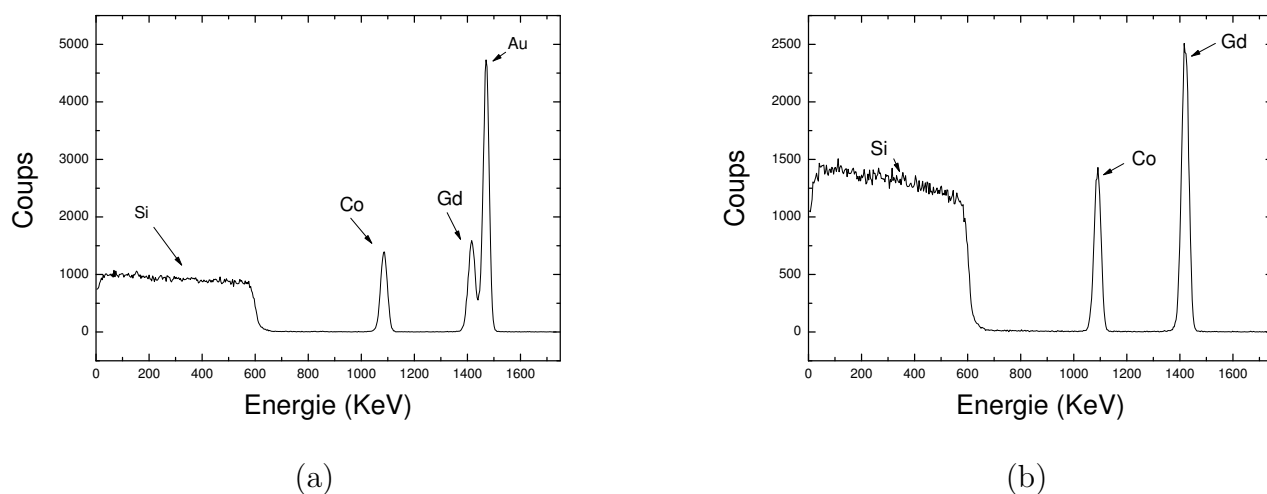


Fig. 4.3 : Spectres RBS pour un échantillon $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$ couvert d'or (a) et non couvert (b).

mi-hauteur est reliée à l'épaisseur du film (équation 2.22) et son aire normalisée par la charge atomique est reliée au nombre d'atome de l'espèce considérée. Les compositions et épaisseurs mesurées par RBS sont récapitulées dans le tableau 4.4 et représentées respectivement par les figures 4.5(a) et (b) en fonction des valeurs données par la balance à quartz.

	x_{Co} (quartz)	Epaisseur(Å)(quartz)	x_{Co} (RBS)	Epaisseur(Å)(RBS)
E1	0.83	180	0.81	116
E2	0.82	200	0.80	158
E3	0.81	200	0.77	158
E4	0.79	160	0.75	146
E5	0.77	200	0.72	182
E6	0.75	200	0.68	194

Fig. 4.4 : Récapitulatif des compositions et épaisseurs mesurées par la balance à quartz et par RBS.

La gamme de composition des échantillons mesurés par RBS couvre les compositions d'intérêts (autour de $x_{\text{Co}}=0.78$). Ces résultats permettent d'établir une correspondance directe entre la composition donnée par la balance à quartz et la composition réelle, avec une précision de l'ordre de 1%. Dans la suite de ce manuscrit, les échantillons CoGd seront indexés avec les valeurs réelles (RBS). La largeur à mi-hauteur des fonctions gaussiennes permet de déterminer l'épaisseur des films, ce qui cause une incertitude. La mesure de

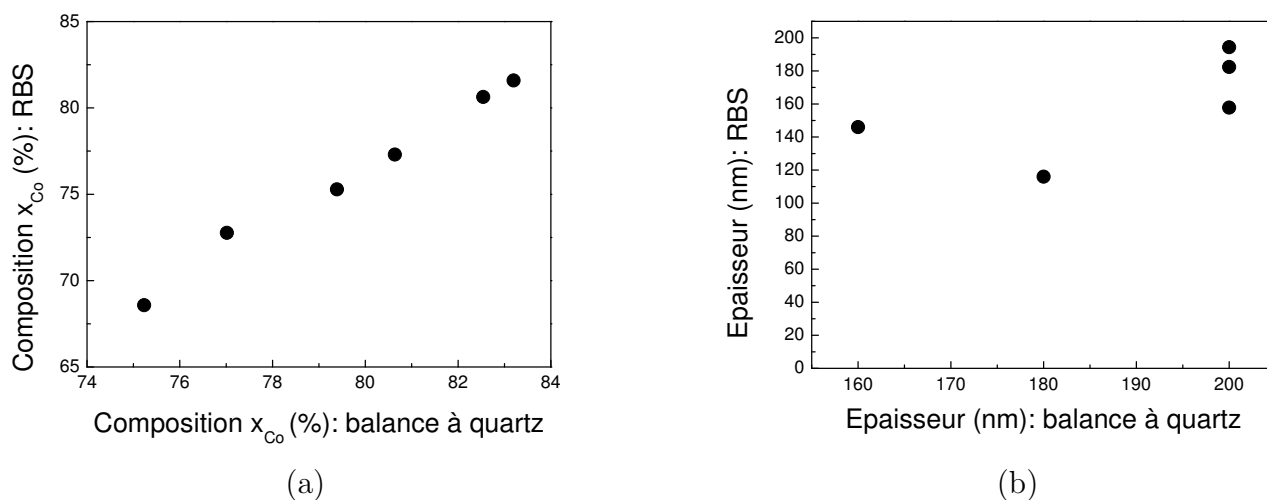


Fig. 4.5 : Composition (a) et épaisseur (b) des échantillons mesurés par RBS en fonction des valeurs données par la balance à quartz.

l'épaisseur avec la balance à quartz correspond simplement au produit entre la vitesse de dépôt et le temps de dépôt. Si la vitesse est de l'ordre de $1 \text{ \AA}/\text{min}$ à $0.1 \text{ \AA}/\text{min}$ près et que le temps de dépôt est de 120 minutes à 1 minute près, l'incertitude sur l'épaisseur est de 20 \AA . Ces deux incertitudes conduisent à une erreur sur l'épaisseur assez importante dans le cas de films de 200 \AA d'épaisseur. Néanmoins, l'épaisseur des films a été choisie de manière à être grande devant la longueur de pénétration des rayons X et de la profondeur d'échappement des électrons. Nos techniques expérimentales (XPS et XMCD) ne sont donc pas sensibles à cet écart d'épaisseur.

Les mesures RBS fournissent une information sur la quantité de gadolinium et de cobalt dans le film. La connaissance de la composition moyenne de l'alliage ne donne aucun renseignement sur l'homogénéité des films, ni en épaisseur, ni latéralement. Dans la section 2.5, il a été démontré que la photoémission permet de déterminer la composition d'un film et par conséquent, cette technique a été utilisée dans les échantillons Co-Gd pour déterminer la composition des surfaces. C'est l'objet de la seconde partie de ce chapitre.

4.3 Homogénéité des échantillons.

La photoémission est une technique de surface mais l'épaisseur de la couche sondée peut être ajustée en jouant sur l'énergie des photons. Pour déterminer la composition des alliages, les évaporateurs ont été montés sur la chambre de préparation de la ligne TEMPO (section 3.4). Les dépôts in situ ont l'avantage de fournir des échantillons propres

sans avoir à recourir à une couche de couverture. Les évaporateurs ont été recalibrés grâce à la balance à quartz dans la chambre de préparation.

4.3.1 Mise en évidence de la ségrégation du gadolinium

L'échantillon étudié dans cette partie est un alliage $\text{Co}_{90}\text{Gd}_{10}$ déposé in situ dans un vide de 4.10^{-10} mbar. La composition de cet échantillon est obtenue en utilisant l'équation 3.2 car la gamme de composition corrigée par RBS ne recouvre par cette composition. L'énergie de photon choisie pour les mesures XPS est de 250 eV, ce qui offre un flux très important (section 3.4) ainsi qu'une section efficace de photoionisation très grande pour les électrons 4f du gadolinium et 3d du cobalt (section 2.5). De plus, à 250 eV d'énergie de photon, les électrons de la bande de valence (les 4f et les 3d principalement) ont un libre parcours moyen inélastique de 6\AA (voir figure 2.21) ce qui limite l'épaisseur d'échappement des électrons primaires à 18\AA . Le spectre XPS de la bande de valence de l'échantillon pour une énergie de photon de 250 eV est représenté figure 4.6(a). Avant cette mesure, l'échantillon n'a subi aucun traitement. En se reportant à la section 2.5.5, on peut déterminer la composition du film en utilisant l'aire du pic 4f du gadolinium et l'aire du pic 3d du cobalt. Ce calcul néglige la participation des électrons 5d au signal XPS au niveau de Fermi, ce qui se justifie par la faible densité d'états occupés par les électrons 5d du gadolinium mais aussi par le rapport 100 entre la section efficace de photoionisation des électrons 3d du cobalt et 5d du gadolinium (voir figure 2.20). On trouve une composition de 35% de gadolinium, bien supérieure à la valeur espérée. Pour tester l'homogénéité des mesures, un bombardement à l'argon a été réalisé afin de retirer la couche mesurée, et les mesures de photoémission ont été réitérées. Le spectre de la bande de valence après bombardement est représenté figure 4.6(b). Ce spectre est multiplié par un coefficient permettant de normaliser la hauteur du pic 3d à celle d'avant bombardement. La comparaison des deux spectres indique que la composition a changé et le calcul de la composition donne une composition de 15% de gadolinium proche de la composition espérée. L'écart de composition avant et après bombardement est lié à la ségrégation du gadolinium à la surface, phénomène déjà observé dans des système CoGd [91]. La ségrégation du gadolinium en surface est liée à la nature surfactante de ce composé. Ce processus permet de diminuer la tension d'interface entre le film et le vide. Dans cette étude, les auteurs trouvent un rapport 2.6 entre la composition avant et après un bombardement à l'argon et retrouvent la composition espérée après bombardement. Il est possible de calculer l'épaisseur de gadolinium ségrégué à partir des figures 4.6 (a) et (b). Le rapport est de 2.3 entre l'aire du pic 4f du gadolinium avant et après bombardement. Le libre parcours moyen est de 6\AA pour les électrons, soit une épaisseur de gadolinium ségrégué en surface de 5\AA . La même étude a été réalisée sur un échantillon $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$ déposé in-

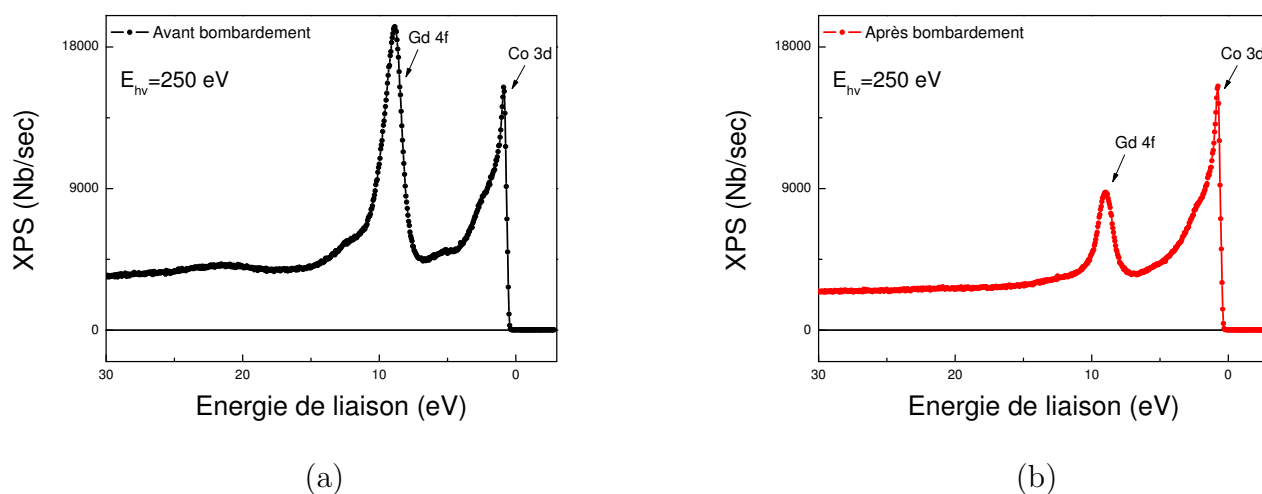


Fig. 4.6 : Spectre XPS de la bande de valence d'un échantillon $\text{Co}_9\text{Gd}_{10}$ déposé in situ avant (a) et après (b) bombardement à l'argon

situ, dans les conditions indiquées précédemment. Les spectres XPS de la bande de valence avant et après bombardement à l'argon à 700 eV d'énergie de photon sont donnés figure 4.7 (a) et (b). La mesure de composition donne 33% de gadolinium avant bombardement et 19% après. Le rapport des intensités n'est que de 1.74 ce qui, pour un libre parcours moyen des électrons de 9Å à 700 eV (voir 2.21), équivaut encore à une couche de gadolinium ségréguée de 5Å .

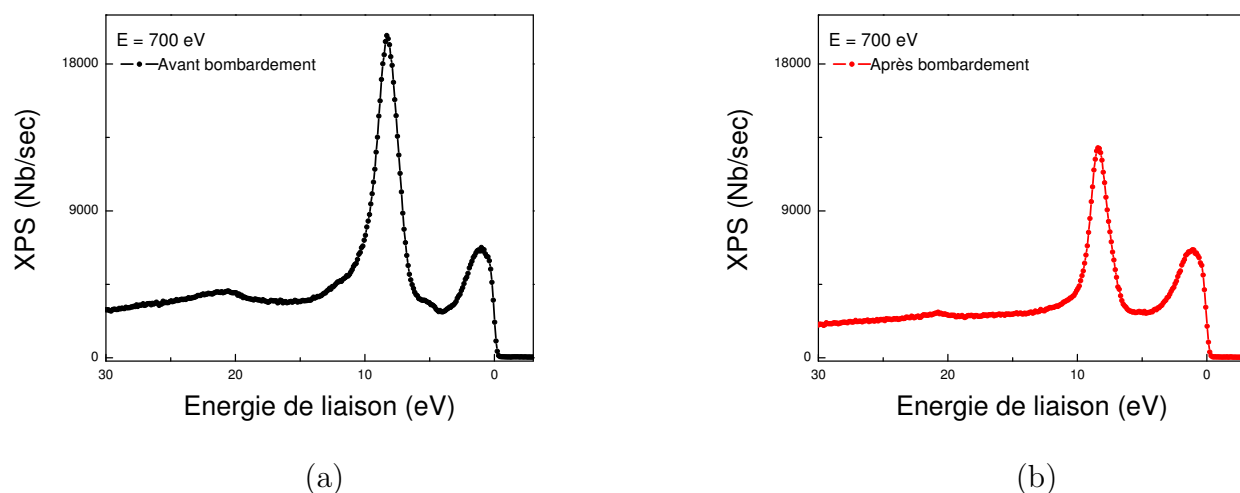


Fig. 4.7 : Spectre XPS de la bande de valence d'un échantillon $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$ déposé in situ avant (a) et après (b) bombardement à l'argon

4.3.2 Ségrégation du gadolinium à température ambiante

La ségrégation du gadolinium pendant le dépôt peut s'expliquer par la proximité des évaporateurs qui chauffent le porte échantillon, et la lenteur du dépôt (section 3.2), favorisant la mobilité des atomes. Néanmoins après bombardement ionique on retrouve la composition nominale de l'échantillon (voir partie 4.3.1). Il a été observé que la ségrégation du gadolinium est présente même à température ambiante [91]. Pour le vérifier, nous avons réalisé des mesures de photoémission sur l'échantillon $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$ déposé in situ en fonction du temps, en partant d'une surface sans gadolinium ségrégué. Les spectres XPS de la bande de valence en fonction du temps sont représentés figure 4.8. Les spectres montrent un enrichissement de la surface en gadolinium, visible par l'augmentation de l'aire des pics 4f, alors que la contribution des électrons 3d diminue. Le rapport d'intensité entre le gadolinium et le cobalt permet de mesurer la composition en fonction du temps et donc le taux ségrégation du gadolinium. La figure 4.9 représente l'épaisseur de la couche de gadolinium ségréguée en surface en fonction du temps, comparée à l'épaisseur mesurée après dépôt (en bleue sur la courbe). La ségrégation a toujours lieu, même à température ambiante, mais que la mobilité des atomes de gadolinium est très inférieure à celle pendant le dépôt. Le taux de ségrégation mesuré figure 4.9 est de 0.15\AA par heure. C'est suffisamment lent pour permettre de mesurer les propriétés de surface (dichroïsme) des alliages après bombardement. La ségrégation a été confirmée par la mesure simultanée des pics 4d du gadolinium et 3p du cobalt, qui montrent le même comportement.

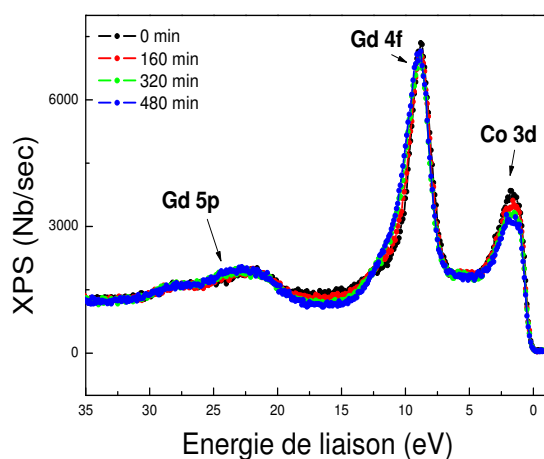


Fig. 4.8 : Spectres XPS à 700 eV d'énergie de photon des états de la bande de valence en fonction du temps pour l'échantillon $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$.

Après avoir vérifié la composition moyenne et l'homogénéité dans la direction perpendiculaire à la surface, il est légitime de se poser des questions quand à la structure des

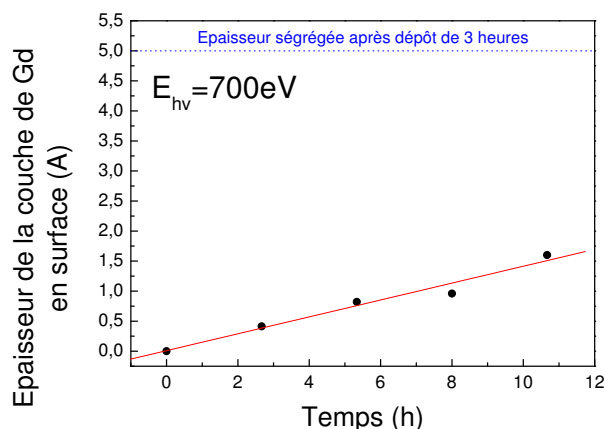


Fig. 4.9 : Epaisseur de la couche de gadolinium ségréguée en fonction du temps, à température ambiante.

échantillons. Les études en RBS et en XPS ont montré qu'à part la couche de gadolinium ségréguée, les échantillons possèdent la bonne composition. Il reste à déterminer la structure cristalline des échantillons ainsi que l'environnement chimique de chaque espèce.

4.4 Détermination de la structure des échantillons $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$ par EXAFS.

La caractérisation des propriétés structurales des alliages $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$ a été obtenue par EXAFS (voir section 2.6.2). Le choix de cette technique s'est imposé naturellement car l'EXAFS donne des informations sur la distribution locale autour d'une espèce atomique. Cette technique est donc bien adaptée à l'étude des échantillons ne présentant pas de structure cristallographique ordonnée détectable par diffraction de rayons X. De plus, l'EXAFS est une technique basée sur l'absorption des rayons X et donc capable de différencier les éléments composants l'alliage. Les résultats présentés dans cette partie ont été obtenus lors d'une semaine de faisceau à Soleil sur la ligne SAMBA. Le but du projet était de démontrer l'absence d'ordre à grande échelle, et de déterminer la coordination des atomes dans l'alliage. Le point crucial était de vérifier si les échantillons formaient des alliages ou des structures plus inhomogènes (cluster de gadolinium dans une mer de cobalt par exemple).

4.4.1 La ligne SAMBA

SAMBA, pour Spectroscopies Applied Materials Based Absorption, est une ligne de rayons X dur dédiée à l'EXAFS, dont la gamme d'énergie des photons disponible, fournis par un aimant de courbure, s'étend de 4 à 40 keV. Cet intervalle d'énergie couvre les seuils K des métaux de transition et les seuils $L_{2,3}$ des terres rares. Le projet a été réalisé sur le poste expérimental Surfas, deuxième chambre expérimentale de la ligne. La particularité de ce montage est la chambre ultravide qui permet d'étudier des films minces et la morphologie des surfaces. La détection du signal peut se faire soit par détection de rendement total d'électrons ou par fluorescence. Comme pour les mesures d'absorption sur les lignes x-mous, la profondeur d'échappement des électrons (même secondaires) à quelques keV reste faible et ce mode de détection est sensible à la surface. L'objectif étant d'obtenir une information moyenne sur l'épaisseur de l'échantillon, la détection par fluorescence est donc le mode de détection le plus adapté à ce projet. De plus pour une énergie de photon supérieure à 2 KeV, le processus de désexcitation par émission de photons est plus probable (voir 2.3). La détection de la fluorescence se fait via des détecteurs semi-conducteurs de germanium.

4.4.2 Protocole expérimental

4.4.2.1 Les échantillons

Pendant la période de faisceau, nous avons mesuré le signal EXAFS au seuil K du cobalt et L du gadolinium de trois échantillons. Leurs caractéristiques sont rappelées dans le tableau 4.10. Tous ces échantillons étaient recouverts d'une couche de 5 nm d'aluminium. La couche de gadolinium sert de référence pour les mesures, les références du cobalt sont prises sur une feuille de cobalt hcp mesurée précédemment sur SAMBA. Le temps de faisceau a été mis à profit pour étudier l'influence sur la structure du dépôt à basse température.

Nom de l'échantillon	x_{Co}	x_{Gd}	Epaisseur (nm)	Température du dépôt (K)
RT-Co ₇₉ Gd ₂₁	0.79	0.21	10	300
LT-Co ₇₉ Gd ₂₁	0.79	0.21	10	100
Gd	0	1	10	300

Fig. 4.10 : Liste des échantillons mesurés pendant le projet EXAFS réalisé sur SAMBA.

4.4.2.2 Précisions expérimentales

La figure 4.11 représente le spectre d'absorption au seuil K du cobalt (à 7709 eV) ainsi qu'aux seuils L_2 (à 7940 eV) et L_3 (à 7243 eV) du gadolinium de l'échantillon RT- $\text{Co}_{79}\text{Gd}_{21}$. L'écart en énergie des pics K du cobalt et L_2 du gadolinium est trop faible pour obtenir les oscillations EXAFS du cobalt. Par conséquent, les études du spectre d'absorption du cobalt se limiteront à la région XANES (voir section 2.6.2) car la gamme d'énergie n'est pas suffisamment étendue pour exploiter le spectre EXAFS. Le seuil d'absorption L_3 du gadolinium est lui exploitable car la gamme d'énergie avant le seuil K est suffisamment étendue. Les échantillons mesurés sont des films minces de l'ordre de 10 nm d'épaisseur,

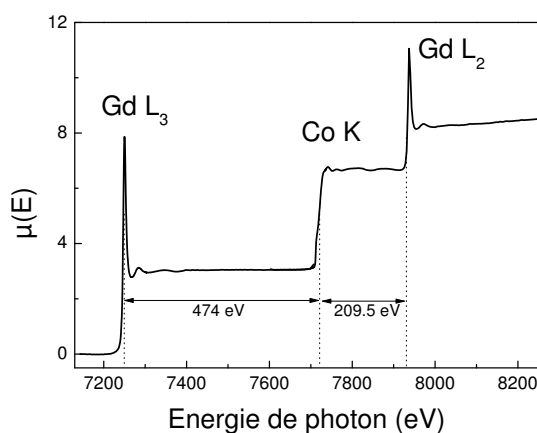


Fig. 4.11 : Spectre EXAFS d'un échantillon $\text{Co}_{79}\text{Gd}_{21}$ aux seuils L_3 et L_2 du gadolinium et K du cobalt.

petit devant la longueur de pénétration des rayons X autour de 7 keV. Les mesures en fluorescence nous donnent une information structurale sur la totalité de l'échantillon.

4.4.3 Résultats

4.4.3.1 XANES au seuil K du cobalt

Le seuil K du cobalt est tronqué par le seuil L_2 du gadolinium, mais des informations qualitatives peuvent tout de même être extraites. La figure 4.12 représente les spectres XANES au seuil K du cobalt pour les échantillons RT- $\text{Co}_{79}\text{Gd}_{21}$, LT- $\text{Co}_{79}\text{Gd}_{21}$ et le film de cobalt hcp. Les figures 4.13 (a) et (b) sont des agrandissements de deux zones d'intérêt du spectre XANES : le saut correspondant au seuil d'absorption et la région juste après le seuil, qui est le signal XANES. Le saut est caractéristique du seuil K d'un cobalt métallique. Le petit décrochement encadré est présent uniquement pour un cobalt pur, et disparaît dans le cas d'un cobalt oxydé (CoO ou Co_3O_4) [102]. Le cobalt dans les alliages

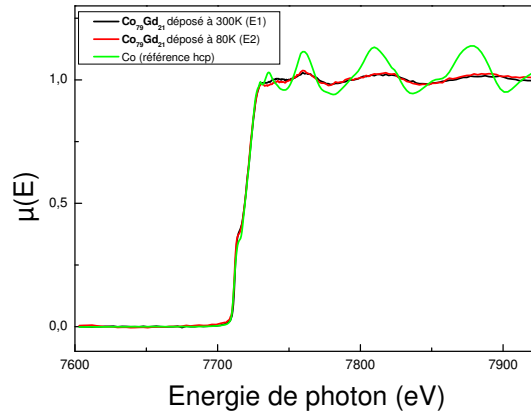


Fig. 4.12 : Spectres EXAFS des échantillons $RT - Co_{79}Gd_{21}$ (noire) et $LT - Co_{79}Gd_{21}$ (rouge) comparés avec un spectre de référence de cobalt hcp (verte).

a la même signature que le cobalt pur. La petite bosse sur le spectre du cobalt hcp de référence encadré sur la figure 4.13(b) est dû à une petite composante d'oxyde de cobalt. Cette contribution n'est pas présente dans les spectres des alliages CoGd, ce qui signifie que l'oxyde de cobalt qui pourrait se former lors du dépôt est réduit par le gadolinium [91]. L'étude du saut montre que le cobalt dans l'alliage est propre, métallique et semblable au cobalt pur. Le régime d'oscillation des alliages est amorti beaucoup plus rapidement et son amplitude est plus faible que dans le cas de la référence cobalt hcp. L'amortissement plus rapide des oscillations est une conséquence d'un ordre moins important dans les alliages CoGd.

Les figures 4.14 (a) et (b) représentent le signal $\chi(k)$ au seuil K du cobalt des trois échantillons et sa transformée de Fourier. Le signal est multiplié par k , l'impulsion du photoélectron, pour augmenter la hauteur des oscillations loin du seuil. Ces figures montrent que les deux alliages sont identiques, donc que la croissance à basse température a peu d'influence sur la structure. Les transformées de Fourier des signaux XANES représentées figure 4.14(b) sont identiques aux spectres obtenus par Magnan et collaborateurs [103]. Dans ce papier, ils ont comparé les signaux EXAFS pour des échantillons de cobalt pur cristallins et amorphes. La distribution radiale autour des atomes de cobalt pour nos alliages est identique à celle qu'ils ont mesuré pour le cobalt amorphe. On retrouve les mêmes caractéristiques, c'est à dire une distance premier voisin plus courte et une amplitude plus faible ainsi que la quasi absence d'un deuxième pic. Le traitement du signal par le programme ARTEMIS donne comme distance premier voisin entre deux atomes de cobalt 2.43\AA pour les alliages CoGd et 2.48\AA pour le cobalt hcp, à comparer avec les valeurs obtenus par Magnan et collaborateurs, respectivement 2.48\AA et 2.49\AA . Le cobalt

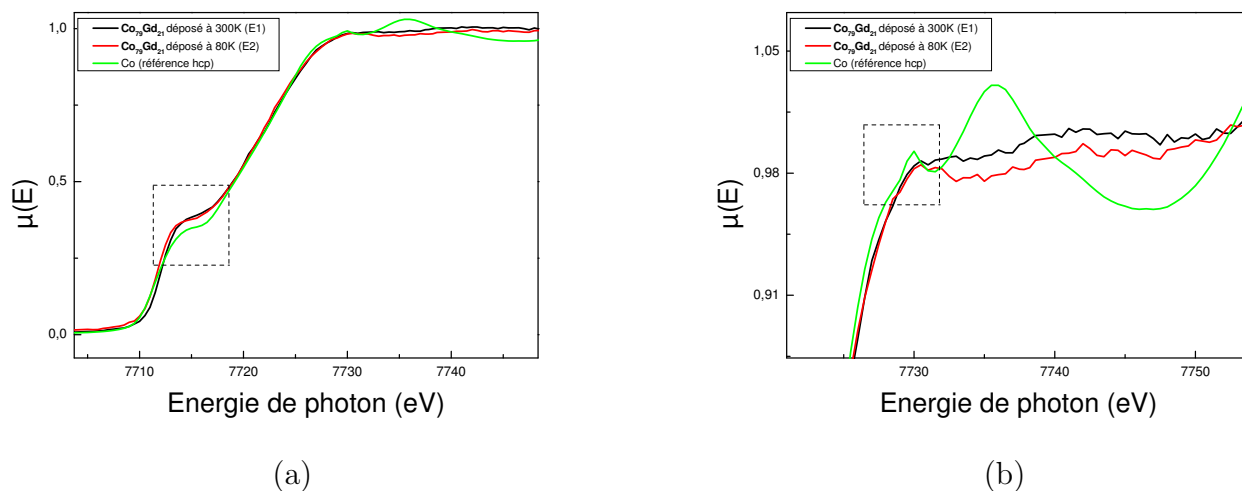


Fig. 4.13 : Agrandissement des zones d'intérêts du spectre XANES au seuil K du cobalt : le saut (a) et les oscillations après le saut (b) pur les échantillons $\text{Co}_{79}\text{Gd}_{21}\text{RT}$, $\text{Co}_{79}\text{Gd}_{21}\text{LT}$ et la référence de cobalt hcp.

est principalement entouré par d'autres atomes de cobalt comme en témoigne la grande similarité des spectres, ce qui signifie que les alliages sont riches en cobalt. Il est possible de conclure en se référant aux données existantes que les échantillons sont amorphes. La coordination ne peut pas être extraite dans une gamme d'énergie aussi étroite, mais cette information peut être obtenue grâce au signal EXAFS au seuil L_3 du gadolinium.

4.4.3.2 EXAFS au seuil L_3 du gadolinium

Les informations obtenues par l'étude du seuil K du cobalt sont qualitatives, mais ont montré l'absence d'ordre à grande échelle et que le dépôt à basse température n'est pas nécessaire. Les mesures sur le seuil L_3 du gadolinium vont permettre de déterminer l'environnement chimique des atomes de gadolinium (coordination et distance interatomique) de manière quantitative. La référence pour le seuil L_3 a été réalisée sur un film mince de gadolinium, déposé dans les mêmes conditions que l'échantillon $\text{RT-Co}_{79}\text{Gd}_{21}$ (voir tableau 4.10).

La figure 4.15 présente les spectres EXAFS des seuils L_3 du gadolinium pour les échantillons $\text{RT-Co}_{79}\text{Gd}_{21}$, $\text{LT-Co}_{79}\text{Gd}_{21}$ et Gd. Le cadre représente un agrandissement des spectres. Contrairement au cobalt, l'amplitude des oscillations est à peu près la même pour le film de gadolinium que pour les alliages, mais par contre on a des périodes d'oscillation différentes, signe que l'environnement chimique du gadolinium est différent dans les deux types d'échantillons. Il y aussi une petite différence entre les spectres de l'échantillon

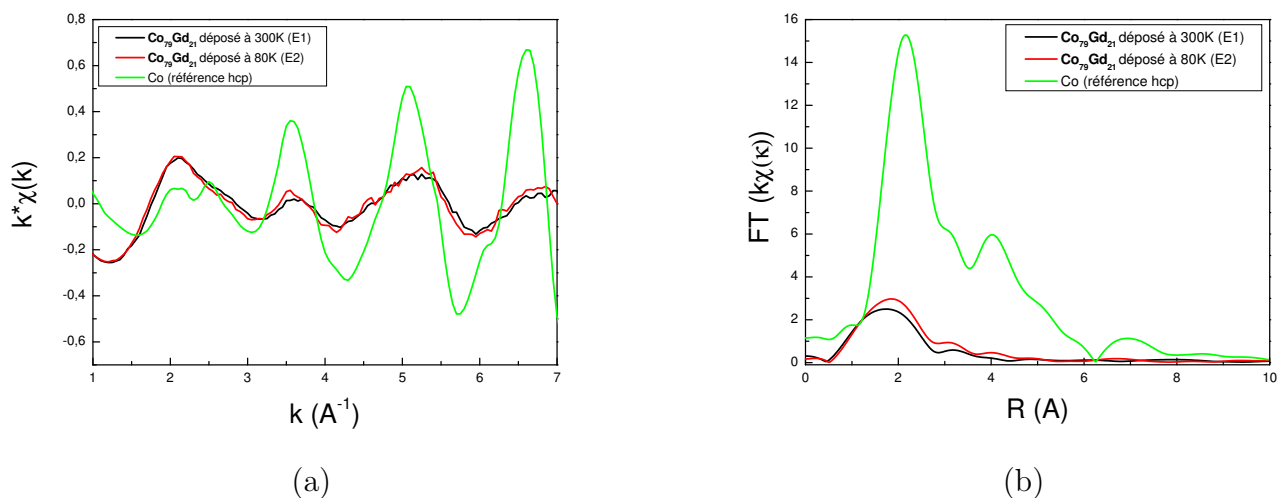


Fig. 4.14 : Seuil d'absorption K du cobalt pour les échantillons RT- $\text{Co}_{79}\text{Gd}_{21}$, LT- $\text{Co}_{79}\text{Gd}_{21}$ et cobalt hcp (a), ainsi que les transformées de Fourier associées (b).

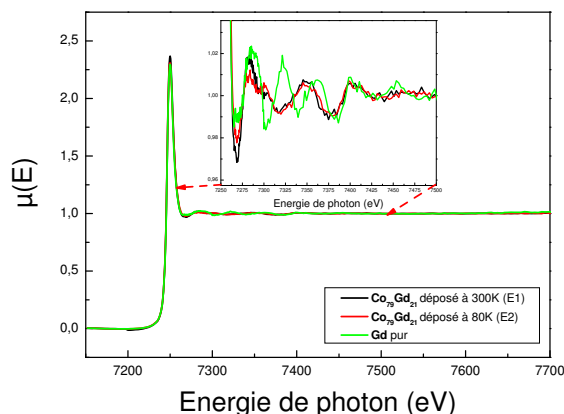


Fig. 4.15 : Spectre EXAFS au seuil L_3 des échantillon RT - $\text{Co}_{79}\text{Gd}_{21}$, LT - $\text{Co}_{79}\text{Gd}_{21}$ et Gd.

RT- $\text{Co}_{79}\text{Gd}_{21}$ et LT- $\text{Co}_{79}\text{Gd}_{21}$.

Détermination de la structure du gadolinium pur Les figures 4.16 (a) et (b) montrent le spectre EXAFS du film de gadolinium ainsi que sa transformée de Fourier. Les courbes rouges sont les courbes simulées en utilisant le programme ARTEMIS. Pour reproduire au mieux les spectres il faut introduire une composante d'oxygène. Le pic à $1,8\text{\AA}$ de la figure 4.16(b) est la signature de la liaison gadolinium oxygène. Malgré le vide de la

chambre durant le dépôt (2.10^{-10} mbar), la contamination par l'oxygène est observée. Le deuxième pic à $3,2\text{\AA}$ sur la figure 4.16(b) correspond aux atomes de gadolinium dans l'environnement de chaque atome de gadolinium. On ne détecte aucune contribution de l'aluminium dans le spectre EXAFS, ce qui signifie que la couche de protection déposée est stable et n'interagit pas avec l'échantillon. La courbe simulée avec ARTEMIS donne une coordination de 7 atomes de gadolinium et un atome d'oxygène autour de chaque atome de gadolinium. Le nombre de plus proches voisins dans un matériau amorphe est de l'ordre de 9 atomes [41]. Les distances mesurées sont de 1.8\AA pour la liaison gadolinium oxygène et de 3.57\AA pour la liaison gadolinium, contre 3.6\AA pour la forme cristalline du gadolinium. En accord avec la littérature, la distance Gd-Gd est plus faible dans un échantillon amorphe que cristallin [103]. Ces résultats indiquent que le film de gadolinium pur déposé est amorphe.

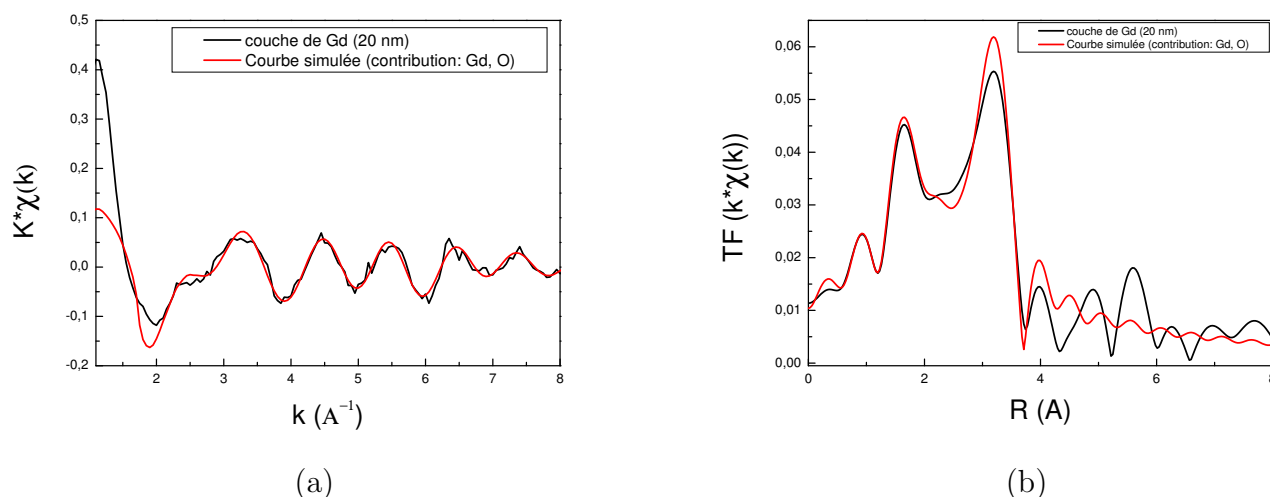


Fig. 4.16 : Représentation du signal EXAFS au seuil L_3 du gadolinium dans l'espace réciproque (a) et dans l'espace réel (b) pour une cible de gadolinium pur.

Détermination de l'environnement chimique du gadolinium dans les alliages CoGd

Les figures 4.17 (a) et (b) représentent les spectres EXAFS au seuil L_3 du gadolinium pour les alliages, avec figures (c) et (d) les transformées de Fourier correspondante. Tous ces spectres sont accompagnés des courbes simulées sous ARTEMIS. Les spectres montrent une différence entre les deux échantillons CoGd. Les courbes simulées reproduisent les résultats avec un accord satisfaisant. Les paramètres extraits des courbes simulées sont fournis par la figure 4.4.3.2 qui donne la distance plus proche voisin entre chaque atome et la figure 4.4.3.2 qui donne la coordination d'un atome de gadolinium. Les distances

mesurées entre atomes de gadolinium dans les alliages sont un peu plus grandes que dans le cas du gadolinium pur. Comme il a été dit précédemment, la distance entre atomes de cobalt est plus petite que dans la structure hcp du cobalt pur, du à la structure amorphe. Les atomes d'oxygènes sont fixés autour des atomes de gadolinium. Les atomes de gadolinium dans l'alliage déposé à température ambiante sont entourés de deux atomes d'oxygènes dans son environnement, alors que dans l'alliage déposé à basse température il n'y a qu'un seul atome d'oxygène autour des atomes de gadolinium. La meilleure qualité du vide pendant le dépôt à basse température peut expliquer la différence observée dans les spectres expérimentaux. Néanmoins, les barres d'erreur sur la coordination sont très grandes, elles ne sont données ici qu'à titre indicatif.

En conclusion nous avons montré que les échantillons sont des alliages homogènes et nous avons mis en évidence la structure amorphe des échantillons. Les résultats ont montré que le dépôt à basse température n'est pas nécessaire pour l'obtention d'alliages amorphes. Enfin, la couche d'aluminium n'a pas d'interaction avec la couche magnétique.

4.5 Stabilité thermique des échantillons Co-Gd

Les alliages CoGd déposés par co-évaporation thermique sur des substrats de silice sont amorphes, possèdent à peu près la composition voulue et semblent homogènes en épaisseur. Le dernier point que nous voulions éclaircir est la stabilité thermique des échantillons. Ce point est crucial dans l'optique de réaliser des nanostructures à partir de procédés de lithographie nécessitant parfois de chauffer l'échantillon. L'effet de température qui nous a plus préoccupé est la stabilité de la couche de couverture sous chauffage. Les alliages sont recouverts d'une couche d'aluminium, qui peut former des alliages avec le cobalt et le gadolinium [104]. Encore une fois, la spectroscopie XPS s'est révélée être la technique la plus efficace pour étudier l'interface entre l'alliage et la couche magnétique.

4.5.1 Observation par XPS

La figure 4.20 (a) représente les spectres de photoémission des états 2p de l'aluminium et 3p du cobalt d'un alliage $\text{Co}_{79}\text{Gd}_{21}$ recouvert d'aluminium en fonction de la température. A l'origine, la couche d'aluminium était de 5 nm, mais un bombardement à l'argon nous a permis de retirer une partie de la couche, ce qui explique que l'on puisse observer le pic du cobalt en photoémission. Pour une énergie de photon de 700 eV, les électrons 3p du cobalt ont une énergie cinétique de 640 eV, soit un libre parcours moyen de 9Å (figure 2.21), correspondant à une profondeur d'échappement de 27Å . La couverture d'aluminium après bombardement est donc nécessairement inférieure à 2 nm. Avant chauffage, les états 2p de l'aluminium sont scindés en deux pics, qui correspondent à l'oxyde

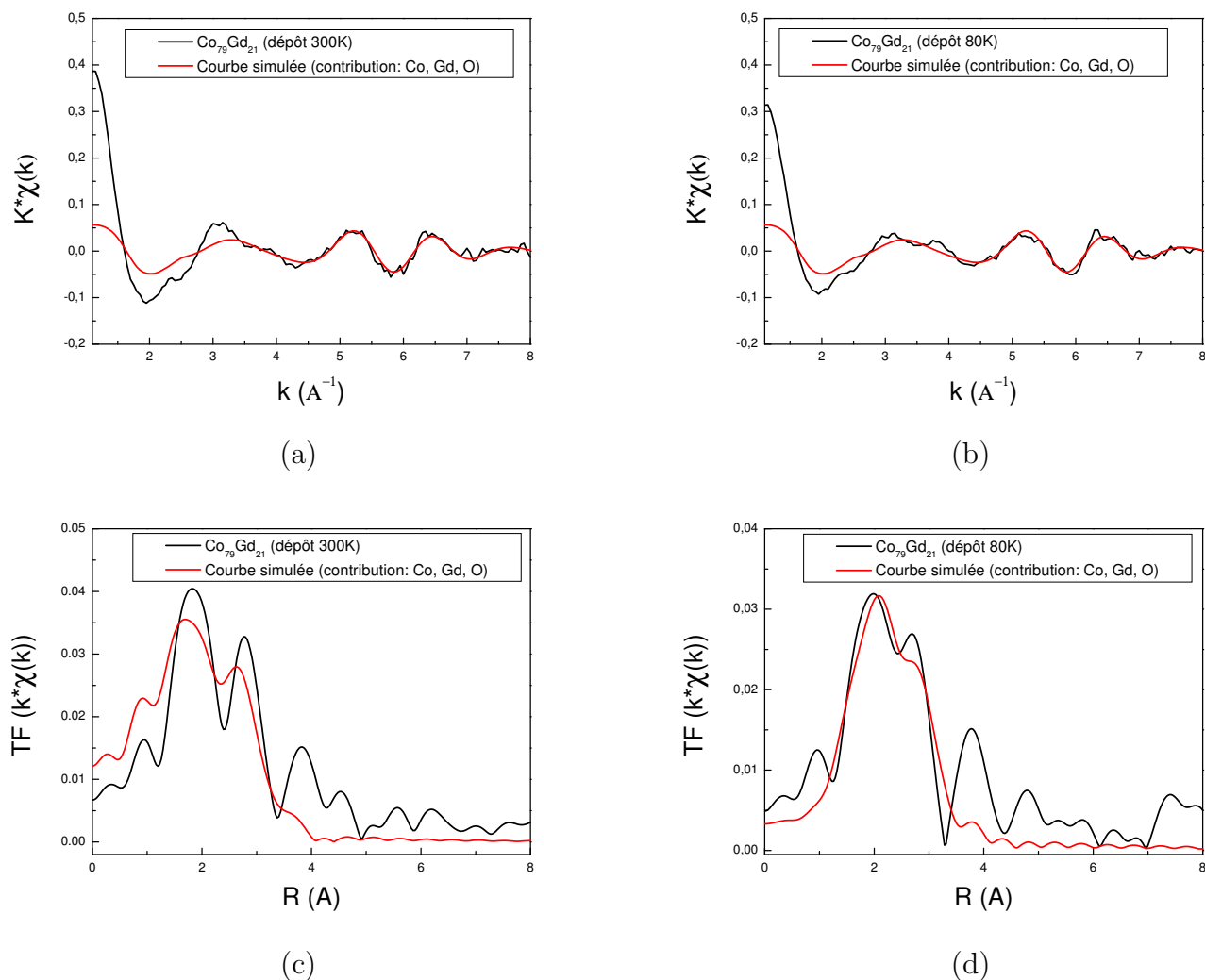


Fig. 4.17 : Représentation du signal EXAFS au seuil L_3 du gadolinium pour les échantillons $Co_{79}Gd_{21}RT$ (a), $Co_{79}Gd_{21}LT$ (b) dans l'espace réciproque et courbes simulées avec Artémis (rouges).

d'aluminium (à plus haute énergie de liaison) et à l'aluminium métallique (énergie de liaison plus basse). Pendant le chauffage, d'une part la composante d'aluminium métallique diminue au profit de la composante oxydée, et d'autre part le pic des 3p du cobalt augmente. Pour interpréter la diminution de la composante métallique, il suffit de savoir que l'aluminium est très réactif avec l'oxygène. En chauffant, le porte échantillon dégaze, ce qui va par conséquent salir l'échantillon. La figure 4.20 (b) représente l'aire du pic 2p de l'aluminium (composante oxydée et métallique) en fonction de la température. Jusqu'à 350°C l'aire est constante ce qui signifie que le seul processus en cours est l'oxydation de l'aluminium. Passé 350°C l'aire du pic diminue, alors que l'aire du pic de cobalt augmente.

Distance (Å)	<i>Co – Co</i>	<i>Co – Gd</i>	<i>Gd – Gd</i>	<i>Gd – O</i>
<i>Co</i> ₇₉ <i>Gd</i> ₂₁ <i>RT</i> :	2,43 ± 0,05	2,9 ± 0,05	3,6 ± 0,05	2,26 ± 0,05
<i>Co</i> ₇₉ <i>Gd</i> ₂₁ <i>LT</i> :	2,43 ± 0,05	2,89 ± 0,05	3,59 ± 0,05	2,25 ± 0,05
Gd pur :	0	0	3,57 ± 0,05	2,23 ± 0,05

Fig. 4.18 : Récapitulatif des distances interatomiques d'un atome de gadolinium avec ses voisins dans les échantillons *Co*₇₉*Gd*₂₁*RT*, *Co*₇₉*Gd*₂₁*LT* et Gd.

Coordination	<i>Co – Gd</i>	<i>Gd – Gd</i>	<i>Gd – O</i>
<i>Co</i> ₇₉ <i>Gd</i> ₂₁ <i>RT</i> :	4 ± 1	2 ± 1	2 ± 1
<i>Co</i> ₇₉ <i>Gd</i> ₂₁ <i>LT</i> :	4 ± 1	2 ± 1	1 ± 1
Gd pur :	0	7 ± 1	1 ± 1

Fig. 4.19 : Récapitulatif de la coordination d'un atome de gadolinium dans les échantillons *Co*₇₉*Gd*₂₁*RT*, *Co*₇₉*Gd*₂₁*LT* et Gd.

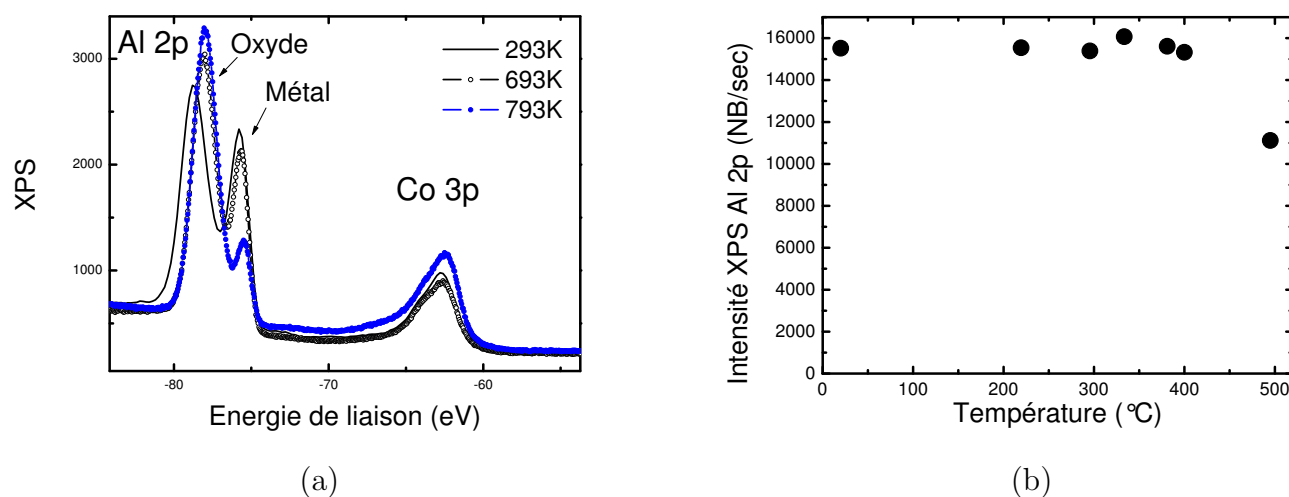


Fig. 4.20 : Spectres XPS pour plusieurs température des états 2p de l'aluminium et 3p du cobalt d'un échantillon *Co*₇₉*Gd*₂₁ recouvert d'aluminium (a). Aire des états 2p de l'aluminium en fonction de la température (b).

La diffusion de l'aluminium dans la matrice de CoGd commence à 400°C.

4.5.2 Observation par XAS

Pour s'assurer de la diffusion de l'aluminium dans l'échantillon CoGd, des mesures d'absorption aux seuils $L_{2,3}$ du cobalt ont été réalisées avant et après chauffage à 500°C. Les spectres sont montrés figures 4.21 (a) et (b). Après chauffage, une sous structure apparaît

dans le spectre d'absorption qui correspond à l'hybridation du cobalt avec l'aluminium [104]. Nous avons écarté l'hypothèse de l'oxydation du cobalt car dans ce cas le signal XAS au seuil L_3 présenterait trois pics bien définis. La diminution du signal XPS de

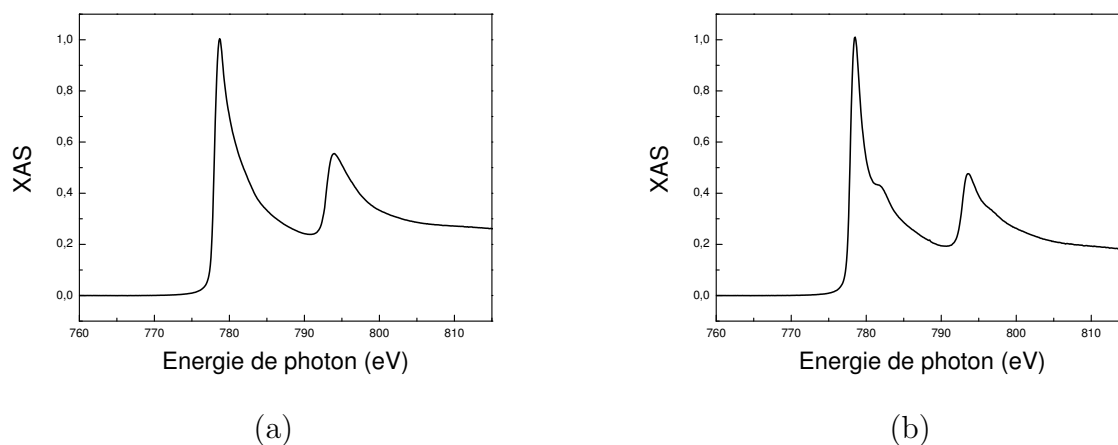


Fig. 4.21 : Spectres XAS avant et après un chauffage à 500C d'un échantillon $Co_{79}Gd_{21}$ recouvert d'aluminium.

l'aluminium et l'augmentation du pic 3p du cobalt observées sur la figure 4.20 est bien une conséquence du mélange à l'interface entre le cobalt et le gadolinium.

4.6 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons effectué une calibration fine des évaporateurs grâce aux mesures RBS. Nous avons montré l'homogénéité des échantillons avec la formation d'une monocouche de gadolinium à la surface durant le dépôt. Les mesures XPS nous ont montré que la ségrégation du gadolinium à la surface a lieu même à température ambiante, avec une vitesse de $0.15\text{\AA}/\text{h}$, ce qui est suffisamment lent pour effectuer des caractérisations XPS et XMCD. La structure amorphe des alliages déposés à température ambiante a été établie en EXAFS. Ces mesures ont aussi montré que le cobalt ne présente aucune trace de contamination et que la croissance à basse température n'a pas d'influence sur la nature amorphe des couches. On a également montré que la couche d'aluminium déposée à température ambiante n'inter diffuse pas dans l'alliage CoGd. La stabilité de la couche d'aluminium en fonction de la température est assurée jusqu'à 350°C , ce qui est suffisant pour des processus de lithographie. Les échantillons que nous produisons ont les propriétés structurales recherchées. Le prochain chapitre a pour objectif de déterminer les propriétés magnétiques de nos alliages CoGd à température ambiante.

Chapitre 5

Optimisation des propriétés magnétiques d'échantillons CoGd

5.1 Introduction

Au chapitre 4, nous avons caractérisé les propriétés structurales, la composition ainsi que l'homogénéité des échantillons. L'objet de ce chapitre est de détailler les propriétés magnétiques à température ambiante des alliages CoGd en couches minces. La première partie concernera les mesures d'anisotropie magnétique par effet Kerr, la deuxième partie traitera de l'intérêt de la couche de protection et dans la troisième partie l'effet de l'oxygène sur les propriétés magnétiques sera discuté. Nous montrerons tout au long de ce chapitre comment l'utilisation de techniques expérimentales complémentaires permet d'approfondir notre connaissance de ces alliages.

5.2 Anisotropie magnétique des alliages $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$ déposés par co-évaporation thermique

La magnétométrie Kerr permet d'obtenir des informations sur les propriétés magnétiques macroscopiques des alliages CoGd telles que le champ coercitif H_c , le champ de saturation H_s , les constantes d'anisotropies K_i ainsi que l'aimantation à rémanence M_{rem} . Ces grandeurs sont essentielles pour les expériences synchrotron telles que le dichroïsme magnétique circulaire en photoémission et en absorption, car le champ magnétique disponible dans la chambre d'analyse de la ligne TEMPO est limité et sa direction est fixe par rapport à l'échantillon. La figure 5.1 décrit la norme choisie pour les angles, avec θ l'angle que fait l'aimantation par rapport à la normale au plan et φ l'angle par rapport à la longueur de l'échantillon.

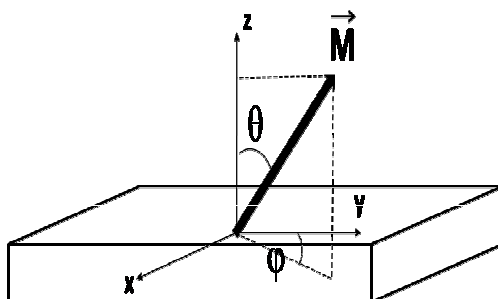


Fig. 5.1 : Définition des angles par rapport à la géométrie des échantillons.

5.2.1 Détermination des axes de facile aimantation

Les différentes configurations de mesure en magnétométrie Kerr permettent de déterminer l'orientation du moment magnétique et les directions privilégiées (voir 2.4). Dans les al-

liages CoGd , pour les longueurs d'onde utilisées (autour de 800 nm), la rotation de la polarisation est principalement due au moment magnétique du cobalt [105]. Dans ces conditions, la mesure de cycles d'hystérésis en configuration polaire et planaire permet de déterminer l'orientation du sous réseau de cobalt. L'angle entre le sous réseau de cobalt et de gadolinium est de 180° donc les mesures Kerr suffisent pour déterminer l'orientation des deux sous réseaux. Pour un échantillon de composition $\text{Co}_{79}\text{Gd}_{21}$ couvert par une couche de 5 nm d'aluminium, la figure 5.2 représente les cycles d'hystérésis en configuration polaire (a) et planaire (b). Dans la configuration planaire, le champ est appliqué suivant l'angle $\varphi = 0$ et l'angle $\varphi = 90^\circ$. Dans la configuration polaire, le cycle est fermé, avec un champ de saturation de l'ordre de 9 kOe. Ce comportement est caractéristique d'une direction de difficile d'aimantation. Le champ magnétique pour sortir l'aimantation hors du plan de la couche est important et sitôt le champ coupé, l'aimantation retombe dans le plan. Le cycle d'hystérésis en configuration planaire pour l'angle $\varphi = 0^\circ$ est carré avec une aimantation à rémanence de 100% et un champ coercitif très faible, de l'ordre de 16 Oe. Dans la direction $\varphi = 90^\circ$ le cycle est fermé avec un champ de saturation de l'ordre de 200 Oe. L'existence d'une anisotropie uni-axiale dans le plan pour des échantillons déposés par co-évaporation a déjà été observée [46], et interprétée comme une conséquence de la géométrie des évaporateurs [106]. Pour s'assurer que cette anisotropie est liée aux conditions de dépôt et non à une simple anisotropie de forme, des mesures d'anisotropie ont été menées sur des échantillons dont les substrats ont été montés parallèlement et perpendiculairement au plan d'évaporation durant le dépôt. Une inversion de 90° des substrats d'un dépôt à l'autre entraîne une rotation de 90° de l'axe de facile aimantation. L'axe de facile aimantation est toujours perpendiculaire au plan d'évaporation. Dans le chapitre 1, il a été vu que cette anisotropie est attribué au phénomène d'ombrage des flux de vapeur [99].

La forme du cycle de la figure 5.2(b) est caractéristique d'un retournement d'aimantation par nucléation puis propagation de paroi, avec un champ de propagation faible et homogène à l'échelle de la zone sondée.

5.2.2 Visualisation des domaines par Microscopie PEEM

Des images PEEM au seuil L_3 du cobalt ont été obtenues sur l'échantillon dont les cycles d'hystérésis mesurés en MOKE sont présentés figure 5.2. Les images ont été acquises pour des angles φ de 0° (a), 45° (b) et 90° (c) entre le vecteur d'onde des photons et la direction de facile aimantation, après désaimantation de l'échantillon. Elles sont représentées figure 5.3. Quand le vecteur d'onde des photons est dans l'axe de facile aimantation, des domaines magnétiques très contrastés apparaissent, qui sont moins contrastés à 45° et qui disparaissent totalement à 90° . La perte de contraste est particulièrement visible dans la

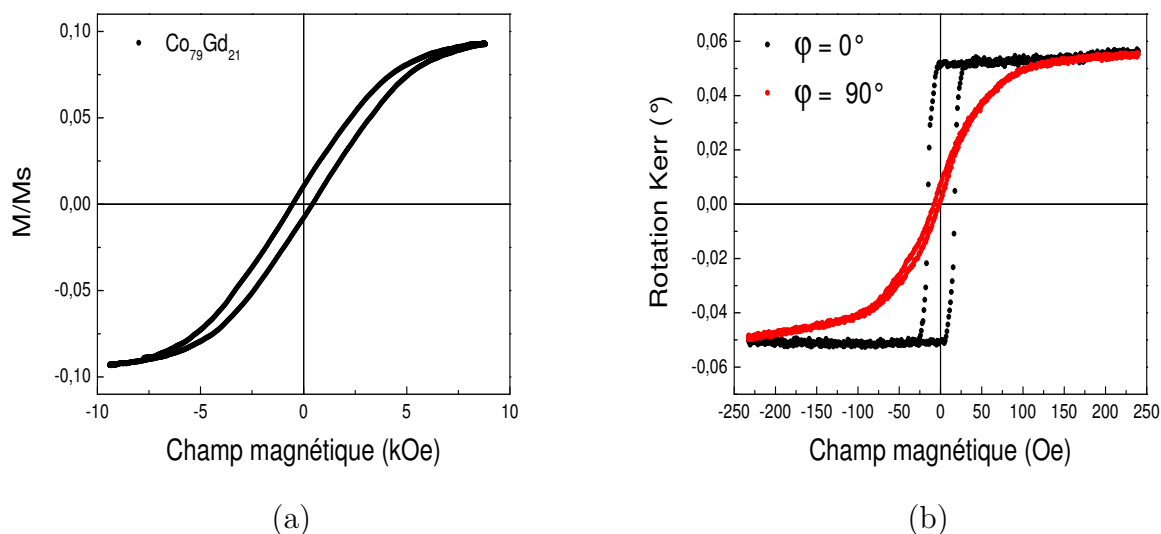


Fig. 5.2 : Cycles d'hystérésis d'un échantillon $\text{Co}_{79}\text{Gd}_{21}$ en configuration polaire (a) et longitudinale (b). Dans la configuration longitudinale, les spectres correspondent à un angle $\varphi = 0^\circ$ (noire) et $\varphi = 90^\circ$

zone encerclée de rouge. Le champ de vue des images est de $50\mu\text{m}$, ce qui signifie que les domaines ont une taille de l'ordre de $20\mu\text{m}$, orienté suivant l'axe de facile aimantation qui est schématisé par une double flèche noire sur la figure. Les mesures PEEM ont

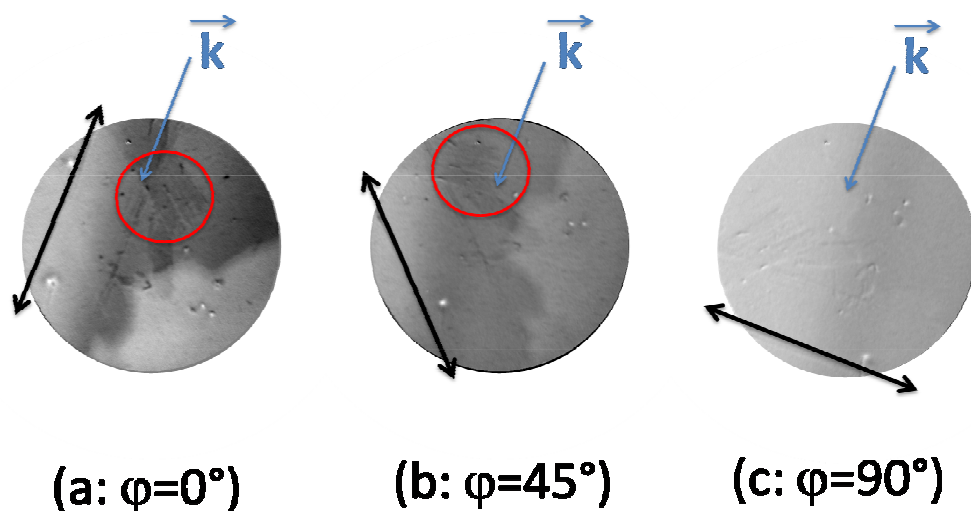


Fig. 5.3 : Images PEEM au seuil L_3 du cobalt pour $\varphi = 0^\circ$ (a), $\varphi = 45^\circ$ (b) et $\varphi = 90^\circ$ (c).

été effectués par J.Y. Chauleau, A. Thiaville, S. Rohart et R. Belkhou au SLS sur la ligne SIM [107]. Le dépouillement de toutes les données n'est pas encore achevé, et seule

l'évolution du contraste magnétique en fonction de l'angle est présentée. L'échantillon mesuré présente des défauts qui compliquent l'interprétation des images et expliquent la faible valeur du champ coercitif. En effet, on peut imaginer qu'un grand nombre de centres de nucléation induisent un renversement pour une faible valeur de champ magnétique.

5.2.3 Détermination des constantes d'anisotropies

La constante d'anisotropie représente l'énergie que coûte la modification de l'orientation de l'aimantation d'une direction facile à une direction difficile. D'après le paragraphe 1.3, l'énergie d'un système possédant une direction difficile hors du plan et un axe privilégié dans le plan peut se mettre sous la forme de l'équation 5.1. K est la constante d'anisotropie planaire, θ est l'angle entre l'aimantation et la normale au plan et φ est l'angle entre l'aimantation et la direction de facile aimantation dans le plan.

$$E(\theta, \phi) = -2\pi M_s^2 \sin^2 \theta + K \sin^2 \theta \sin^2 \varphi \quad (5.1)$$

Des calculs de champ moyen réalisés par Hansen [105] ont données une valeur de M_s de l'ordre de 200 emu/cm^3 à 300K pour des compositions de l'ordre $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$. Si on utilise cette valeur pour l'aimantation à saturation et le champ magnétique pour saturer l'aimantation hors du plan H_K mesuré par effet Kerr (6 kOe), on obtient une constante d'anisotropie $K = \frac{1}{2} H_K \cdot M_s = -6 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$. Cette valeur est semblable à la valeur $K = -6 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$ mesurée par Taylor et collaborateurs pour un échantillon $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$ [46].

Les mesures de magnétométrie Kerr ont montré que le champ coercitif est inférieur à 50 Oe et que l'axe de facile aimantation est dans le plan, orienté suivant la longueur de l'échantillon. L'aimantation à rémanence est de 100% suivant l'axe de facile aimantation. Les échantillons sont montés dans la chambre d'analyse de façon à ce que l'axe de facile aimantation soit aligné avec la direction du champ magnétique de la bobine.

5.3 Influence de la couche de couverture (ou de son absence) sur les propriétés magnétiques d'échantillon $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$.

Dans la perspective d'applications technologiques et de réalisation de dispositifs magnétiques la protection des couches est de grande importance. Dans la suite, je comparerai les propriétés magnétiques de deux types d'échantillons : a) $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$ couvert par une couche d'or, b) $\text{Co}_{87}\text{Gd}_{13}$ sans couverture. Les deux types d'échantillons ont été déposés dans la

chambre de croissance dédiée puis transférés en passant par l'air vers la chambre d'analyse de TEMPO. Les propriétés magnétiques ont été sondées en utilisant le dichroïsme magnétique circulaire des rayons X. L'objectif essentiel est d'évaluer l'influence d'une couche de couverture.

5.3.1 $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$ déposé ex-situ couvert par une couche d'or

5.3.1.1 Profondeur d'échantillon sondée

L'échantillon mesuré est un film d'alliages $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$ recouvert par 6 nm d'or. Après introduction dans la chambre de préparation, il est bombardé à l'argon pour retirer la contamination de surface et retirer une partie de la couche d'or. La figure 5.4 représente le spectre XPS de l'échantillon après bombardement. La mesure d'un signal en photoémission des états 3p du cobalt et 4d du gadolinium à 700 eV d'énergie de photon signifie que la couche d'or résiduelle n'excède pas 3 nm. Malgré la présence de cette couche d'or, on peut espérer sonder plusieurs nm en XMCD avec une détection en rendement total d'électrons.

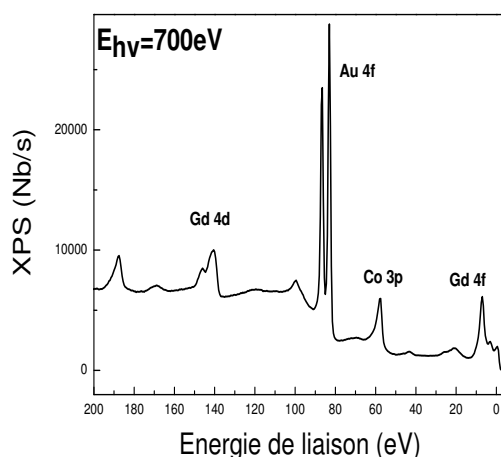


Fig. 5.4 : Spectre XPS de l'échantillon $\text{Co}_{70}\text{Gd}_{30}$ après bombardement ionique.

5.3.1.2 Propriétés magnétiques

Les spectres d'absorption aux seuils $L_{2,3}$ du cobalt et $M_{4,5}$ du gadolinium ainsi que les spectres XMCD sont représentés figure 5.5. Les spectres XMCD présentés ont été corrigés des effets de saturation et d'angle. En effet, la longueur de pénétration des rayons X au seuils M_5 du gadolinium est de 62\AA pour un libre parcours moyen des électrons de 45\AA ce qui d'après la relation 2.8 entraîne une correction de 50% du signal XMCD [108]. Le signal

d'absorption au seuil M_5 du gadolinium est donc sensible à la surface de l'échantillon, la couche d'or de protection contribuant à l'atténuation du signal. Le signal magnétique du gadolinium mesuré en XMCD n'est représentatif que des 2 nm supérieurs de la couche. Dans le cas du cobalt, la longueur de pénétration des rayons X au seuil L_3 est de 20 nm et de 30 nm au seuil L_2 pour une profondeur d'échappement de 2.5nm. Les effets de saturations sont du même ordre de grandeur que dans le cas du fer (section 2.3) [75]. Le spectre d'absorption aux seuils $L_{2,3}$ du cobalt ne montre aucun signe d'hybridation

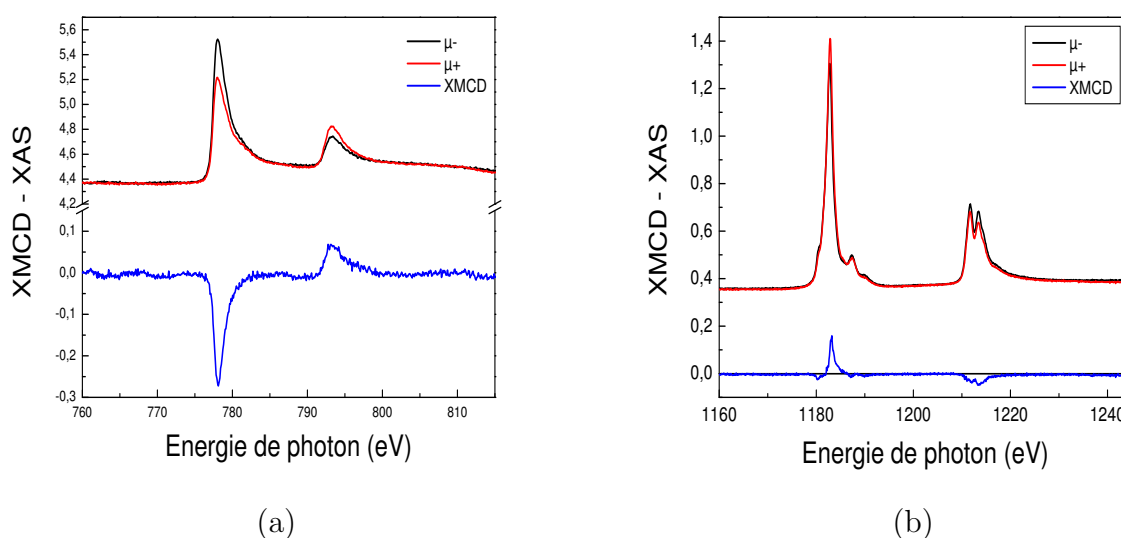


Fig. 5.5 : Spectres XAS aux seuils $L_{2,3}$ du cobalt (a) et aux seuils $M_{4,5}$ du gadolinium (b) et signal XMCD correspondant de l'échantillon $Co_{70}Gd_{30}$ couvert d'or. Seuls les spectres XMCD sont représentés en tenant compte de la correction de l'angle et la saturation.

du cobalt avec l'or ni d'oxydation du cobalt. La couche de protection est efficace dans la protection de l'échantillon. L'or a pour effet de donner une contribution énorme au fond des signaux d'absorption et de réduire le rapport signal sur bruit. Le signe du signal XMCD montre que le cobalt est couplé parallèlement au champ magnétique ce qui signifie que la température de compensation, si elle existe est inférieure à la température ambiante ce qui est en contradiction avec la littérature pour cette composition [48]. La différence d'absorption au seuil L_3 du cobalt de l'échantillon couvert par de l'or atteint 25%.

5.3.2 $\text{Co}_{87}\text{Gd}_{13}$ déposées ex situ sans couche de protection

5.3.2.1 Propreté de l'échantillon en profondeur

Une étude similaire a été effectuée sur un échantillon non couvert, déposé dans la chambre de croissance sous un vide inférieur à 2.10^{-10} mbar. Après croissance, l'échantillon a été transféré vers la chambre d'analyse de la ligne TEMPO. Avant les mesures, l'échantillon a été bombardé à l'argon pour retirer la contamination (carbone et oxygène) induite par le passage à l'air. Le spectre XPS de l'échantillon après bombardement est représenté figure 5.6. La composition déterminée à partir de ce spectre est de 87% de cobalt et 13% de gadolinium. Malgré l'absence de couche de couverture, l'échantillon est d'une grande pureté, comme en témoigne la très faible contribution du signal 1s de l'oxygène. L'absence

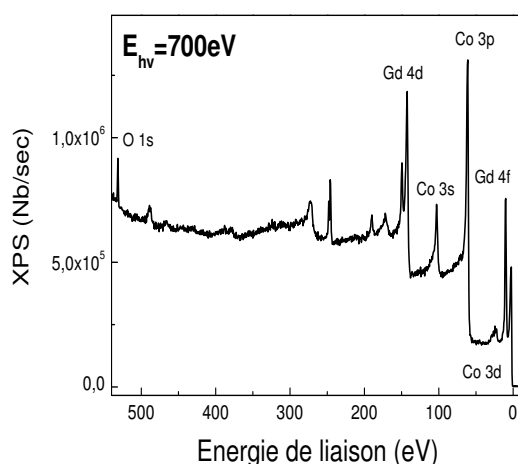


Fig. 5.6 : Spectre XPS de l'échantillon $\text{Co}_{87}\text{Gd}_{13}$ pour une énergie de photon de 700 eV.

de couche de couverture ainsi que la pureté de l'échantillon vont permettre de déterminer par XMCD les valeurs de moments magnétiques.

5.3.2.2 Propriétés magnétiques

Les spectres d'absorption et de dichroïsme, après bombardement, aux seuils $L_{2,3}$ du cobalt et aux seuils $M_{4,5}$ du gadolinium sont représentés figure 5.7. Les spectres XMCD sont corrigés par l'angle d'incidence et par les effets de saturation (section 2.3). La différence XMCD aux seuils L_3 du cobalt est de 60% au lieu de 25% pour l'échantillon couvert par une couche d'or. La différence est de 51% au seuil M_5 du gadolinium, bien supérieures aux valeurs obtenues pour l'échantillon couvert d'or.

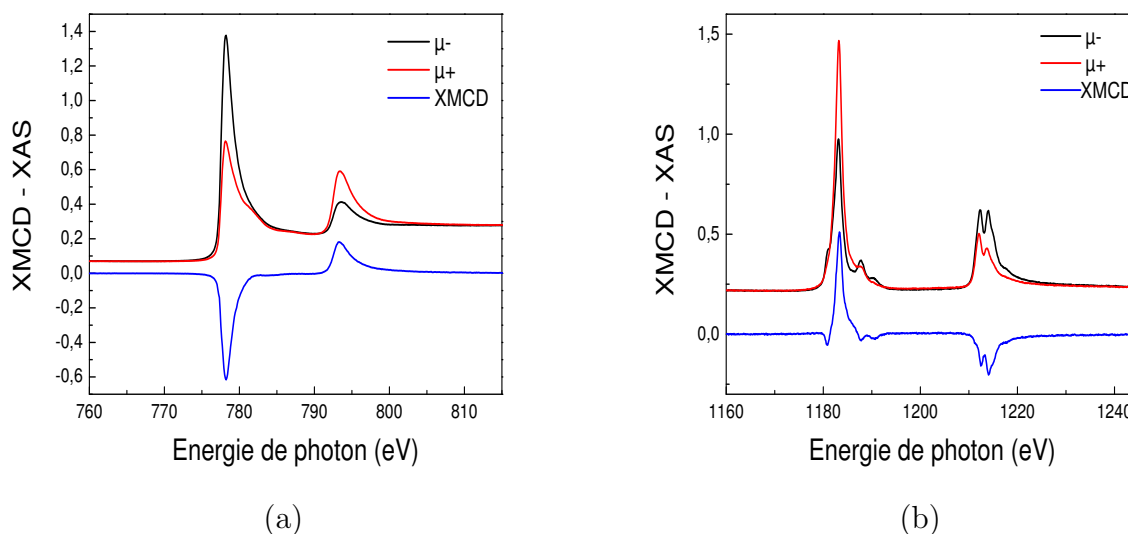


Fig. 5.7 : Spectres XAS aux seuils L_{2,3} du cobalt (a) et aux seuils M_{4,5} du gadolinium (b) et signal XMCD correspondant de l'échantillon Co₈₇Gd₁₃.

5.3.3 Moment magnétique des atomes de cobalt et de gadolinium

5.3.3.1 Moment magnétique du cobalt

Le signal aux seuils L_{2,3} du cobalt de l'échantillon Co₈₇Gd₁₃ après correction des effets de saturation (voir 2.3) est comparable au signal obtenu par Chen et collaborateurs sur un échantillon de cobalt pur mesuré par transmission [75]. Les spectres d'absorption sont comparés figure 5.8. En appliquant les règles de somme, il est possible de déterminer les valeurs de moments magnétiques orbitaux et de spin. Les résultats sont récapitulés dans le tableau 5.9. Le moment magnétique total obtenu par les règles de somme est de $0.75\mu_B/n_h$ pour l'échantillon Co₈₇Gd₁₃, comme dans le cas du cobalt massif. Dans un alliage propre le moment magnétique du cobalt est la même du cobalt massif. Pour l'échantillon couvert d'or, la différence est de 25%, c'est à dire que l'aimantation résultante est plus faible que dans l'échantillon non couvert. La contamination, même si elle n'est pas visible sur les spectres d'absorption, a comme effet de réduire l'aimantation moyenne des atomes de cobalt.

5.3.3.2 Moment magnétique du gadolinium

Le gadolinium, à température nulle a un moment orbital nul et un moment magnétique de spin de $7\mu_B$ par atome. Le signal XAS isotrope ainsi que le signal XMCD correspondant ont été calculés [109]. Les calculs donnant une différence de 52.5% au seuil M₅ du gadoli-

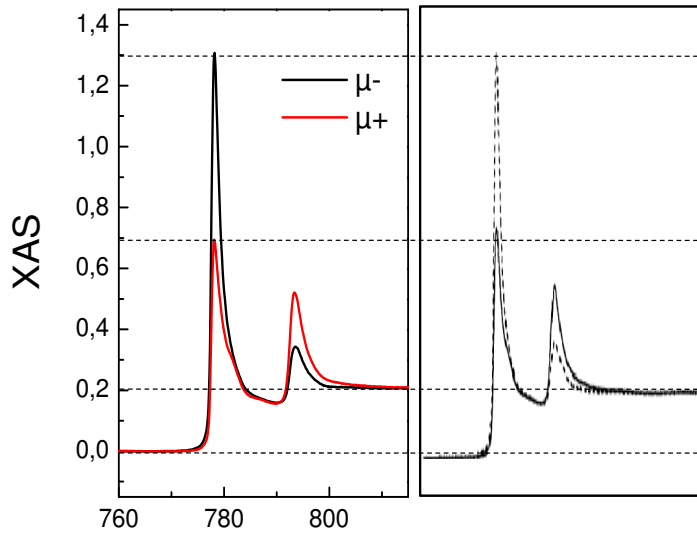


Fig. 5.8 : Spectre XAS de l'échantillon $\text{Co}_{87}\text{Gd}_{13}$ pour deux polarisations et spectres XAS obtenus par Chen et al. [75] pour du cobalt pur en transmission.

	$m_{\text{orb}} (\mu_{\text{B}}/n_{\text{h}})$	$m_{\text{spin}} (\mu_{\text{B}}/n_{\text{h}})$	m_{tot}
$\text{Co}_{87}\text{Gd}_{13}$	0.08	0.67	0.75
Co pur	0.06	0.65	0.71

Fig. 5.9 : Comparaison du moment magnétique orbital et de spin pour un atome de cobalt de l'échantillon $\text{Co}_{87}\text{Gd}_{13}$ comparé au cobalt pur.

nium. Le spectre aux seuils $M_{4,5}$ représenté figure 5.7(b) montre un signal de 51% au seuil M_5 de l'échantillon $\text{Co}_{87}\text{Gd}_{13}$. La comparaison entre les spectres d'absorptions isotropes, mesuré pour l'échantillon $\text{Co}_{87}\text{Gd}_{13}$ et calculé pour le gadolinium pur à 2K, est représentée figure 5.10(a). Les signaux XMCD sont quant à eux comparés figure 5.10(b). L'amplitude du signal XMCD mesurée sur l'échantillon $\text{Co}_{87}\text{Gd}_{13}$ doit être multiplié par un facteur 1.03 pour se superposer avec le spectre calculé, correspondant à un moment $7\mu_{\text{B}}$. Dans notre cas, le moment magnétique du gadolinium est donc de $6.8\mu_{\text{B}}$. Un résultat similaire pour le moment magnétique du gadolinium a été observé dans l'alliage GdNi_2 [110], également par XMCD aux seuils $M_{4,5}$. Un calcul de champ moyen pour un échantillon $\text{Co}_{87}\text{Gd}_{13}$ (exposé plus en détails dans le chapitre 6), donne un moment de $6.48\mu_{\text{B}}$. Pour expliquer la différence entre le calcul de champ moyen et le résultat expérimental, il faut rappeler que les profondeurs de pénétration des électrons ou des rayons X ne sont pas connues

de manière absolue. En changeant la valeur de profondeur d'échappement des électrons de 45 \AA à 40 \AA dans le calcul des effets de saturation permet de retrouver une valeur de $6.48\mu_B$. Néanmoins, toutes ces mesures indiquent que le moment magnétique d'un atome de gadolinium dans l'alliage est proche (mais légèrement inférieur) au moment magnétique du gadolinium à 2K.

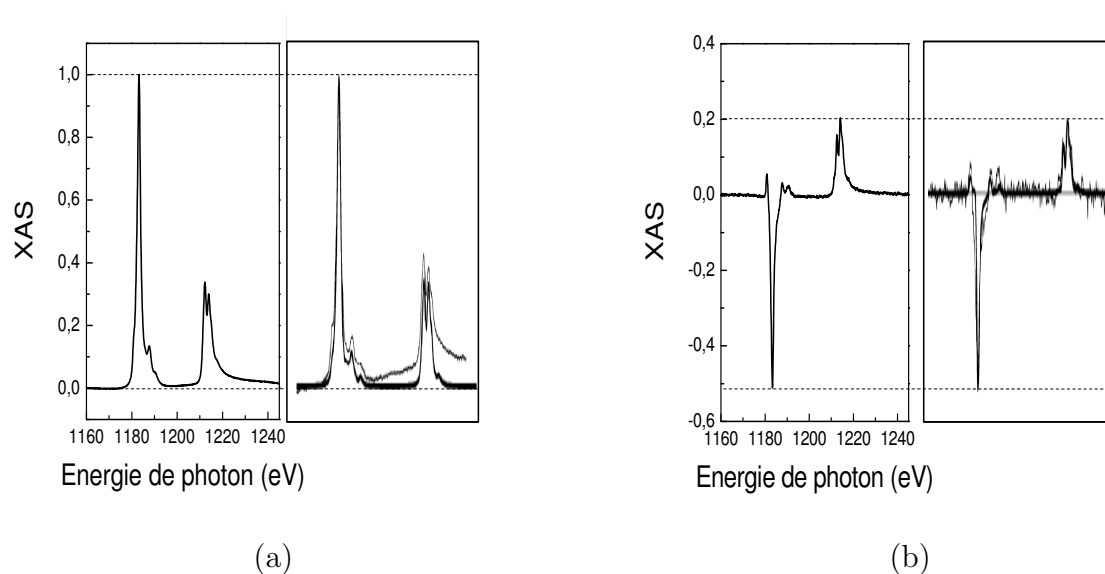


Fig. 5.10 : Spectres XAS (a) et XMCD (b) de l'échantillon $\text{Co}_{87}\text{Gd}_{13}$ pour deux polarisations et spectres XMCD simulé pour du gadolinium pur à 2K [109].

Dans un alliage $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$ sans contamination le moment magnétique d'un atome de gadolinium est proche du moment magnétique d'un atome de gadolinium isolé à température nulle et le moment magnétique du cobalt est identique à celui du cobalt massif. L'ordre magnétique dans les métaux de terres rares est assuré par un couplage de type RKKY, véhiculé par les électrons 5d et 6s. L'ajout de cobalt, en nombre majoritaire renforce le couplage entre les électrons 4f du gadolinium qui conserve un moment à température ambiante. Ce résultat explique aussi pourquoi il n'existe qu'une température de Curie pour les deux matériaux dans les alliages. On remarque au passage qu'aucune signature du couplage entre le cobalt et le gadolinium n'est visible dans la forme des spectres (voir figures 5.8 et 5.10(a)) [28].

5.4 Effet de l'oxygène sur les propriétés magnétiques d'échantillon Co_xGd_{1-x} .

5.4.1 L'oxygène dans les alliages Co-Gd

Un film d'alliage de composition $Co_{80}Gd_{20}$ a été déposé dans la chambre de préparation de la ligne TEMPO, dans un vide de $5 \cdot 10^{-10}$ mbar, puis transféré vers la chambre d'analyse, dont le vide est inférieur $2 \cdot 10^{-10}$ mbar. L'échantillon a été bombardé à l'argon pour retirer la couche ségrégée (section 4.3) ainsi que la contamination induite par le transfert vers la chambre d'analyse. Le spectre de l'échantillon après bombardement est représenté figure 5.11. Malgré le dépôt in situ, le spectre montre une contribution de l'oxygène supérieure à celle de l'échantillon $Co_{87}Gd_{13}$ décrit au paragraphe précédent. Cette différence est due au vide dans la chambre pendant le dépôt, et montre que la quantité d'oxygène implantée dans le volume de l'alliage ne dépend pas de la présence de couverture.

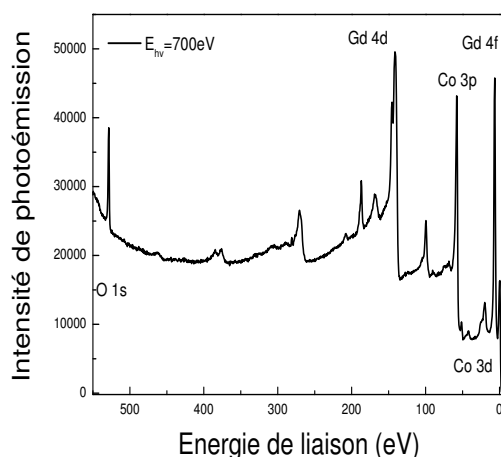


Fig. 5.11 : Spectre XPS à 700 eV d'énergie de photon de l'échantillon $Co_{80}Gd_{20}$.

L'oxygène joue un rôle essentiel sur les propriétés magnétiques des alliages CoGd. Si il est évident au vu des résultats précédents que l'oxygène est introduit dans l'échantillon au cours du dépôt, il reste à savoir où il se fixe dans l'échantillon. Pour répondre à cette question, un échantillon de 2 nm d'épaisseur et riche en cobalt (90%) a été déposé in situ. La figure 5.12 représente les spectres XPS à 760 eV d'énergie de photons avant et après bombardement à l'argon. Après bombardement à l'argon, une grande partie du gadolinium a disparu, tout comme la contribution de l'oxygène. Cela signifie que l'oxygène se fixe au gadolinium durant le dépôt. Le vide durant le dépôt détermine la propriété de l'échantillon en volume. Une fois retirée la couche de couverture ou les couches contaminées de surface,

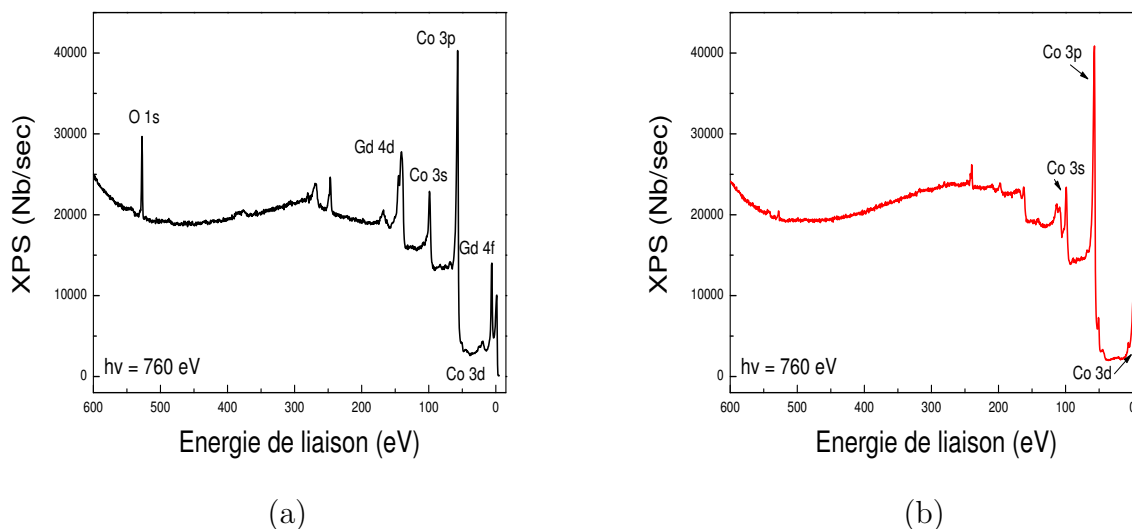


Fig. 5.12 : Spectres XPS de l'échantillon $Co_{90}Gd_{10}$ pour une énergie de photon de 760 eV avant (a) et après (b) après bombardement à l'argon.

il est possible de mesurer des signaux magnétiques importants. Pourtant la réactivité du gadolinium avec l'oxygène est importante. La surface découverte va réagir avec l'oxygène environnant. La section suivante propose une étude de la cinétique de réaction de l'oxygène avec les atomes de gadolinium à la surface.

5.4.2 Cinétique du processus d'oxydation

Pour mesurer les effets de la contamination sur les propriétés magnétiques, on a suivi l'évolution du signal de dichroïsme en photoémission (MCD, voir section 2.5.6) à 400 et 700eV d'énergie de photons en fonction du temps. Les mesures ont été effectuées sur l'échantillon $Co_{80}Gd_{20}$ déposé in situ puis bombardé à l'argon. Le vide dans la chambre d'analyse de la ligne est inférieur à 2.10^{-10} mbar, mais pendant la mesure, l'échantillon fait face au détecteur de photoélectrons dont le vide est de l'ordre de 1.10^{-9} mbar.

Les figures 5.4.2 (a), (b) et (c) représentent les spectres XPS et MCDAD des états 4d du gadolinium, 3p du cobalt et la bande de valence juste après bombardement à l'argon. Ces spectres seront pris comme référence. Les spectres de photoémission sont mesurés à 700 eV, énergie choisie pour maximiser à la fois le flux de photons, la résolution, la section efficace de photoionisation et le libre parcours moyen des électrons (voir 2.5). L'énergie de liaison des états 1s de l'oxygène de 541 eV est donc accessible à 700eV. La surface de l'échantillon est suffisamment propre pour mesurer un dichroïsme en photoémission pour tous les états de cur représentés. Pour les états 4d (respectivement 4f) du gadolinium le

pourcentage d'asymétrie (formule 2.5.6.2) est de 20% respectivement 12%. L'asymétrie du cobalt est de 8% pour les états 3p du cobalt.

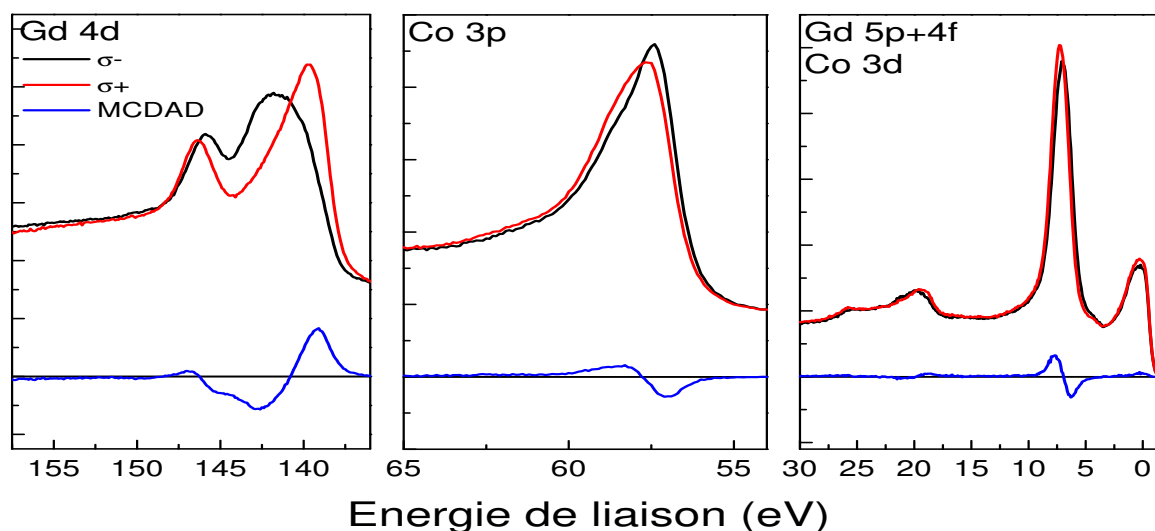


Fig. 5.13 : Spectres XPS et MCD pour un échantillon $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$ déposé in-situ après bombardement à l'argon.

A titre d'illustration, l'évolution des spectres MCDAD mesurés pendant toute une nuit pour une énergie de photons de 700eV est représentée figure 5.14. Le signal magnétique des états 3p du cobalt reste constant en fonction du temps, alors que le dichroïsme des états 4d du gadolinium diminue en fonction du temps, jusqu'à atteindre une saturation après 400 minutes. Le signal magnétique du cobalt n'est pas affecté par la contamination, seul celui du gadolinium diminue. La figure 5.15(a) représente l'évolution de l'asymétrie en fonction du temps, normalisée par l'asymétrie à $t=0\text{min}$ pour les deux énergies de photons. Pour une énergie de 400 eV, la profondeur d'échappement des électrons est plus faible qu'à 700 eV, ce qui explique que l'on ne note pas la saturation observée à 700 eV. Cet effet de saturation est attribué à la passivation de la surface de l'échantillon. L'oxygène s'introduit dans l'échantillon jusqu'à une certaine profondeur, oxyde le gadolinium et l'échantillon se stabilise. Ces mesures suffisent pour estimer l'épaisseur de passivation de l'échantillon. La figure 5.15(b) donne l'épaisseur de la couche oxydée en fonction du temps, extraite des mesures de la figure 5.15(a). La passivation est effective dès que les 8 premiers Å sont oxydés.

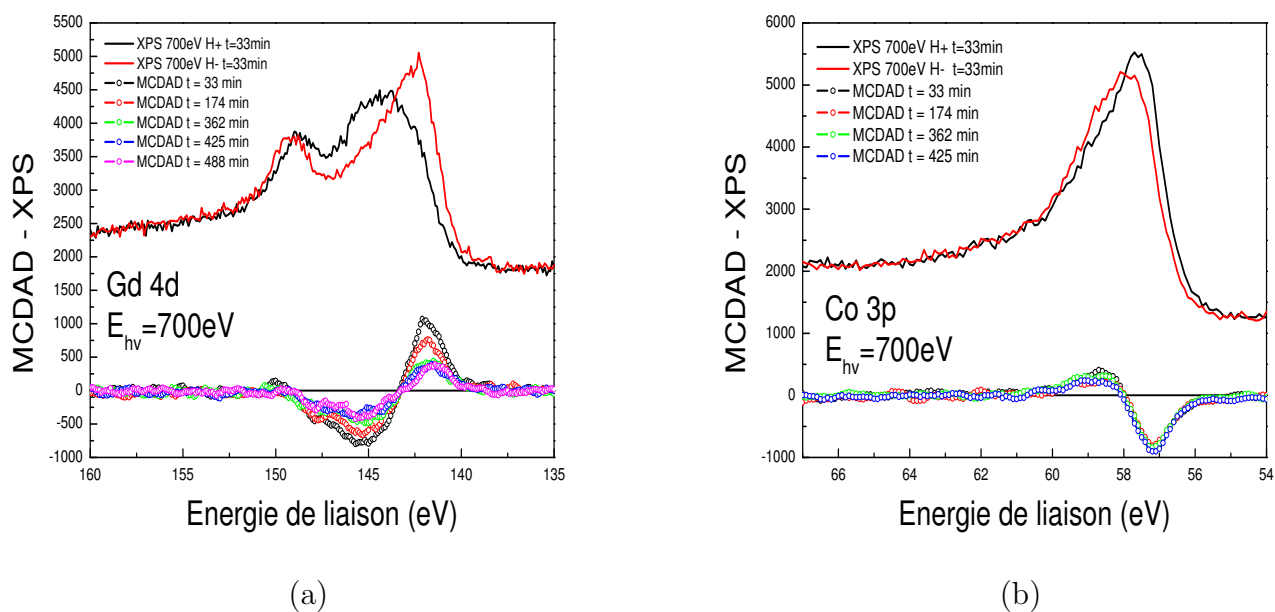


Fig. 5.14 : Spectres XPS à $t=33\text{min}$ après bombardement et MCD en fonction du temps pour un échantillon $Co_{80}Gd_{20}$ déposé in-situ.

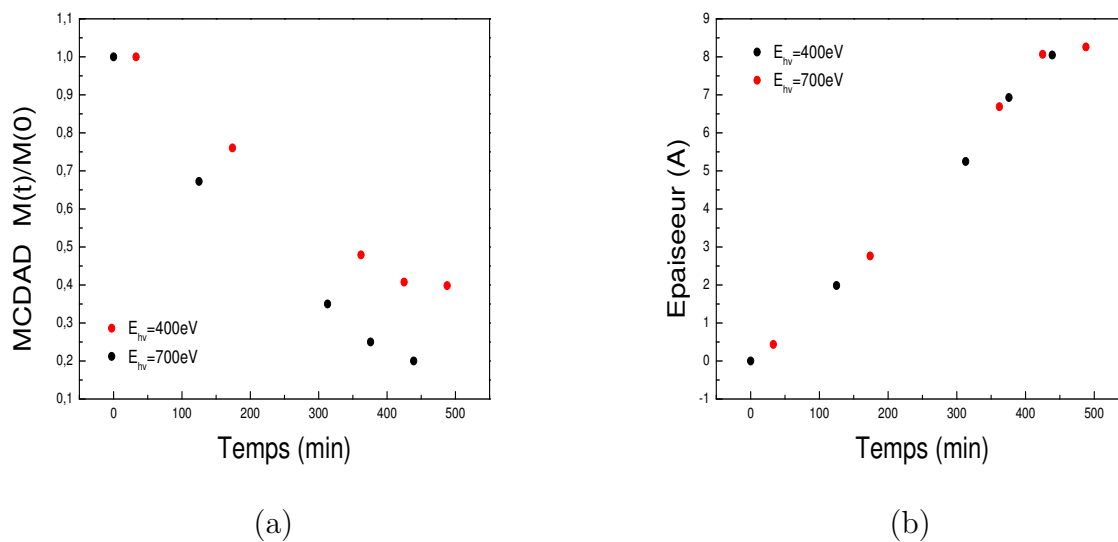


Fig. 5.15 : Asymétrie magnétique mesurée en photoémission pour des énergies de photons de 400 et 700 eV, normalisée par la valeur à $t=0\text{min}$ (a). Epaisseur de la couche oxydée en fonction du temps (b).

5.5 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons déterminé les propriétés magnétiques de films minces d'alliages CoGd amorphes déposés par co-évaporation thermique sous ultravide. Les films sont caractérisés par une anisotropie uni-axiale dans le plan, avec un champ coercitif très faible dans la direction de facile aimantation ainsi qu'une aimantation à rémanence égale à l'aimantation à saturation. Nous avons également vu que les propriétés magnétiques de volume sont déterminées par le vide durant le dépôt, et que la contamination de l'échantillon se limite à sa surface. Dans un vide de l'ordre de 10^{-9} , la surface de l'échantillon s'oxyde sur 8 Å, puis se passive. Par conséquent, le dépôt d'une couche de couverture n'est pas essentiel à condition d'étudier des échantillons très épais par rapport à l'épaisseur de passivation ou à éliminer la couche d'oxyde avant les mesures. Nous avons vu que la couche de couverture est plutôt une contrainte dans le cas de mesures d'absorption. Les spectres XMCD ont montré que le moment magnétique des atomes de cobalt dans l'alliage est égal au moment du cobalt massif. Le moment magnétique des atomes de gadolinium est proche du moment du gadolinium à 0K. Dans la suite, les mesures des propriétés magnétiques en fonction de la température d'un échantillon présentant un gradient de composition vont être exposées.

Chapitre 6

Comportement des propriétés magnétiques d'un échantillon CoGd présentant un gradient de composition en fonction de la température

6.1 Introduction

Un des objectifs de cette thèse est de produire des échantillons CoGd avec une température de compensation magnétique proche de la température ambiante, dans le but de mesurer les propriétés dynamiques de l'aimantation des sous réseaux autour de la température de compensation. Ce chapitre regroupe l'ensemble des mesures de magnétométrie Kerr, d'absorption (XAS) et de dichroïsme magnétique (XMCD) réalisées sur un échantillon présentant un gradient latéral de composition. La première partie concerne les mesures réalisées à température ambiante visant à mettre en évidence la compensation et la deuxième concerne l'étude en fonction de la température par XMCD des propriétés magnétiques ainsi qu'une confrontation avec les courbes calculées en champ moyen.

6.2 Mise en évidence de la compensation magnétique à température ambiante

6.2.1 Observation de la compensation par magnétométrie Kerr

La magnétométrie Kerr sonde les propriétés magnétiques du réseau de cobalt sur toute l'épaisseur du film (voir section 2.4). L'aimantation mesurée est celle du volume équivalent au produit de l'épaisseur par la surface du faisceau. Les figures 6.1(b,c,d) présentent trois cycles d'hystérésis obtenus par magnétométrie Kerr en configuration longitudinale (voir section 3.3) pour trois positions distinctes d'un film de composition théorique $\text{Co}_{79}\text{Gd}_{21}$ recouvert par 5 nm d'aluminium. La rotation Kerr à saturation des cycles d'hystérésis est différente d'une position à l'autre. Le cycle de la figure 6.1(b) montre que le sous réseau de cobalt est orienté dans le sens du champ magnétique, avec un champ coercitif de l'ordre de 150 Oe. Ce comportement est attendu pour un échantillon de composition $\text{Co}_{79}\text{Gd}_{21}$, dont la température de compensation est inférieure à la température ambiante. Le cycle de la figure 6.1(d) obtenu sur une petite partie de l'échantillon est inversé ce qui est la signature d'un réseau magnétique du cobalt orienté dans le sens inverse du champ magnétique à saturation. Le champ coercitif est du même ordre de grandeur que pour le premier cycle. Cette partie de l'échantillon semble donc pilotée magnétiquement par les moments du gadolinium, avec une température de compensation supérieure à la température ambiante. Le cycle de la figure 6.1(c) a une forme beaucoup plus exotique, mais d'un aspect plus proche du cycle de la figure 6.1(d). Il semble résulter d'une combinaison de deux cycles inversés et de champ coercitifs différents.

Si la compensation magnétique permet d'expliquer l'inversion du cycle d'hystérésis, il est nécessaire de s'attarder sur la différence d'amplitude des cycles. Pour cela, notons

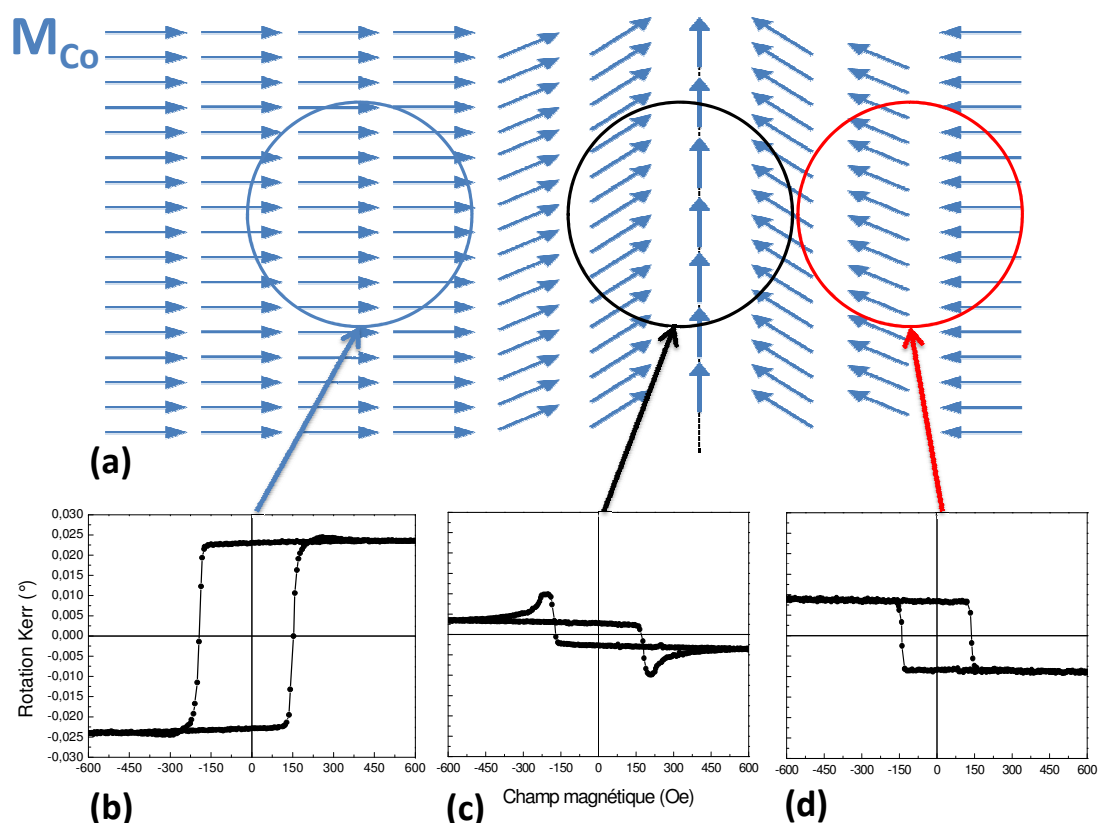


Fig. 6.1 : Schéma représentant le réseau magnétique du cobalt (a). Les cercles colorés représentent la position du faisceau laser lors de la mesure des cycles d'hystérésis LMOKE donnés en bas de la figure à $T=300\text{K}$ (b,c,d).

que : i) au passage de la température de compensation l'orientation des sous réseaux est inversée et une divergence du champ coercitif est attendue [14] et ii) le faisceau laser fait quelques centaines de microns sur l'échantillon. La partie de l'échantillon où l'aimantation est pilotée par le gadolinium a une taille analogue à celle du faisceau. Le schéma de la figure 6.1(a) représente schématiquement le sous réseau magnétique du cobalt en fonction de la position sur l'échantillon, avec la zone de transition (la paroi) entre les deux orientations. Les cercles colorés représentent la tâche du laser correspondant aux cycles représentés. On peut, grâce à ce schéma proposer une interprétation à l'amplitude des spectres : le cycle de la figure 6.1(b) est mesuré dans une zone d'aimantation uniforme, le cycle de la figure 6.1(d) sur une zone à cheval entre une aimantation uniforme et opposée à la première et la paroi alors que le cycle de la figure 6.1(c) est mesuré sur la paroi.

6.2.2 Confirmation par XMCD

Des mesures de dichroïsme magnétique circulaire (XMCD) ont été réalisées sur le même échantillon (section 2.3). Les spectres d'absorption et de dichroïsme aux seuils $L_{2,3}$ du cobalt et $M_{4,5}$ du gadolinium pour les deux zones de l'échantillon correspondant aux cycles des figures 6.1(b) et (d) sont présentés figure 6.2.2. L'inversion de signe des spectres XMCD visible sur les spectres du cobalt et du gadolinium renforce l'hypothèse de l'existence d'une zone intermédiaire présentant une température de compensation proche de la température ambiante dans cet échantillon. Une remarque essentielle concerne la faiblesse du signal XMCD du gadolinium dans les deux régions de l'échantillon. La cause de cette faiblesse a été attribuée à la couche de couverture (ici de l'aluminium, section 5.3) ainsi qu'à l'existence d'une couche de gadolinium ségréguée (section 4.3) qui absorbent la plus grande partie des rayons X au seuil M_5 . Le signal mesuré n'est donc pas strictement celui du gadolinium dans le volume de l'échantillon. Ses différentes sources seront rediscutées plus tard dans ce chapitre.

Pour se convaincre que l'inversion des signaux XMCD est liée à la composition et qu'il existe une région de l'échantillon qui présente une température de compensation proche de la température ambiante dans cette couche, nous avons réalisé des mesures XMCD en fonction de la température, de 80 à 293K. La ligne de lumière TEMPO est équipée d'un cryostat permettant de descendre jusqu'à 48K (voir 3.4). Dans la section suivante, toutes les propriétés magnétiques de l'échantillon seront étudiées en fonction de la température, de 80 à 293K.

6.3 Evolution des signaux magnétiques en fonction de la température

6.3.1 Préambule : le moment magnétique des atomes de cobalt et de gadolinium en champ moyen

J'ai réalisé un programme de calcul en champ moyen pour simuler l'évolution des moments magnétiques du cobalt et du gadolinium dans des alliages CoGd en fonction de la température. La procédure employée ainsi que les paramètres utilisés sont tirés des travaux de Hansen [105]. La figure 6.3 représente l'aimantation à saturation en fonction de la composition en cobalt d'un alliage CoGd, obtenue grâce à des calculs de champ moyen. Dans les calculs, j'ai fixé la valeur de la constante d'échange entre les atomes de cobalt et de gadolinium à 20×10^{-16} erg au lieu de 22×10^{-16} erg dans le cas de Hansen, ce qui permet d'obtenir une compensation magnétique à température ambiante pour $x_{Co} = 0.78$,

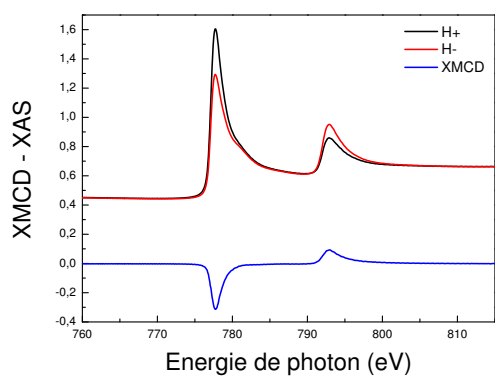
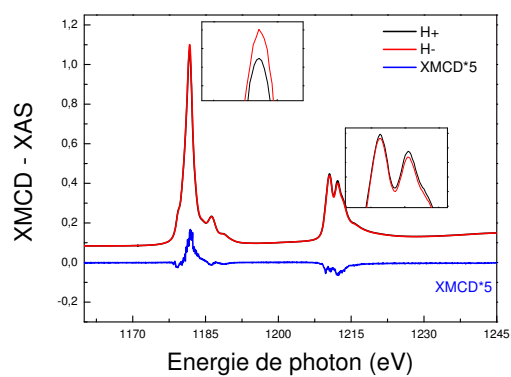
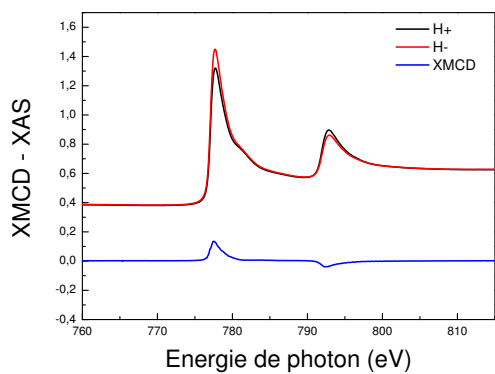
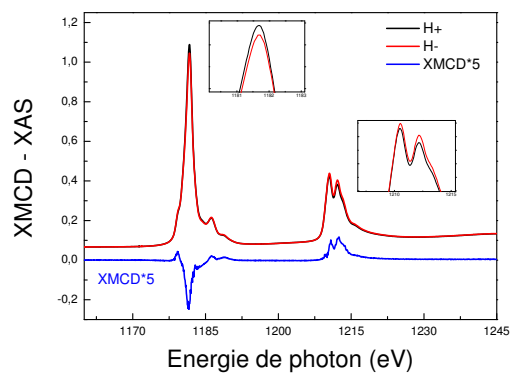
(a, Cobalt L_{2,3})(b, Gadolinium M_{4,5})(c, Cobalt L_{2,3})(d, Gadolinium M_{4,5})

Fig. 6.2 : Spectres d'absorption et de dichroïsme aux seuils L_{2,3} du cobalt (a,c) et M_{4,5} (b,d) du gadolinium en deux points correspondant aux régions pour lesquelles les cycles des figures 6.1(b) et (d) ont été mesurés.

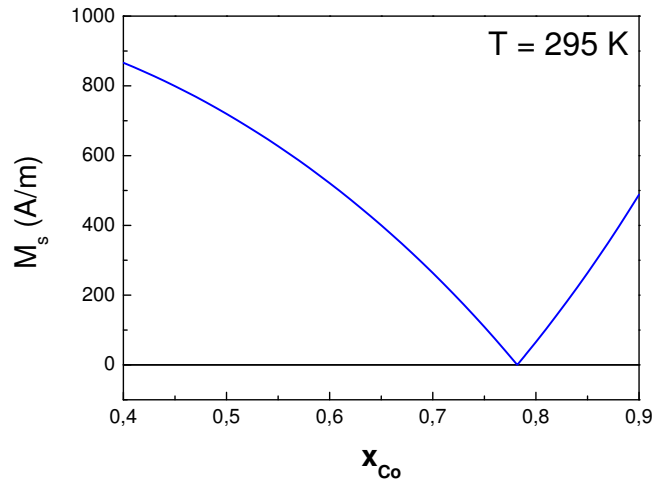


Fig. 6.3 : Moment magnétique à saturation à $T = 295$ K en fonction de la composition en cobalt. L'unité SI est choisie pour simplifier la comparaison avec la littérature.

compatible avec les résultats expérimentaux de Taylor et Gangulee [46]. La figure 6.4 montre le comportement du moment magnétique du cobalt et du gadolinium pour un échantillon de composition $\text{Co}_{79}\text{Gd}_{21}$. Le moment magnétique du cobalt n'évolue pas avec la température, et est égal au moment à $T=0$ K. Le moment du gadolinium diminue avec la température. Ces résultats sont en bon accord avec les résultats expérimentaux de la section 5.2. J'ai également calculé l'évolution de l'aimantation à saturation pour des échantillons de compositions voisines : $\text{Co}_{81}\text{Gd}_{19}$, $\text{Co}_{80}\text{Gd}_{20}$ et $\text{Co}_{79}\text{Gd}_{21}$ (voir figure 6.5). Ces résultats montrent que la température de compensation est très dépendante de la composition de l'alliage. En effet, un écart de 1% en composition conduit à un écart de l'ordre de 70K sur la température de compensation magnétique. De plus, l'évolution des moments magnétiques est assez douce jusqu'à 300K. Ces calculs reproduisent bien les comportements des sous réseaux [31, 105] et vont nous servir de base pour analyser les propriétés magnétiques de nos alliages en fonction de la température mesurées par XMCD.

6.3.2 Visualisation des domaines par XMCD

A température ambiante, l'échantillon présente deux zones d'aimantations opposées. Nous avons postulé l'existence d'une frontière entre ces deux zones, appelée paroi de compensation [30]. Pour imager ces domaines et la frontière entre eux, la technique envisagée est la cartographie par XMCD au seuil L_3 du cobalt. La taille du faisceau sur TEMPO est de $100\mu\text{m}$ ce qui limite notre résolution. Le porte échantillon est monté sur un ma-

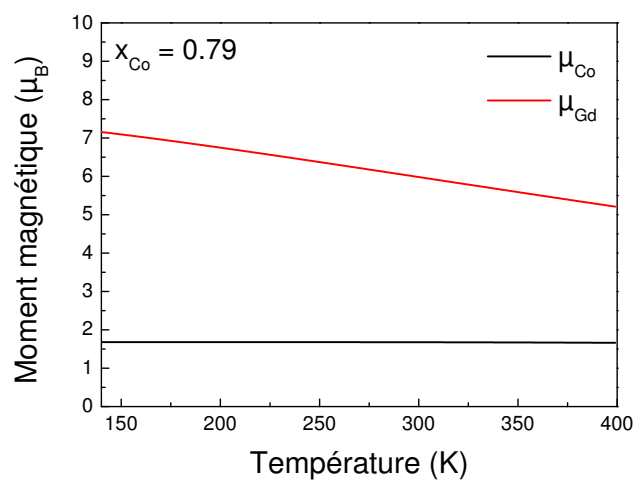


Fig. 6.4 : Moments magnétiques des atomes de cobalt (noir) et de gadolinium (rouge) en fonction de la température, calculés en champ moyen, pour un échantillon de composition $Co_{79}Gd_{21}$.

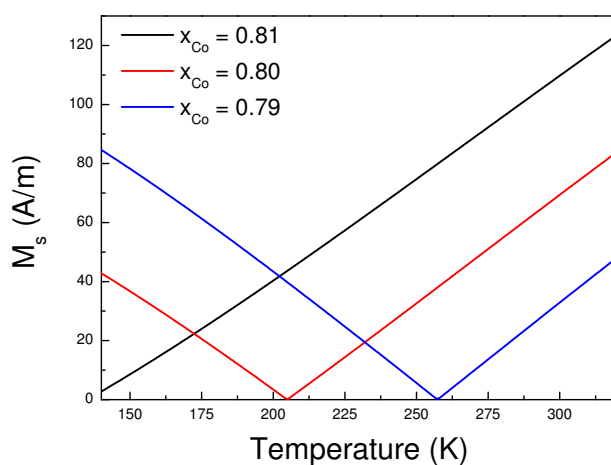


Fig. 6.5 : Aimantation à saturation en fonction de la température calculée en champ moyen pour des échantillons de compositions $Co_{81}Gd_{19}$, $Co_{80}Gd_{20}$ et $Co_{79}Gd_{21}$.

nipulateur dont les déplacements sont contrôlés avec une résolution de 20 microns. La cartographie réalisée à 80K est représentée figure 6.6, sur une portion de 4 par 5 mm, avec des pas de $100\mu\text{m}$. A chaque point, le photocourant est mesuré à rémanence après saturation sous champ, pour une lumière polarisée circulairement à gauche (μ_-) et à droite (μ_+). La cartographie représente la différence sur la somme des deux grandeurs mesurées. Le choix de travailler au seuil L_3 du cobalt est justifié par le fait qu'il offre le meilleur contraste magnétique. Cette cartographie magnétique montre clairement l'existence de

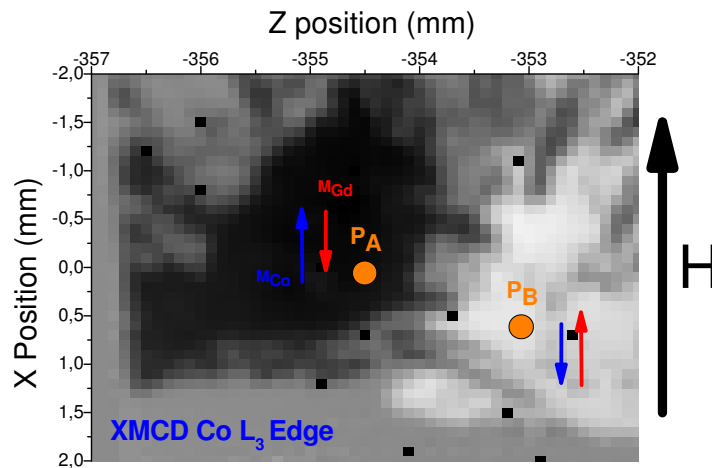


Fig. 6.6 : Cartographie XMCD au seuil L_3 du cobalt d'un échantillon présentant un gradient latéral de composition à $T=80\text{K}$.

deux régions distinctes, séparées par une paroi de l'ordre de $100\mu\text{m}$. La première région, en noir sur la figure, représente la partie de l'échantillon dont l'aimantation du cobalt se couple parallèlement au champ magnétique. Dans cette partie, la température de compensation, si elle existe, est inférieure à 80K, ce qui d'après les calculs de champ moyen correspond à une composition en cobalt supérieure à 81% [105]. Dans la région blanche, l'aimantation du cobalt est couplée antiferromagnétiquement au champ magnétique. Dans cette partie de l'échantillon, la température de compensation est supérieure à 80K. Pour étudier les propriétés magnétiques en fonction de la température, deux points, nommés P_A et P_B sur la figure 6.6 sont choisis dans chacun des deux domaines magnétiques.

6.3.3 Comportement des sous réseaux magnétiques en fonction de la température

Descente rapide en température La mesure du signal XMCD au seuil L_3 du cobalt au point P_B en fonction de la température est donnée figure 6.7. En baissant la température

de 290 à 80K, il apparaît un changement de signe du signal XMCD pour une température de 119K. Ce phénomène est parfaitement reproductible et compatible avec les résultats obtenus par la cartographie. L'inversion du signe est par conséquent liée à la traversée de la température de compensation. La détermination de celle-ci n'est pas exacte car la descente en température est très rapide, et la diode qui mesure la température est un peu éloignée de l'échantillon. La thermalisation de l'échantillon n'a pas le temps de se faire, ce qui signifie que la température de compensation réelle est supérieure à 119K.

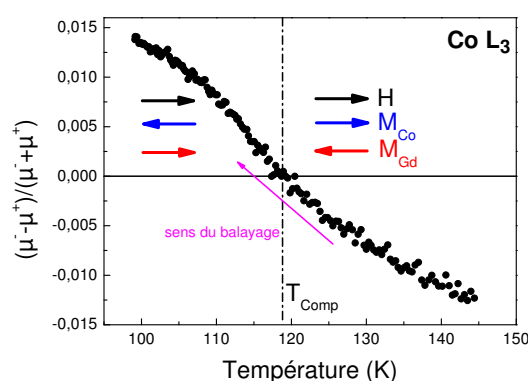


Fig. 6.7 : Signal XMCD en fonction de la température au point P_B de l'échantillon pour une énergie de photon de 778eV (Co L_3).

Montée lente en température En partant de $T=80$ K, les propriétés magnétiques de l'échantillon ont été mesurées en XMCD aux seuils $L_{2,3}$ du cobalt et $M_{4,5}$ du gadolinium, pour plusieurs températures jusqu'à 290K. Pour réaliser des mesures quantitatives, il est nécessaire d'attendre que l'échantillon se thermalise. C'est pourquoi nous avons sélectionné 6 températures caractéristiques. Les spectres XMCD pour une température de 80K et 290K sont présentés figures 6.8 et 6.9, pour les positions P_A et P_B . Les effets de saturation et l'angle de mesure n'ont pas été corrigés pour ces figures. Au point P_A , les spectres ne montrent aucun changement de signe et l'amplitude des signaux est à peu près constante entre 80 et 290K. Au point P_B , un changement de signe est visible entre les deux températures, avec une amplitude constante pour le cobalt, mais une différence importante pour le gadolinium. En effet, le signal XMCD au seuil M_5 à $T=80$ K est 3 fois plus important que le signal à $T=290$ K. Pour les deux positions, le signal du gadolinium est très faible, et toujours couplé antiferromagnétique au cobalt.

Tous les spectres d'absorption aux seuils $L_{2,3}$ du cobalt ont été normalisés en suivant la procédure définie dans la section 2.3 et corrigés des effets de saturation. Ces spectres sont représentés figure 6.11 au point P_A (a) et P_B (b) en fonction de la température. Les

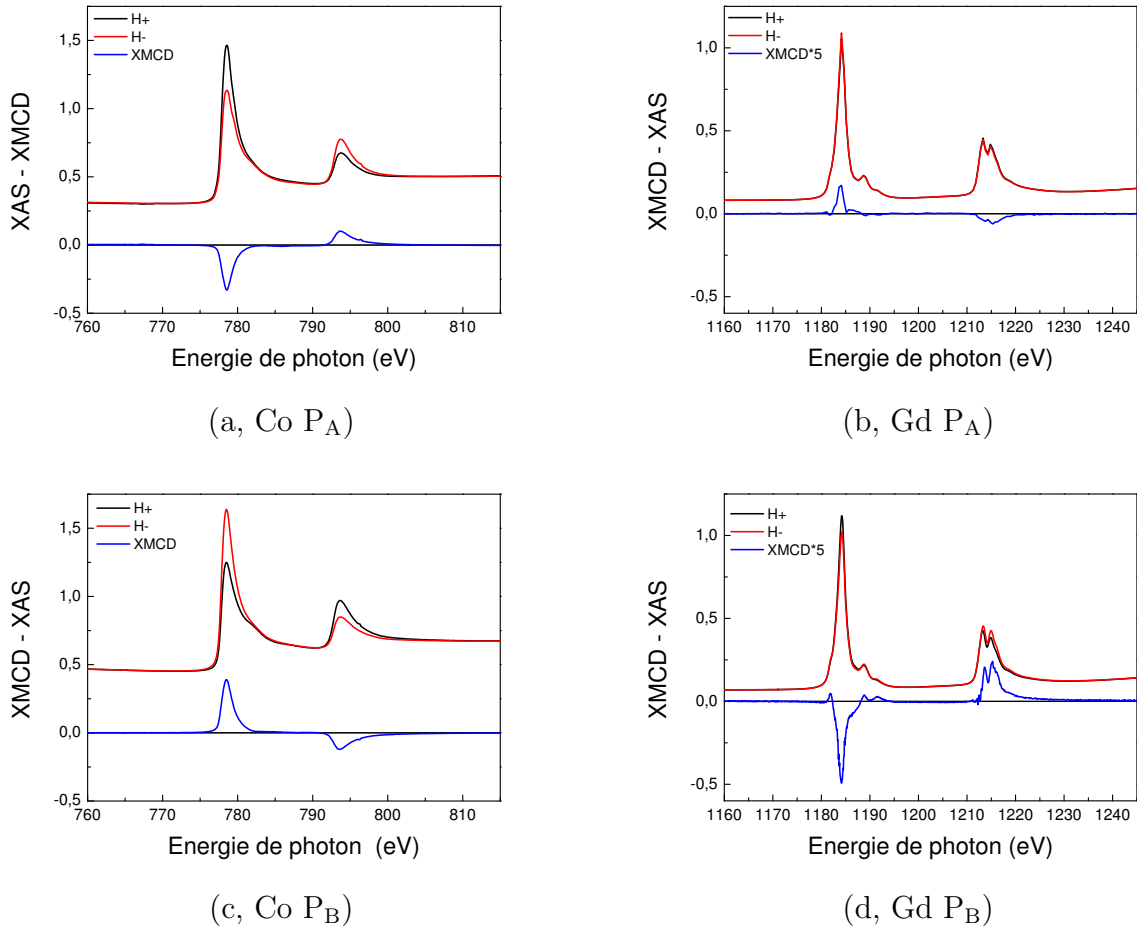


Fig. 6.8 : Spectres d'absorption et de dichroïsme aux seuils $L_{2,3}$ du cobalt et $M_{4,5}$ du gadolinium aux points P_A (a,b) et P_B (c,d) à $T=80K$.

spectres XMCD aux seuils $L_{2,3}$ dans la partie A sont tous du même signe, et d'amplitude qui varie peu en fonction de la température. Dans la partie B le signe du signal XMCD change autour de 160K. Cette inversion s'accompagne d'une diminution de l'amplitude du signal. A $T=290K$, l'amplitude du cobalt dans la partie A et la partie B sont à peu près égales.

L'amplitude du signal XMCD aux seuils L_3 du cobalt et M_5 du gadolinium (multiplié par 5) est représentée sur les figures 6.11 (a) et (b), pour les positions P_A et P_B respectivement.

Au point P_A , les aimantations du cobalt et du gadolinium évoluent peu en température ce qui est en accord avec les calculs de champ moyen. La faiblesse du signal XMCD aux seuils $M_{4,5}$ du gadolinium s'explique par la faible longueur de pénétration des photons pour une énergie proche du seuil M_5 , qui ne permet de sonder que le gadolinium de surface. Il est

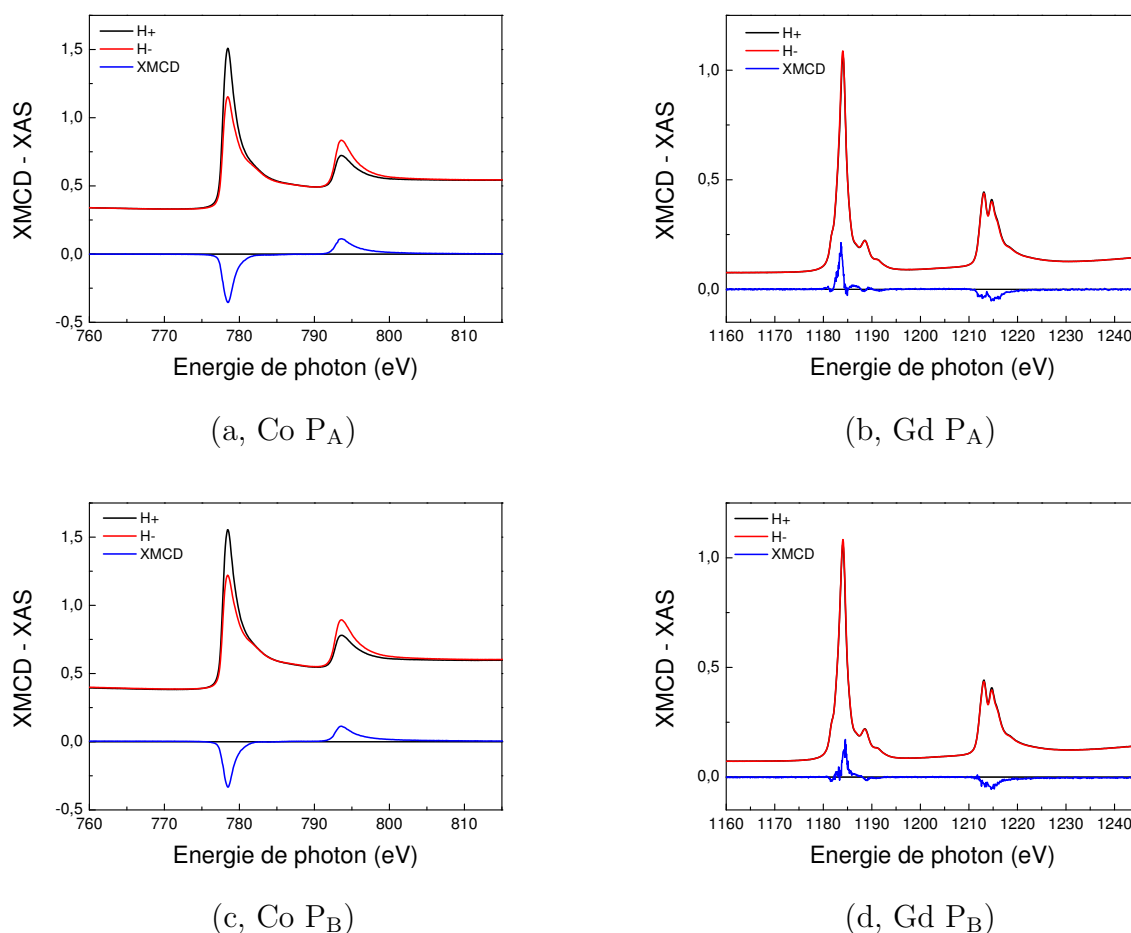


Fig. 6.9 : Spectres d'absorption et de dichroïsme aux seuils $L_{2,3}$ du cobalt et $M_{4,5}$ du gadolinium aux points P_A (a,b) et P_B (c,d) à $T=290K$.

important de rappeler la présence d'une couche de gadolinium ségréguée en surface. Ainsi, seulement une faible fraction du gadolinium du volume du film est détectable. Au point P_B , l'aimantation du cobalt évolue peu en température sauf au voisinage de la compensation magnétique (figure 6.11(b)). Autour de cette compensation magnétique, l'aimantation du cobalt diminue, ce qui peut être expliqué par la réorientation du réseau de cobalt et la traversée de la paroi de compensation devant le faisceau. En comparaison, le signal XMCD du gadolinium est trois fois plus important à 80K qu'à 290K, en contradiction apparente avec les calculs de champ moyen (voir figure 6.4). Ce comportement semble plus proche du comportement du gadolinium pur. Un petit modèle a été développé au paragraphe suivant pour rendre compte du comportement de l'aimantation.

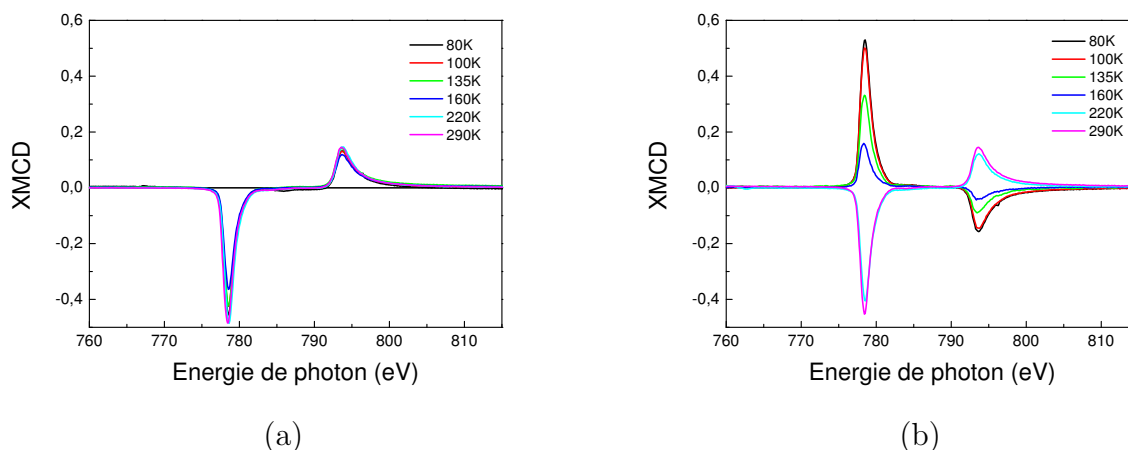


Fig. 6.10 : Spectres XMCD aux seuils $L_{2,3}$ du cobalt en fonction de la température en position PA (a) et PB (b).

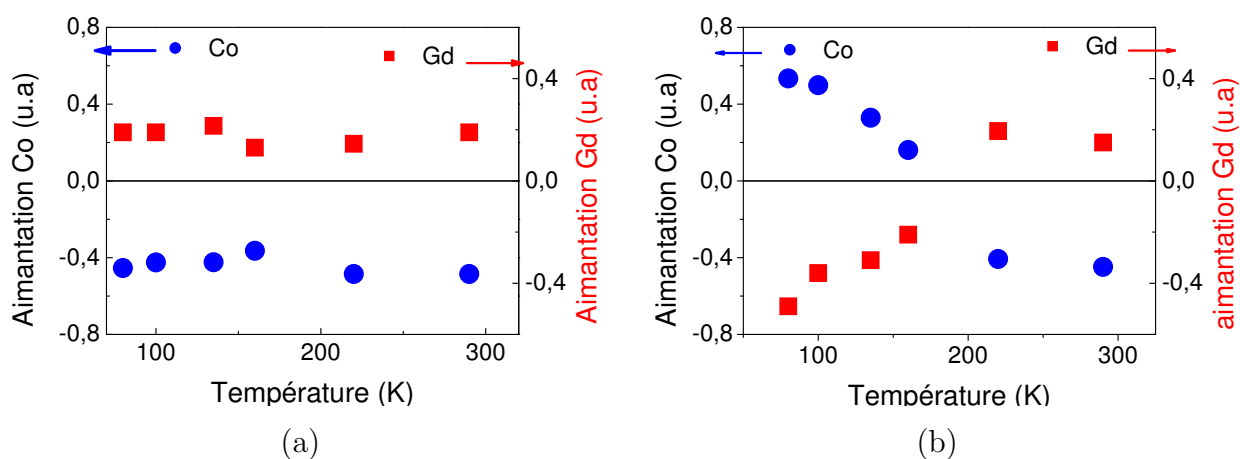


Fig. 6.11 : Evolution de l'aimantation du cobalt et du gadolinium en fonction de la température en position P_A (a) et P_B (b).

6.3.4 Interprétation des signaux XMCD

Le signal au seuil L_3 du cobalt est représentatif du comportement de l'aimantation dans le volume de l'échantillon. Au point P_A l'absence de changement de signe pour le signal XMCD indique que la température de compensation, si elle existe pour cette portion du film, est inférieure à 80K. Nous en déduisons que la composition en cobalt de l'échantillon au point P_A est supérieure à 81%. Pour ajuster le comportement du signal en fonction de la température, nous avons calculé l'aimantation pour un échantillon de composition 82%, représenté en traits pleins sur la figure 6.12(a). Ainsi, pour une température supérieure

à $T=80\text{K}$, nous nous attendons à un signal constant et ferromagnétique pour le moment magnétique des atomes de cobalt et de gadolinium. Pour ajuster le comportement du signal XMCD du cobalt au point P_B , nous avons utilisé une distribution de composition allant de 79.8% à 81% de cobalt et moyenné le moment magnétique résultant en fonction de la température. De cette façon, nous avons pu reproduire l'étalement de la transition en fonction de la température. La comparaison entre les points expérimentaux et la courbe simulée est montrée par la figure 6.12(b). Cet ajustement donne une température de compensation proche de 170K au point P_B , correspondant à une composition moyenne en cobalt de 80.7%. A $T=290\text{K}$, le signal XMCD au seuil L_3 du cobalt est identique au point P_A et P_B , ce qui rejoint l'observation faite au chapitre 5 sur la valeur du moment magnétique du cobalt dans les films.

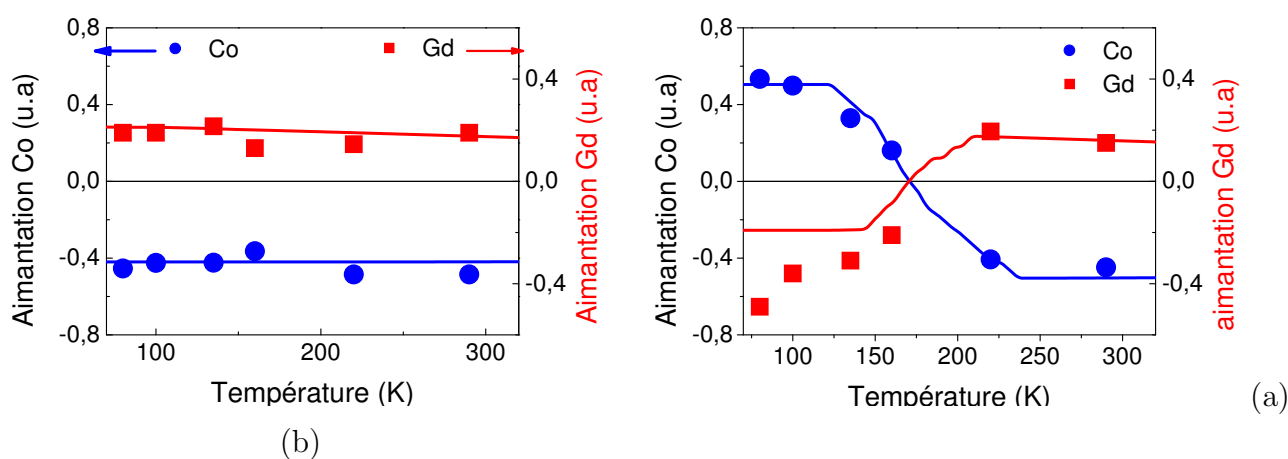


Fig. 6.12 : Signal XMCD en fonction de la température aux points P_A (a) et P_B (b) au seuil L_3 du cobalt (points bleus) et M_5 du gadolinium (points rouges). Les ajustements obtenus par des calculs de champ moyen sont tracés (traits pleins).

Les spectres XMCD réalisés aux seuils $L_{2,3}$ du cobalt et $M_{4,5}$ du gadolinium montrent que le couplage entre ces deux réseaux magnétiques est antiferromagnétique. La figure 6.13 représente les sous réseaux magnétiques de cobalt et de gadolinium dans l'alliage, au point P_A (a) et P_B (b), pour des températures inférieures et supérieures à 170K.

Le comportement du sous réseau de cobalt en fonction de la température est reproduit par des calculs de champ moyen, sous condition de considérer un gradient de composition. Le signal du gadolinium ne peut pas être ajusté par un simple modèle de champ moyen, du fait de la décroissance marquée à basse température au point P_B .

Pour rendre compte du comportement du gadolinium, nous avons émis deux hypothèses : i) le signal XMCD au point P_B provient de 2 sources : le gadolinium de l'alliage en volume et le gadolinium de la couche de surface ; ii) le signal XMCD au point

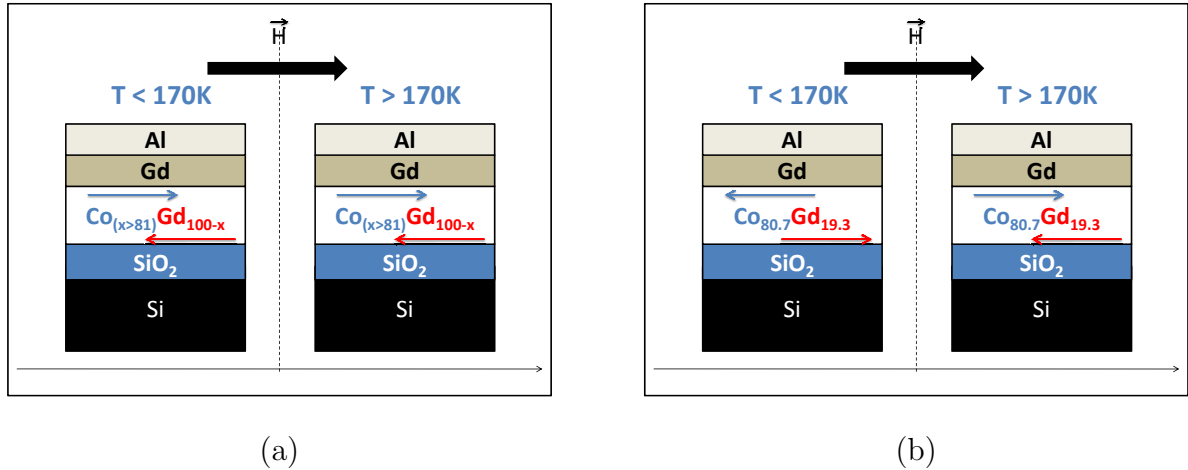


Fig. 6.13 : Illustrations du comportement des sous réseaux magnétiques de cobalt et de gadolinium dans l'alliage au P_A (a) et P_B (b) pour une température inférieure (a, gauche et b, gauche) et supérieure à $T=170\text{K}$ (a, droite et b, droite). La couche de gadolinium ségrégée durant le dépôt est également représentée.

P_A provient uniquement de l'alliage. L'hypothèse ii permet de comprendre en particulier la faible dépendance en température du sous réseau de gadolinium au point P_A . La contribution du gadolinium dans l'alliage au point P_B a été calculée avec le gradient de composition déterminé pour ajuster le comportement du cobalt au point P_B . Le résultat est présenté figure 6.12 (points rouges). Nous avons ensuite soustrait cette courbe au signal total du gadolinium. Ceci a pour effet de mettre en évidence la contribution additionnelle à basse température. Pour ajuster ce comportement à basse température, nous avons simulé le comportement magnétique d'une monocouche de gadolinium en fonction de la température. Dans l'approche en champ moyen, cela revient à fixer la coordination du gadolinium à 6 voisins. Le résultat de ce calcul est représenté figure 6.14, et est comparé à l'évolution en température du signal XMCD au seuil M_5 du gadolinium auquel nous avons soustrait la contribution de l'alliage. La couche de gadolinium de surface ne contribue qu'au deçà de 150K , en accord avec les résultats expérimentaux qui montrent la même amplitude aux points P_A et P_B à haute température. En considérant ces deux contributions, il est possible d'avancer une interprétation expliquant le comportement de l'aimantation du gadolinium, et de spécifier les comportements à basse et haute température.

La faiblesse de ce raisonnement tient dans l'absence d'une contribution magnétique de la couche de gadolinium de surface au point P_A . Des mesures XPS ont montré que la couche de protection d'aluminium n'est pas homogène sur l'échantillon, mais que quelque soit le point sondé, une contribution d'aluminium métallique est détectée au niveau

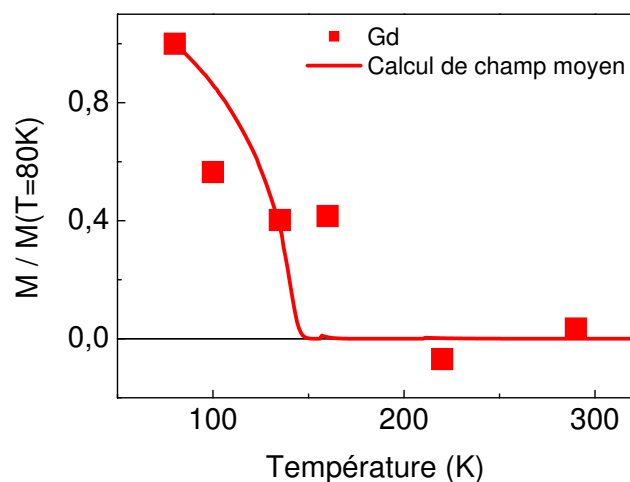


Fig. 6.14 : Signal XMCD en fonction de la température au point P_B au seuil M_5 du gadolinium, auquel la contribution de l'alliage a été retirée. L'ajustement obtenu par des calculs de champ moyen est tracé (traits pleins).

2p. Cette contribution métallique assure que l'échantillon est protégé convenablement. Néanmoins, un bombardement à l'argon a été nécessaire pour retirer une partie de l'aluminium pour les mesures XMCD. On peut imaginer que le bombardement est inhomogène, et qu'une quantité d'aluminium plus importante a été retirée au point P_A , ce qui a entraîné une oxydation de la couche de gadolinium de surface, alors que cette dernière est préservée au point P_B . Le seul indice pouvant étayer cette hypothèse est la hauteur du fond des spectres d'absorption, qui est plus élevée au point P_B qu'au point P_A , ce qui peut être interprété comme une différence dans l'épaisseur de la couche de protection.

6.3.5 Mesure des cycles d'hystérésis par XMCD

Les cycles d'hystérésis ont été mesurés par XMCD en fonction du temps. Le champ coercitif déduit est représenté figure 6.16 pour les positions P_A (a) et P_B (b). L'énergie des photons est fixée sur le seuil d'absorption L_3 du cobalt, qui donne le maximum de contraste en XMCD. Le champ est balayé de 0 à 200 Oe par impulsions de 500 ms, suffisantes pour saturer l'échantillon. Les cycles d'hystérésis mesurés sont représentés figure 6.15 en P_A et en P_B pour trois températures, 80, 160K et 290K. Au point P_A le champ coercitif diminue quand la température augmente, alors que dans la partie P_B , le champ coercitif augmente quand la température passe de 80 à 160K puis diminue. La décroissance du champ coercitif dans la partie A confirme que la température de compensation dans cette partie de l'échantillon est inférieure à 80K, mais probablement proche. Le champ coercitif

dans la partie B atteint un maximum pour température autour de 170K.

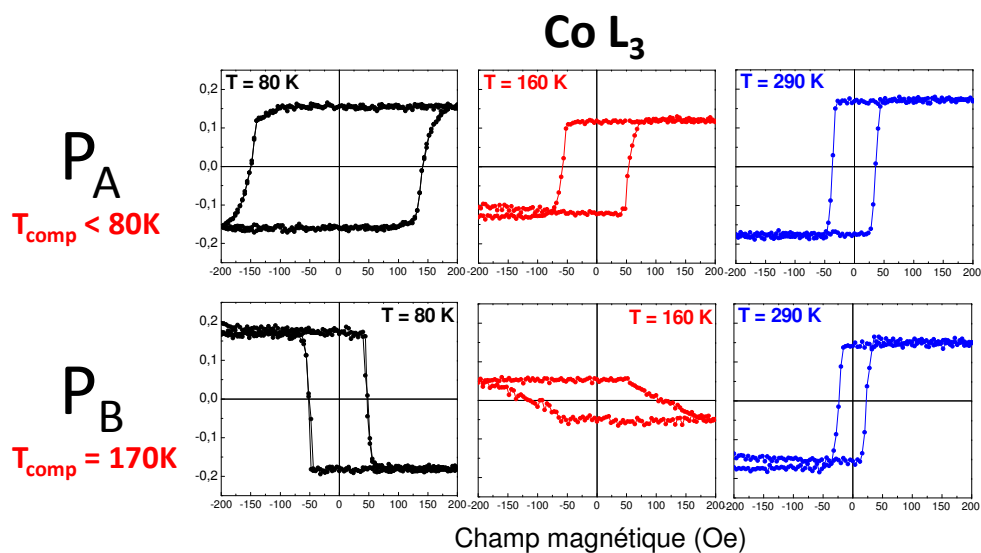


Fig. 6.15 : Cycles d'hystérésis mesuré par XMCD au seuil L_3 du cobalt en position A (haut) et position B (bas) pour $T=80\text{K}$ (noir), $T=160\text{K}$ (rouge) et $T=290\text{K}$ (bleu).

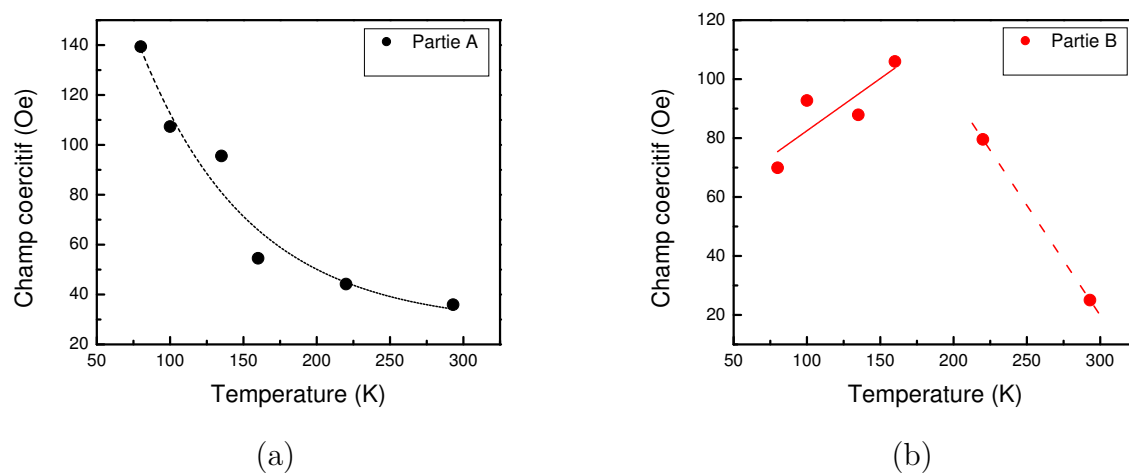


Fig. 6.16 : Champ coercitif en fonction de la température pour les points P_A (a) et P_B (b). Les traits pointillés ne sont que des guides pour les yeux.

Le comportement du champ coercitif en fonction de la température est la signature caractéristique de la compensation magnétique. Des cycles d'hystérésis ont été mesurés au seuil M_5 du gadolinium, mais l'amplitude très faible du signal rend le spectre très bruyeux. Néanmoins, pour une température de 80K au point P_B , le signal du gadolinium atteint un maximum, ce qui nous a permis de mesurer un spectre exploitable. Il est présenté figure 6.17, accompagné du cycle d'hystérésis du cobalt, mesuré au point P_B à 80K. Cette figure

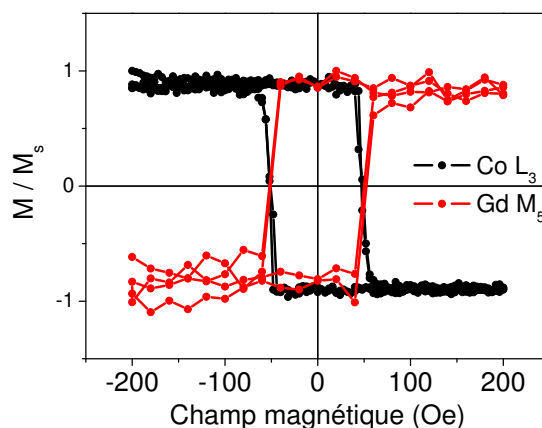


Fig. 6.17 : Cycles d'hystérésis mesuré par XMCD au seuil L_3 du cobalt (noir) et au seuil M_5 du gadolinium (rouge) à $T=80K$.

montre que la valeur du champ coercitif est la même pour le cobalt et le gadolinium, et vient renforcer le modèle proposé au paragraphe précédent.

6.4 Conclusion

Dans ce chapitre, les propriétés magnétiques d'un échantillon présentant un gradient latéral de composition ont été étudiées en fonction de la température. L'échantillon présente une paroi de compensation à température ambiante. Nous avons étudié le comportement des sous réseaux magnétiques autour de la température de compensation, qui est de 170K dans la partie de l'échantillon sondée, avec une distribution de composition de 1 %. Grâce à des calculs de champ moyen, nous avons pu reproduire les propriétés magnétiques mesurées par XMCD en fonction de la température. Enfin, le dichroïsme magnétique circulaire a été utilisé pour déterminer l'évolution du cycle d'hystérésis en fonction de la température. Nous avons mis en évidence la possibilité de fabriquer des échantillons avec les propriétés magnétiques nécessaires pour des mesures pompes-sondes prévues lors de l'installation du montage optique sur TEMPO.

Récapitulatif des résultats obtenus sur les alliages CoGd

Dans les chapitres 4, 5 et 6 j'ai présenté les résultats de mon activité sur l'étude des propriétés structurales et magnétiques des couches d'alliages CoGd déposés par co-évaporation à Soleil. Je pense avoir obtenu une caractérisation complète des couches déposées et maîtriser leur préparation et prévoir leur comportement. C'était le passage indispensable pour espérer comprendre par la suite les détails des phénomènes dynamiques qui ont motivé mon travail. La caractérisation visait initialement la définition de la composition et de la structure. Les expériences de RBS nous ont permis d'affiner le contrôle des concentrations en calibrant les valeurs de vitesse de dépôt obtenues avec la balance à quartz. Les expériences d'EXAFS effectuées sur SAMBA ont indiqué sans ambiguïté que les couches déposées à température ambiante sont complètement amorphes. Les propriétés magnétiques mesurées sur les mêmes séries d'échantillons nous ont indiqué que le paramètre fondamental dans la préparation des couches est le niveau du vide dans la chambre de dépôt pendant la croissance. Les mesures d'EXAFS ont montré que un atome d'oxygène se trouve dans l'environnement de chaque atome de gadolinium, malgré un vide inférieur à 5×10^{-10} mbar lors de la croissance mais la caractérisation magnétique effectuée par la suite indique que ce niveau de contamination est acceptable : les moments magnétiques du cobalt et du gadolinium sont les valeurs maximum que l'on peut attendre dans ces alliages. En particulier, le cobalt ne montre aucun signe de contamination par l'oxygène durant le dépôt dans les gammes de pressions suscitées. En exploitant la sensibilité à la surface de la technique de photoémission par des expériences réalisées sur des échantillons déposés "in-situ" j'ai suivi la passivation des couches par l'oxygène. Dans un vide de moins de 1×10^{-9} mbar, on atteint une saturation dans le processus avec un épaisseur oxydé de 8 \AA , sur un temps d'à peu près 6 heures. Quelque soit le vide de la chambre, on observe la ségrégation d'une couche de gadolinium à la surface de l'échantillon, même à température ambiante. Le taux de gadolinium ségrégué en surface à température ambiante est de 0.15 \AA/h . Ces résultats nous ont permis de déterminer les paramètres essentiels de la croissance et l'influence des couches de protection. A la fin de croissance, quel que soit la composition de l'alliage, une couche de gadolinium de 5 \AA est ségréguée à la surface de l'échantillon. Un bombardement par des ions argon permet de retirer cette couche, et les mesures XPS montrent que l'échantillon en volume a la composition attendue.

En termes de caractérisation nous nous sommes intéressés aussi à la stabilité des couches à haute température. Un échantillon protégé par une couche d'alumine, résiste à un chauffage de 350°C . Au delà de cette température on observe la diffusion des atomes d'aluminium dans l'alliage. Ce point est important puisqu'il conditionne tout processus de nanostructuration par lithographie.

L'utilisation de l'effet Kerr magnéto optique et de l'XMCD nous a donné une vision complète des propriétés magnétiques des alliages amorphes CoGd déposés par évaporation. Les alliages possèdent une anisotropie uniaxiale dans le plan, avec des champs d'anisotropies élevés (entre 2 et 9 kOe) en bon accord avec la littérature, pour passer de la direction de facile aimantation dans le plan à la direction difficile hors du plan. Dans l'état désaimanté, les couches mesurées en microscopie PEEM présentent une structure en domaines avec des tailles de l'ordre de $20\mu\text{m}$. L'XMCD nous a montré que le moment magnétique des atomes de cobalt dans les alliages est le même que dans le cobalt massif ($1.68\mu_B$) et que les atomes de gadolinium dans les alliages possèdent un moment magnétique important à température ambiante, $6.7\mu_B$, proche du moment magnétique calculé T=2K ($7\mu_B$). Les calculs de champ moyen que j'ai effectué avec l'approximation de Newton ont confirmé ces observations et donnent les mêmes valeurs à T=300 K pour un échantillon de composition $\text{Co}_{87}\text{Gd}_{13}$.

J'ai finalement étudié une couche CoGd présentant un gradient latéral de composition en fonction de la température. Dans l'une des zones, les mesures de XMCD aux seuils du cobalt et du gadolinium nous ont permis de suivre les propriétés magnétiques du Co et du Gd pendant le passage à travers la température de compensation. Les cycles d'hystérésis en fonction de la température ainsi que les spectres XMCD ont permis d'extraire la dépendance en température des sous réseaux magnétiques. Un calcul de champ moyen permet de reproduire nos résultats. Nous avons pu déduire de la valeur de la température de compensation que la composition de la zone est de 80.7% dans la partie sondée, avec une distribution en composition allant de 79.8 à 81% de cobalt. Les propriétés statiques des couches sont actuellement bien maîtrisées, nous sommes prêts pour les études de dynamique de l'aimantation sous impulsions laser et le suivi des modifications induites dans la structure électronique pendant les excitations laser.

Chapitre 7

Transition de ré-orientation de spin dans un film ultraminces irradiés par des ions hélium

L'étude des transitions de phases dans les systèmes bidimensionnels frustrés est un domaine riche de la physique moderne. Le terme frustré signifie qu'il y a compétition entre plusieurs termes d'énergie conduisant chacun à des états d'équilibres antagonistes. Les travaux pionniers dans ce domaine sont dus à Nelson et Halperin [111, 112], dans lesquels ils ont étudié la transition smectique-nématique vers la phase isotrope dans les cristaux liquides 2D, en introduisant la notion de fusion 2D. Depuis plusieurs travaux, aussi bien théoriques [113] qu'expérimentaux [66, 65, 114, 115] ont permis de conduire à des modèles permettant de décrire le diagramme des phases des nombreux systèmes étudiés, notamment dans film magnétiques bidimensionnels [67]. L'aspect dynamique de ces transitions 2D n'a attiré l'attention que très récemment [116], ce qui explique l'absence de théorie dynamique satisfaisante. Durant ma thèse, nous avons étudié la transition de réorientation de spin dans des systèmes magnétiques 2D sur une large gamme de température afin de construire un diagramme des phases magnétiques complet. Nous avons également prêté une grande attention au régime de fluctuations qui apparaît au voisinage de la température de réorientation. Cette dernière étude est une étape essentielle vers le développement d'un modèle dynamique de la transition de réorientation de spin.

Le système Pt/Co/Pt à anisotropie perpendiculaire peut-être considéré comme un matériau Ising 2D modèle pour l'étude de la dynamique d'aimantation. Préparés par pulvérisation cathodique en ultravide, ces films sont de très bonne qualité. Ils sont caractérisés par un nombre réduit de défauts extrinsèques qui conduisent à l'absence de centres de piégeage forts et à un taux de nucléation de domaines magnétiques faible. La maîtrise des conditions de dépôt permet donc un contrôle fin des propriétés magnétiques [117]. Ces échantillons Pt/Co/Pt constituent un système idéal pour l'étude de la transition de réorientation de spin. La première partie de ce chapitre sera consacrée à l'étude des propriétés magnétiques d'un échantillon Pt/Co(5Å)/Pt irradié par des ions hélium en fonction de la température. On mettra en évidence une réorientation thermique de l'aimantation. La deuxième partie de ce chapitre détaillera le protocole expérimental et l'observation des domaines magnétiques au voisinage de la température de réorientation de l'aimantation. Nous montrerons que l'on stabilise une structure magnétique périodique à basse température qui disparaît à la transition de réorientation ; on introduira alors la notion de fusion à deux dimensions. La troisième partie sera dédiée à l'élaboration d'un modèle permettant de décrire le diagramme des phases magnétiques accompagnant le processus de réorientation. Enfin, l'étude du régime de fluctuations autour de la température de fusion sera traitée dans la dernière partie.

7.1 Propriétés magnétiques d'un échantillon Pt/Co(5Å)/Pt irradié uniformément par des ions hélium

7.1.1 Sur le choix de l'échantillon

Dans les films ultraminces Pt/Co/Pt, la compétition entre l'énergie dipolaire Ω qui favorise une aimantation dans le plan, l'anisotropie magnéto-cristalline perpendiculaire K_u et l'interaction d'échange A , conduit à un diagramme de phases magnétiques très riche en fonction de la température. En particulier, en augmentant la température, la diminution plus rapide de l'anisotropie perpendiculaire (PMA) par rapport aux autres interactions induit une transition de réorientation de spin (SRT) de perpendiculaire à planaire. Cette transition est contrôlée par le facteur de qualité Q , défini comme le rapport entre la constante d'anisotropie et l'énergie dipolaire (voir section 1.3). Si Q est supérieur à 1, l'axe de facile d'aimantation se trouve hors du plan du film et si Q est inférieur à 1, l'aimantation bascule dans le plan. L'idéal pour étudier la SRT est de disposer d'un échantillon pour lequel $Q=1$ dans la gamme de température accessible sur nos bancs de microscopie Kerr. Dans le cas d'un film Pt/Co(5Å)/Pt vierge la constante d'anisotropie uni axiale, K_u , est égale à $1.57 \times 10^7 \text{erg/cm}^3$ à 300 K [64]. L'aimantation à saturation est de l'ordre de 1400 Oe, soit une énergie dipolaire de l'ordre de $1.3 \times 10^7 \text{erg/cm}^3$ à 300K. Le facteur de qualité de cet échantillon vierge est alors de l'ordre de 1.3. L'une des caractéristiques de l'irradiation par des ions hélium est de diminuer la constante d'anisotropie uni axiale. La figure 7.1 présente les cycles d'hystérésis mesurés à $T=280\text{K}$ par magnétométrie Kerr en configuration polaire (PMOKE) d'un échantillon Pt/Co(5Å)/Pt selon la dose d'irradiation. Pour une dose d'irradiation inférieure à $9 \times 10^{15} \text{He/cm}^2$, le cycle est carré avec une aimantation non nulle à la rémanence. La constante d'anisotropie et l'énergie d'échange sont suffisamment grandes par rapport à l'énergie dipolaire pour stabiliser l'état d'aimantation perpendiculaire uniforme à la rémanence. Pour une dose égale à 10^{16}He/cm^2 , l'aimantation à la rémanence est nulle, mais un faible champ magnétique perpendiculaire (<10 Oe) suffit à restaurer une aimantation hors du plan. Ce comportement est attendu pour des systèmes magnétiques dans lesquels la constante d'anisotropie est suffisante pour conserver une anisotropie perpendiculaire comparable à l'énergie dipolaire. L'état d'aimantation uniforme favorable pour minimiser l'échange et l'anisotropie est déstabilisée par l'énergie dipolaire et l'on s'attend à la formation de domaines magnétiques. L'énergie dipolaire est ainsi diminuée (voir section 1.1), mais on paye l'énergie de formation de paroi. On a choisit d'étudier le film irradié par une dose de 10^{16}He/cm^2 qui présente un cycle incliné fermé (caractéristique de la formation de

domaines alternés en rubans) et une anisotropie très faiblement perpendiculaire. Son facteur de qualité à $T=280\text{K}$ est toujours légèrement supérieur à 1. Cet échantillon est donc le système idéal pour étudier la transition de réorientation de spin au voisinage de la température ambiante.

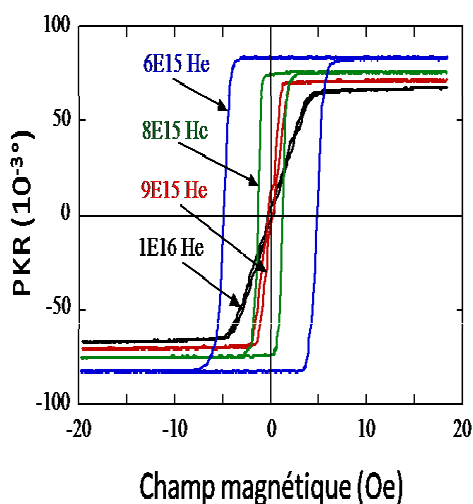


Fig. 7.1 : Cycles d'hystérésis PMOKE mesurés par PKR (Polar Kerr Rotation) de Pt/Co(5Å)/Pt à $T=280\text{K}$ en fonction de la dose d'irradiation en ions hélium.

7.1.2 Mise en évidence de la transition de réorientation de spin (SRT) par magnétométrie Kerr

7.1.2.1 Cycles d'hystérésis sous faible champ

La magnétométrie Kerr en configuration polaire (PMOKE) est idéale pour mettre en évidence de la transition de réorientation de spin dans l'échantillon Pt/Co(5Å)/Pt irradié par une dose de $10^{16}\text{He}/\text{cm}^2$. Les cycles d'hystérésis mesurés par PMOKE dans une gamme de température s'étendant de 250 à 327K sont présentés figure 7.2. En fonction de la température, plusieurs comportements peuvent être extraits de ces cycles :

- Pour $T \leq 275\text{K}$, le cycle d'hystérésis est très ouvert, avec une aimantation non nulle à la rémanence. Dans cette gamme de température, l'échange et l'anisotropie sont assez forts pour stabiliser un état uniformément aimanté en champ nul. La diminution du champ coercitif lorsque l'on augmente la température est une conséquence de la diminution de l'anisotropie : la barrière d'énergie pour nucléer un domaine est de plus en plus faible.

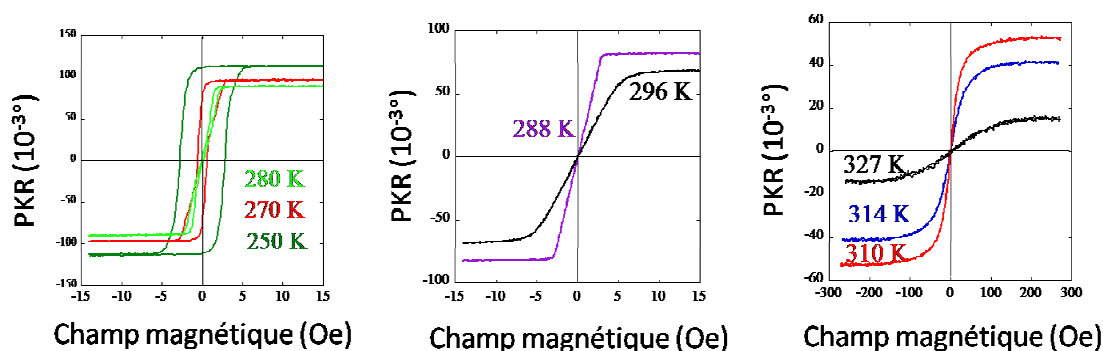


Fig. 7.2 : Cycles d'hystérésis PMOKE mesurés par PKR (Polar Kerr Rotation) pour plusieurs températures. Il est important de noter la gamme de champ magnétique et les valeurs de rotation Kerr.

- Pour $280\text{K} < T < 290\text{K}$, Le champ coercitif ainsi que l'aimantation rémanente sont nuls, mais un très faible champ magnétique suffit à restaurer un état saturé. Ce comportement est caractéristique de la formation d'une structure en domaines magnétiques à aimantation perpendiculaire [118].
- Pour $290\text{K} < T < 320\text{K}$, l'aimantation augmente assez fortement sous champ magnétique en champ très faible. Par contre le cycle s'arrondit assez rapidement à plus fort champ et devient réversible.
- Pour $T > 320\text{K}$, le cycle devient caractéristique d'un axe d'aimantation difficile hors du plan.

Ces premières mesures mettent déjà en évidence la présence d'une SRT, s'étalant sur une large gamme de température, entre une aimantation perpendiculaire lorsque $T < 270\text{K}$ et planaire dès que $T > 320\text{K}$. Pour préciser la nature de cette transition des mesures complémentaires sont nécessaires. L'étude de la relaxation de l'aimantation sous champ permet de nous assurer que l'on travaille sur des états à l'équilibre.

7.1.2.2 Relaxation de l'aimantation

La relaxation (trainage) de l'aimantation a été enregistrée pour plusieurs température (figure 7.3). Dans ces expériences, un champ magnétique perpendiculaire supérieur au champ de saturation est d'abord appliqué puis est brusquement coupé. Après coupure du champ à $t=0$, la composante perpendiculaire de l'aimantation est mesurée en fonction du temps par PMOKE.

Le temps caractéristique de relaxation de l'aimantation est lié au passage de l'état uniformément aimanté sous champ vers un état en domaines magnétiques en champ nul [65]. Ce temps caractéristique dépend fortement de la température, ce qui signifie que ce

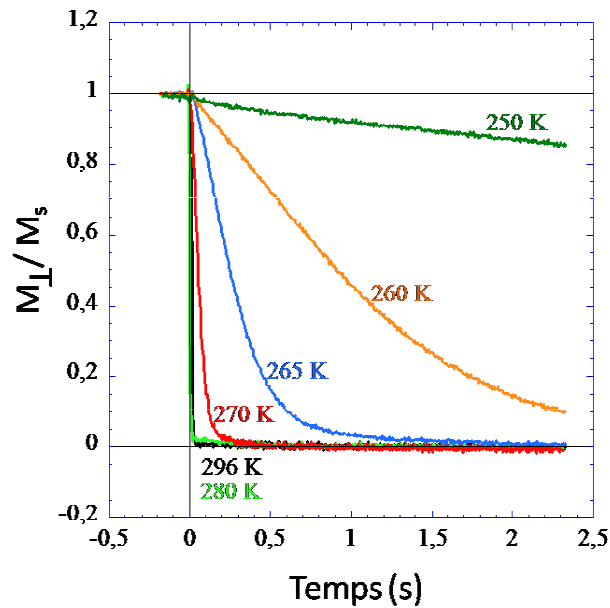


Fig. 7.3 : Relaxation de l'aimantation en fonction du temps à plusieurs températures.

phénomène est thermiquement activé. A $T=250\text{K}$, l'aimantation évolue lentement vers l'état d'équilibre avec un temps caractéristique supérieur au temps d'acquisition du cycle d'hystérésis. Cela explique la valeur non nulle de l'aimantation à la rémanence. Quand la température approche 280K , la barrière d'énergie devient très faible du fait de la diminution de l'anisotropie, favorisant une relaxation plus rapide. A plus haute température ($T=295\text{K}$), la relaxation vers l'état désaimanté devient très rapide (voir figure 7.3).

Des mesures de la relaxation de l'aimantation sous champ ont aussi été réalisées. En partant de l'état uniformément aimanté, le champ magnétique n'est pas coupé mais ramené à une valeur inférieure au champ de saturation. L'évolution de l'aimantation en fonction de la valeur du champ résiduel appliqué (figure 7.4(a)) montre qu'à 296K , un faible champ suffit à restaurer très rapidement une composante perpendiculaire de l'aimantation. Maintenant, en appliquant un champ magnétique en partant de l'état désaimanté (figure 7.4(b)), la saturation est aussi restaurée assez rapidement pour des champs très faible. Ces résultats sont en accords avec une structure en domaines dans lesquels l'aimantation s'aligne suivant la direction perpendiculaire au plan de la couche.

Ces mesures de relaxation montrent que l'état d'aimantation uniforme n'est pas un état d'équilibre à champ nul dans cette gamme de température. Par conséquent l'allure des cycles de la figure 7.2 ne peut être utilisée pour déterminer les limites exactes de la transition de réorientation. Par contre, le moindre champ magnétique appliqué perpendiculairement à la couche stabilise l'état d'aimantation uniforme pour des températures $T < 325\text{K}$.

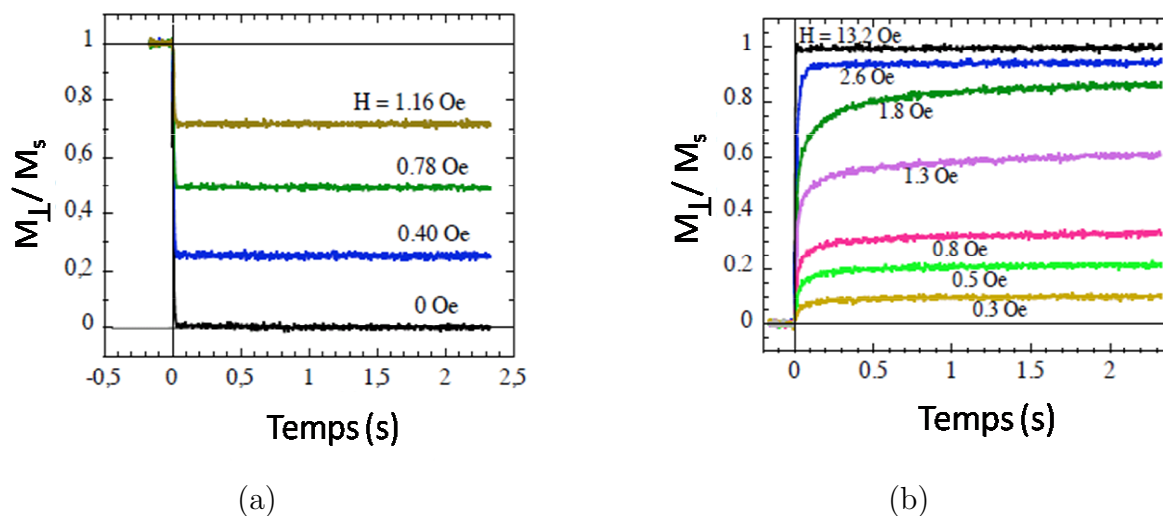


Fig. 7.4 : Courbe de relaxation sous champ à $T=296\text{K}$ (a) et dynamique sous champ magnétique sur l'état désaimanté à $T=270\text{K}$ (b).

7.1.2.3 Cycles d'hystérésis sous fort champ

La gamme de champ magnétique utilisée pour décrire les cycles de la figure 7.2 est très limitée. Des mesures d'aimantation par PMOKE ont été réalisées sous champ magnétique plus intense, toujours appliqués perpendiculairement à la surface de l'échantillon (voir figure 7.5). A basse température ($T < 325 \pm 5\text{K}$), les courbes d'aimantation présentent deux parties distinctes. A bas champ, la composante perpendiculaire augmente jusqu'à atteindre une pseudo-saturation. Puis à plus fort champ, la composante d'aimantation perpendiculaire continue à augmenter mais moins rapidement. La saturation complète de l'échantillon n'intervient qu'à des champs magnétiques élevés. Lorsque l'aimantation présente un saut à bas champ, on distinguera l'aimantation à saturation M_s obtenue à fort champ, de la pseudo-saturation à l'équilibre M_{\perp}^{lf} (lf pour low field) pour des champs magnétiques faibles.

Ces deux régimes peuvent être interprétés comme la signature de deux composantes d'aimantation perpendiculaire et planaire au dessous de la température de fin de SRT, estimée grossièrement à ($T = 325 \pm 5\text{K}$).

7.1.2.4 Variation thermique de l'anisotropie uni axiale

Il est possible de déterminer la valeur des constantes d'anisotropie à partir de mesures de magnétométrie Kerr [58]. La configuration expérimentale est la suivante : un champ magnétique est appliqué dans une direction proche du plan de l'échantillon (par

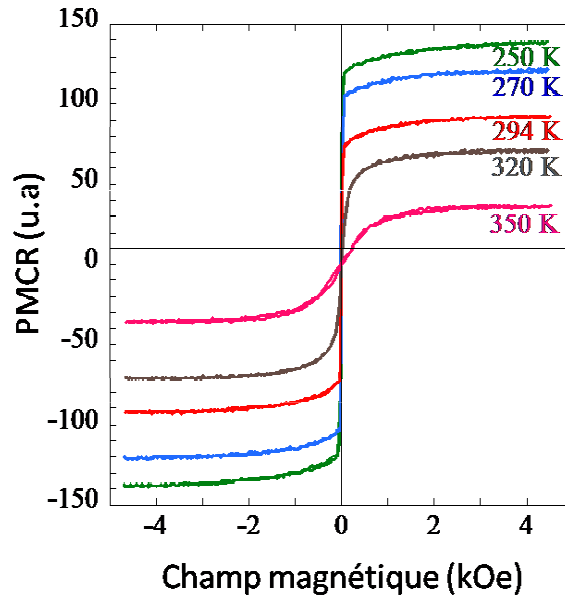


Fig. 7.5 : Courbes d'aimantation en champ fort mesurées par PMOKE (PMCR : Polar Magnetic Circular Rotation) à différentes températures.

exemple avec un angle $\alpha = 10^\circ$) et la composante perpendiculaire de l'aimantation est mesurée par PMOKE. L'angle entre le champ et le plan permet d'établir un état d'aimantation uniforme même pour une faible valeur de champ. Cette configuration permet de déterminer le champ d'anisotropie effectif (H_{eff}^A) ainsi que la constante d'anisotropie effective, K_{eff} , grâce à la relation $K_{\text{eff}} = \frac{H_{\text{eff}}^A M_s}{2}$. Les courbes d'aimantation sous champ incliné sont représentées sur la figure 7.6 pour plusieurs températures, allant de 280 à 340K. La configuration magnétique de l'échantillon à $T=280\text{K}$ aux points A, B et C est également schématisée sur cette figure. Pour $T < 325 \mp 5\text{K}$, l'état magnétique en champ nul est constitué de domaines en partie aimantés perpendiculairement. L'application d'un faible champ magnétique permettra d'atteindre rapidement une pseudo-saturation de l'aimantation. Puis le champ va progressivement réorienter l'aimantation suivant sa direction, jusqu'à atteindre la saturation. La composante de l'aimantation perpendiculaire M_s^\perp , mesurée en effet Kerr sous fort champ permet de remonter à la valeur de l'aimantation à saturation, suivant la relation $M_s = \frac{M_s^\perp}{\sin(\alpha)}$ (voir figure 7.7). Le comportement et l'allure des courbes d'aimantation obtenues sont cohérents avec les cycles réalisés précédemment en configuration polaire, avec jusqu'à 296K, une rapide saturation hors du plan pour une faible valeur de champ magnétique, puis au delà de T_F on observe la signature d'une aimantation purement planaire, où la courbe d'aimantation sous champ croît de manière monotone sans présenter de maximum.

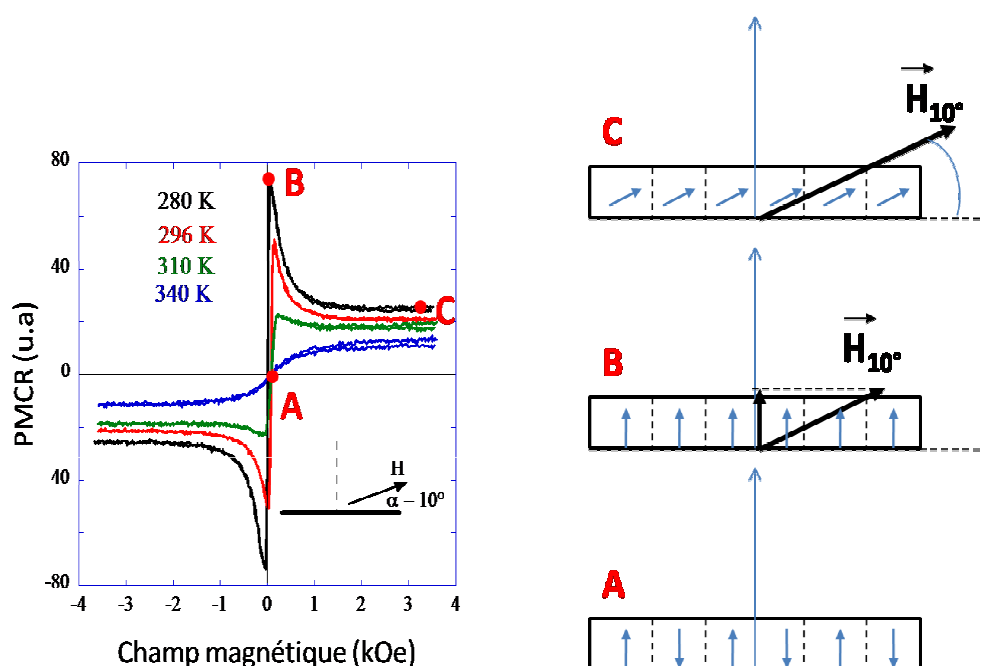


Fig. 7.6 : Courbes d'aimantation mesurées par PMOKE (PKR) en présence d'un champ magnétique appliqué à un angle de 10° du plan de l'échantillon. A droite, la figure schématise un comportement simple des domaines magnétiques sous champ.

7.1.2.5 Premières conclusions sur la nature de la SRT

Le résultat des précédentes mesures magnétométrie Kerr peuvent être résumées sur la figure 7.7. On a représenté la variation thermique de l'aimantation rémanente M_{\perp}^{rem} au temps $t=0.1\text{sec}$ (voir figure 7.3) ainsi que l'aimantation à saturation, M_s , obtenue à champ fort. L'aimantation rémanente s'extrapole ici à zéro pour une température de 273K qui est beaucoup plus faible que la température $T_c=410\text{K}$, déterminée par l'annulation de M_s sous un champ magnétique de 400 Oe.

Les courbes d'aimantation sous fort champ (voir figure 7.5) ont montré l'existence d'une composante planaire, et ceci quelque soit la température explorée. Pour expliquer le résultat, on tient compte du fait que l'irradiation ionique augmente la rugosité et provoque une certaine ségrégation de l'alliage Co-Pt formé, ce qui conduit à une structure inhomogène, et par conséquent à une distribution locale d'anisotropie. On obtient ainsi un mélange de nano-domaines structuraux magnétiques planaires (où l'anisotropie est trop faible pour contrecarrer l'énergie dipolaire) et perpendiculaires quelque soit la température. L'évolution thermique du rapport entre l'aimantation pseudo-saturée sous faible champ (M_{\perp}^{lf}) mesurée par PMOKE et l'aimantation à saturation (M_s) est donnée en figure 7.8. Ce rapport est quasi constant et égal à 0.86 entre 250 et environ

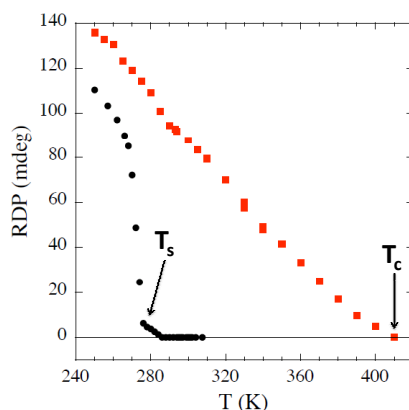


Fig. 7.7 : Aimantation rémanente perpendiculaire (points noirs) et aimantation à saturation (points rouges) en fonction de la température obtenues à partir d'une mesure PMOKE (RDP : Réflexion différentielle polaire).

273K, signifiant que les nanodomains magnétiques planaires sont présents même à basse température. Au delà de 273K, $\frac{M_{\perp}^{\text{lf}}}{M_s}$ diminue progressivement puis rapidement pour s'an-nuler à $T_F = 325 \pm 5\text{K}$, quand l'aimantation devient planaire à champ nul. La figure 7.8 permet d'estimer $T_S = 273 \pm 3\text{K}$ comme température marquant le début de la transition.

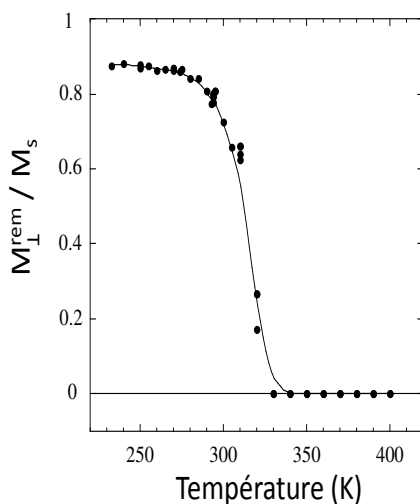


Fig. 7.8 : Valeur de $M_{\perp}^{\text{lf}}/M_s$ en fonction de la température.

Les mesures de magnétométrie Kerr en configuration polaire ont permis de mettre en évidence la présence d'une transition de réorientation de spin qui débute à $T_S = 273 \pm 3\text{K}$ et se termine à $T_F = 325 \pm 5\text{K}$, bien en deçà de la température de Curie (de l'ordre de 340K). La figure 7.5 montre que même à basse température, une composante planaire de l'aimantation subsiste. Une étude détaillée de l'évolution en domaines magnétiques en rubans en

fonction de la température est alors nécessaire pour préciser la nature topologique de la transition.

7.2 Observation des domaines magnétiques

7.2.1 Protocole expérimental

La microscopie Kerr en configuration polaire permet d'imager la structure des domaines magnétiques. Le banc optique utilisé dans cette étude est décrit section 3.3. Pour obtenir une image de l'état désaimanté, l'échantillon est d'abord saturé sous un champ magnétique de valeur largement supérieure au champ de pseudo-saturation. Une première image acquise sous ce champ sera notée image de référence (ou image saturée). L'échantillon subit ensuite une désaimantation sous un champ magnétique oscillant entre $+H$ et $-H$, en partant d'un champ supérieur à la pseudo-saturation jusqu'à 0. Une deuxième image est acquise. Le délai entre la prise de l'image dans l'état désaimanté et la fin de la désaimantation est supérieure au temps de relaxation (voir figure 7.3). L'image de la structure en domaines est alors obtenue par différence des deux images précédentes. On peut accumuler ces images pour améliorer leur contraste.

7.2.2 Dépendance de la structure en domaines magnétiques en fonction de la température

La présence de domaines magnétiques dans l'échantillon Pt/Co(5Å)/Pt irradié par des ions He⁺ a été observée pour des températures comprises entre 260 et 292K (figure 7.9). Les domaines magnétiques d'aimantations opposées présentent une structure labyrinthe en rubans, isotrope dans le plan. Cette topologie isotrope des rubans est en accord avec la structure polycristalline de l'échantillon et l'isotropie du substrat. Le film Pt/Co(5Å)/Pt irradié à faible dose par des ions He⁺ présente un très faible nombre de centres de piégeages, permettant d'expliquer la non reproductibilité de la position des rubans pour des expériences successives dans des conditions identiques. L'image à $T = 267.7\text{K}$ montre des domaines magnétiques bien contrastés, sans structure fine interne. La taille des nanodomains possédant une aimantation planaire qui sont supposés exister à l'intérieur des rubans est donc inférieure à la résolution du microscope Kerr ($\approx 0.5\mu\text{m}$). Des mesures en MFM, trop peu sensibles, n'ont pas permis de révéler de tels nanodomains. Une perte de contraste commence à apparaître à $T = 273\text{K}$, dues à des fluctuations spatiales très localisées. La taille des zones fluctuantes augmente avec la température jusqu'à effacer complètement les rubans magnétiques au dessus de $T_m = 292\text{K}$. Ce phénomène peut être décrit par la fusion 2D, T_m étant alors la température de fusion. La fusion à 2D

correspond à la transition entre un état de basse symétrie (ici les rubans) à un système de haute symétrie (l'état homogène). L'étude de la fusion à 2D, ainsi que l'origine du régime de fluctuations sera l'objet de la dernière section de ce chapitre. Il est toutefois important de noter que la température de fusion est inférieure à la température T_F marquant la fin de la transition de réorientation de spin, et qu'elle correspond à la température à partir de laquelle les cycles d'hystérésis s'arrondissent (figure 7.2). De plus, la perte de contraste n'est pas due à la résolution du microscope. Il a été démontré que la taille minimale des domaines observés ici est de $1 \mu\text{m}$ à T_m [118], bien supérieure à la résolution du microscope. Le comportement des rubans est cohérent avec nos mesures de magnétométrie Kerr, où l'état désaimanté est une structure en domaines, d'aimantation nulle. Même à une température de 260K, pour laquelle le cycle est carré (figure 7.2), la configuration magnétique rémanente aux temps longs est une structure en domaines. Ceci est cohérent avec mesures de relaxation qui montrent que l'état uniformément aimanté à une durée de vie supérieure à la durée d'acquisition du cycle d'hystérésis, mais inférieure au temps séparant la désaimantation et l'acquisition d'une image [65].

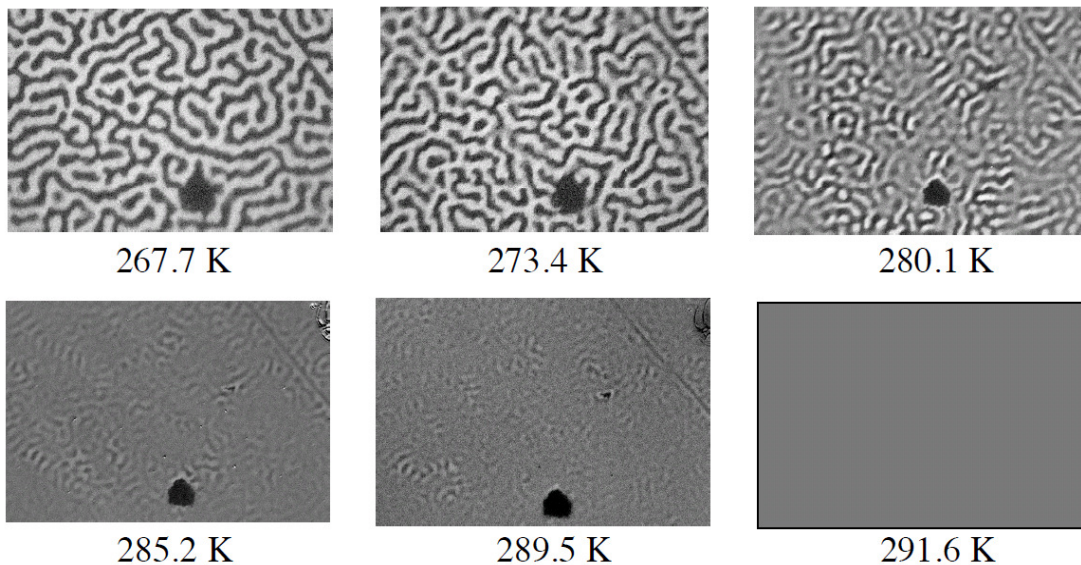


Fig. 7.9 : Images PMOKE des domaines magnétiques dans l'état désaimanté selon la température. Le temps d'acquisition de ces images est de l'ordre de 1 minute. La taille des images est de $80 \mu\text{m} \times 53 \mu\text{m}$.

La diminution de la période des rubans (ou de la taille des domaines) lorsque l'on augmente la température est prévue par la théorie. En effet, la période de la structure en rubans, est proportionnelle à $e^{\frac{\sigma_w}{\Omega}}$ avec σ_w l'énergie de paroi, elle même proportionnelle à $\sqrt{AK_{\text{eff}}}$ et Ω l'énergie dipolaire. Une augmentation de la température conduit

à une diminution de la constante d'anisotropie K_{eff} , et par conséquent à une diminution de la largeur des rubans. L'évolution de la période des rubans en fonction de la température est donnée figure 7.10(b). Cette période est déduite de la transformée de Fourier de l'image 7.10(a), qui consiste en un cercle diffus, caractéristique d'un système désordonné qui possède néanmoins une longueur caractéristique (ici la période des rubans). Le diamètre de ce cercle est inversement proportionnel à la période. Du point de vue de la symétrie, le système en rubans est semblable à un cristal liquide dans la phase smectique. La théorie prévoit une évolution exponentielle décroissante de la période lorsque l'on augmente la température, or nous observons une dépendance quasi linéaire. Cependant les dépendances thermiques de la constante d'anisotropie et de l'énergie dipolaire peuvent être complexes, et l'on peut aussi observer des évolutions particulières de la période. Par exemple, une variation quasi nulle de la période a été observée dans le système Fe sur W [115]. L'hystérésis thermique sur la période des rubans à basse température (figure 7.10(b)) est une conséquence de l'augmentation de l'anisotropie qui élève le temps caractéristique de relaxation vers l'état d'équilibre. Le temps qui s'est écoulé entre la désaimantation et la prise d'image n'est pas reproductible. A haute température, le temps de relaxation est très rapide, ce qui fait qu'un écart dans le temps écoulé n'a pas d'incidence. A basse température, la relaxation est lente et la valeur de la période est par conséquent très sensible au temps écoulé entre la prise d'image et la désaimantation.

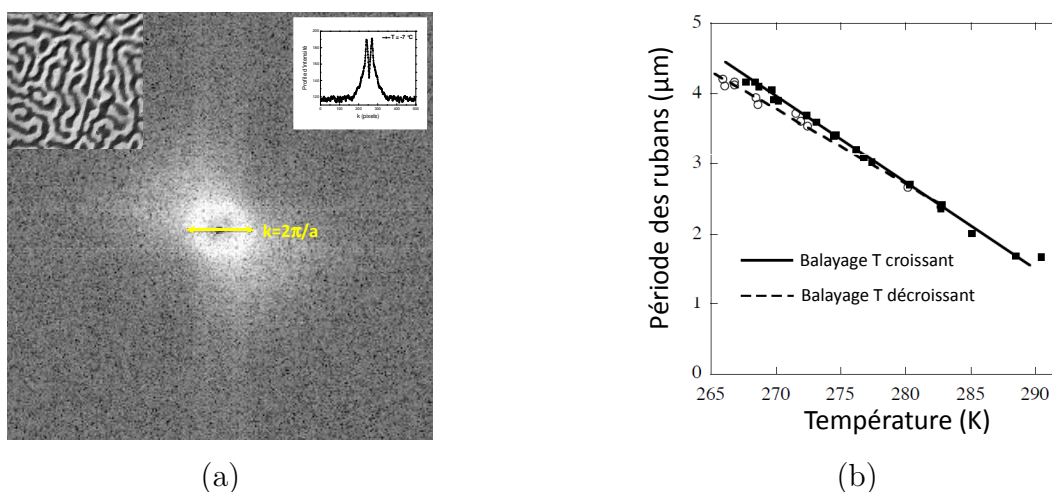


Fig. 7.10 : Transformée de Fourier de l'image 7.9 à $T=267.7\text{K}$ avec en encart la structure en domaine et le profil d'intensité (a). Période des rubans magnétiques en fonction de la température (b). Les mesures ont été réalisées en température croissante (carrés noirs) ou décroissante (cercles blancs).

7.2.3 Effet du champ magnétique sur la structure en rubans

C'est le comportement à haut champ qui a permis de déterminer la température de fin de la réorientation de l'aimantation, T_F . Pour $T < T_F$, la composante perpendiculaire de l'aimantation subit une variation brutale sous faible champ, alors que pour $T > T_F$ cette composante augmente plus lentement. Le comportement de M_{\perp}^f à bas champ est attribué à l'existence d'une constante d'anisotropie perpendiculaire suffisamment forte pour assurer une aimantation hors plan, mais insuffisante pour maintenir un état d'aimantation uniforme à la rémanence aux temps longs. L'application d'un faible champ suffit pour restaurer un état d'aimantation uniforme car la barrière d'énergie est très faible. La microscopie Kerr permet de suivre l'effet d'un champ magnétique très faible sur la structure en rubans. La figure 7.11 représente cette structure en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculairement à la couche, de 0 à 2.5 Oe à une température de 267K. Les rubans favorisés par la direction du champ magnétique s'élargissent. Pour un champ de 1.5 Oe, seules quelques bulles magnétiques d'aimantation négative subsistent puis l'échantillon est saturé sous un champ de 2.5 Oe. Les changements topologiques entraînés par de faibles champs magnétiques confirment encore que les barrières d'énergie entre les états métastables sont étroites. Ce comportement a aussi été observé dans le système Fe sur Ag [65].

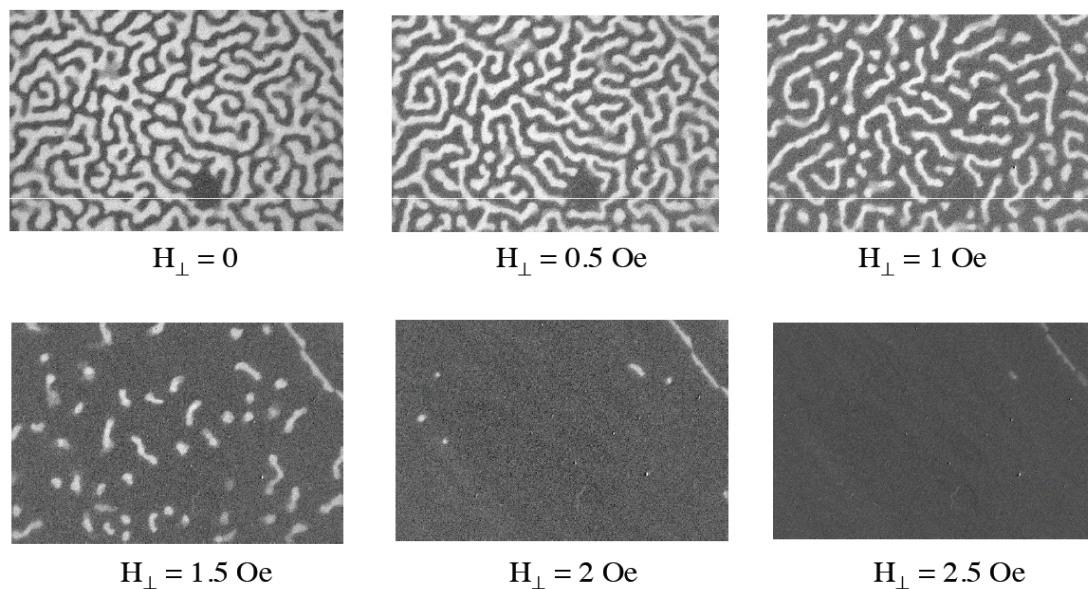


Fig. 7.11 : Images de la structure en domaines magnétiques en fonction du champ perpendiculaire appliqué à 267K.

Les images obtenues par microscopie Kerr ont confirmé les hypothèses formulées au paragraphe précédent et ont permis de mettre en évidence un régime de fluctuations

M_s (emu/cm ³)	A (erg/cm)	K_1 (erg/cm ³)	Ω (erg/cm ³)	K_{eff} (erg/cm ³)	Q	l_{ex} (nm)	σ_w (erg/cm)
400±50	2±0.5 x10 ⁻⁷	11±2.5	10±3 x10 ⁵	0.60±0.17 x10 ⁵	1.1±0.2 x10 ⁵	4.4±1.1	0.44±0.1

Tab. 7.1 : Tableau récapitulatif des paramètres pertinents pour la transition réorientation de spin.

quand la température approche de la température de fusion T_m . A partir de toutes ces données, il est possible de construire un scénario complet pour expliquer la réorientation de spin dans le cas du film mince Pt/Co(5Å)/Pt irradié et de confronter les résultats à des théories établies initialement pour des systèmes a priori très différents, à savoir les cristaux liquides.

7.3 Transition de réorientation de spin et diagramme de phases

7.3.1 Récapitulatif des paramètres utiles pour l'étude de la SRT

Dans cette partie, on résumera les valeurs des paramètres pertinents permettant de déterminer l'ordre de grandeur des termes en énergie en compétition. Le tableau 7.1 donne les valeurs de l'aimantation à saturation M_s , de la constante d'échange A, du champ d'anisotropie H_{eff}^A effectif, des constantes d'anisotropies (magnéto-cristalline K_1 et dipolaire Ω), la longueur d'échange ainsi que l'énergie de paroi de domaines. Toutes ces valeurs sont données pour une température de 280K. La valeur de l'aimantation à saturation a été déterminée au SQUID, les constantes d'anisotropies ont été extraites des mesures PMOKE, la constante d'échange est estimée à partir de la température de Curie de l'échantillon et le champ d'anisotropie effectif est défini par la relation $H_{eff}^A = \frac{K_{eff}}{2M_s}$. La longueur d'échange est donnée par la relation $l_{ex} = \sqrt{\frac{A}{\Omega}}$ et la densité surfacique d'énergie de paroi par $\sigma_w = 4\sqrt{AK_{eff}}$.

7.3.2 Evolution thermique des composantes de l'aimantation

Les mesures d'effet Kerr ont montré que la réorientation thermique de l'aimantation n'est pas brutale mais a lieu sur une gamme de température allant approximativement de 273 à 325K, avec d'abord la formation de rubans magnétiques, dans lesquels l'aimantation est uniforme à l'échelle micrométrique et dont l'axe de facile aimantation est

perpendiculaire. Le comportement de l'aimantation sous fort champ laisse présager l'existence de nanodomains à anisotropie planaire même au dessous de 273K à associer d'assez larges inhomogénéités structurales produites après irradiation ionique. Compte tenu de leur origine structurale, ces nanodomains conservent une aimantation planaire sur toute la gamme de températures. On supposera donc qu'ils ne sont pas concernés par la SRT.

L'aimantation à pseudo-saturation tend vers zéro autour de $T_F=325\pm 5\text{K}$ (figure 7.8). Il s'agit donc de la température pour laquelle la transition s'achève et où l'aimantation devient purement planaire. Dans l'hypothèse retenue sur la co-existence d'une phase mixte en nanodomains ayant une aimantation initiale soit planaire, soit perpendiculaire, seule l'aimantation des nanodomains perpendiculaires va se réorienter. La SRT prend fin quand tous les nanodomains perpendiculaires ont basculé dans le plan. A partir de 273K, l'angle θ que fait l'aimantation par rapport à la normale dans les nanodomains initialement perpendiculaires est donné par $\cos \theta = \frac{M_{\perp}^{\text{lf}}(T)}{0.86M_s(T)}$. L'angle varie progressivement de 0° (quand le rapport $M_{\perp}^{\text{lf}}/M_s$ est égal à 0.86) à 90° quand M_{\perp}^{lf} est égal à zéro (voir figure 7.12). L'évolution de l'angle en fonction de la température permet de marquer plus précisément le début et la fin de la transition de réorientation et de déterminer les valeurs $T_S=273\pm 2\text{K}$ et $T_F=320\pm 3\text{K}$.

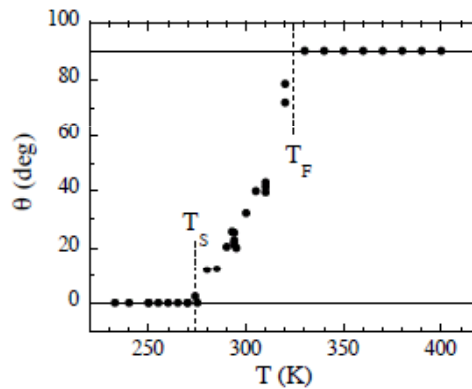


Fig. 7.12 : Evolution de l'angle de réorientation de l'aimantation dans un nanodomaine perpendiculaire en fonction de la température.

Les mesures de magnétométrie Kerr en configuration polaire ont permis de déterminer les valeurs de l'aimantation à saturation $M_s(T)$ ainsi que sa composante perpendiculaire sous faible champ $M_{\perp}^{\text{lf}}(T)$ en fonction de la température. La composante planaire de l'aimantation peut-être déterminée à partir de l'expression $M_{//}(T) = M_s \sin \theta(T)$. Les composantes perpendiculaire et planaire de l'aimantation en fonction de la température sont représentées figure 7.13.

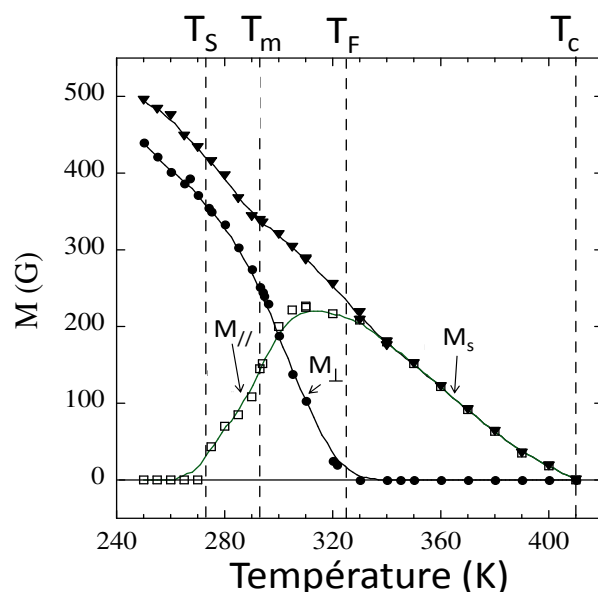


Fig. 7.13 : Aimantation à saturation $M_s(T)$, aimantation perpendiculaire $M_{\perp}^f(T)$ et aimantation planaire $M_{//}(T)$ dans un nanodomaine initialement perpendiculaire en fonction de la température.

7.3.3 Diagramme des phases magnétiques

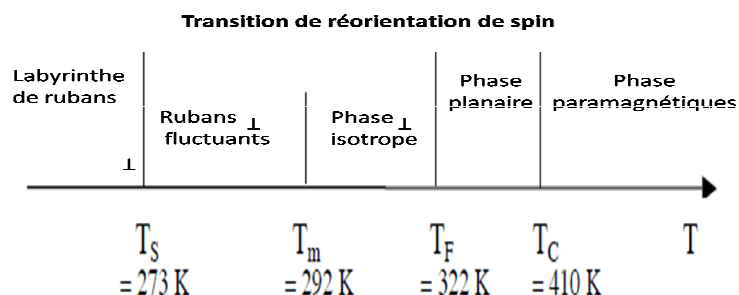


Fig. 7.14 : Diagramme thermique des phases magnétiques de l'échantillon Pt/Co(5Å)/Pt uniformément irradié en fonction de la température.

Nous pouvons résumer les résultats obtenus par le diagramme de la figure 7.14, où les différentes phases sont séparées par les températures T_S , T_F , T_m et T_c qui sont respectivement les température de début et de fin de la SRT, la température de fusion, et la température pour laquelle $M_s = 0$ sous un champ de 400 Oe. Les différentes phases observées sont :

- (1) $T < T_S$: une phase labyrinthe en rubans d'aimantation quasi perpendiculaire.
- (2) $T_S < T < T_m$: une phase en rubans fluctuants d'aimantation inclinée par rapport à la normale.

- (3) $T_m < T < T_F$: une phase fluctuante isotrope.
- (4) $T_F < T < T_c$: une phase à aimantation planaire.
- (5) $T > T_c$: une phase paramagnétique.

Le modèle le plus sophistiqué pour décrire la transition de réorientation de spin dans les films magnétiques 2D a été proposé par Abanov et al [67]. Dans ce modèle, les auteurs utilisent une analogie entre la structure des domaines magnétiques en rubans et l'organisation des molécules dans les cristaux liquides. Pour un film magnétique 2D sur réseau, la succession de phases est alors la suivante :

- (1) Phase monodomaine : la taille caractéristique des domaines est de l'ordre de celle de l'échantillon.
- (2) Phase smectique : structure en domaines présentant un ordre orientationnel et positionnel à longue portée.
- (3) Liquide tétragonal : Perte successive de l'ordre orientationnel, puis positionnel.
- (4) Phase planaire.
- (5) Phase paramagnétique.

Pour notre échantillon Pt/Co(5Å)/Pt, les rubans présentent une structure isotrope en labyrinthe due à l'absence d'ordre cristallin. Nous n'observons donc pas de phase en rubans ordonnés. La phase tétragonale devient dans notre cas une phase liquide isotrope. Dans le modèle d'Abanov, la transition de la phase (2) à la phase (3), conséquence de la prolifération de défauts topologiques, est du premier ordre [119]. Le faible hystérésis thermique que nous observons sur la période des rubans montre que la transition de la phase (2) à (3) est quasiment du deuxième ordre.

Malgré la similitude entre nos résultats expérimentaux et les prédictions d'Abanov, ce dernier modèle, déjà sophistiqué, ne permet pas d'interpréter le régime de fluctuations accompagnant la transition de réorientation de spin. L'objectif de la section suivante est de décrire ce régime de fluctuations et de préciser son origine, afin de proposer les hypothèses de départ pour construire à l'avenir un modèle plus complet sur la SRT.

7.4 Etude du régime de fluctuation associé à la transition réorientation de spin dans Pt/Co(5Å)/Pt irradié uniformément par des ions He⁺

Si la transition de réorientation de spin a été observée dans de nombreux systèmes, peu d'attention a été portée à l'étude du régime de fluctuations qui peut l'accompagner. Dans ce type de système frustré à interactions compétitives de portée différente, on s'at-

tend à mettre en évidence de fortes instabilités de la structure en rubans magnétiques qui se manifeste lorsque les interactions sont très faibles. Le phénomène de fluctuations de l'aimantation dans les films ultraminces rentre dans le cadre général de la fusion à deux dimensions, qui se traduit par une transition entre une phase ordonnée de basse symétrie à une phase désordonnée de haute symétrie. La fusion 2D a déjà été observée dans le cas de la transition ferromagnétique-paramagnétique dans un film ferromagnétique frustré Fe/Cu(100) [114]. L'origine de ces fluctuations n'est toujours pas résolue, et deux types de modèles ont été proposés. Dans le modèle de Nelson et Halperin [111, 112], parfaitement adapté aux cristaux liquides, la fusion est une conséquence de la prolifération de dislocations et de desinclinaisons du réseau, et est associée à une transition du type Kosterlitz-Thouless. Par ailleurs, Brasovskii a proposé un modèle plus général basé sur l'analyse du spectre des fluctuations pour des transitions de phase solide-liquide [113]. Dans cette dernière approche, appliquée au magnétisme, la fusion est la conséquence de l'instabilité des parois de domaines due aux fluctuations thermodynamiques. L'objectif de cette section est de présenter les résultats expérimentaux obtenus sur notre échantillon Pt/Co(5Å)/Pt et de montrer comment ils pourraient servir de base pour initier de nouveaux travaux théoriques visant à établir un modèle de transition dynamique adaptée à notre problématique, ainsi qu'à d'autres systèmes.

7.4.1 Acquisition des images

Le banc de microscopie Kerr polaire utilisé est celui décrit à la section 3.3. Le taux de transfert des images de la caméra CCD limite la cadence d'acquisition à cinq secondes par image. Le mode "rafale" permet dans ces conditions d'obtenir une succession d'images magnétiques avec une résolution temporelle de 5 secondes. La longueur d'onde de la source lumineuse (LED émettant dans le vert) utilisée est de 500 nm, ce qui assure une résolution spatiale suffisante pour suivre l'évolution de la structure en domaines magnétiques. Le montage est bien adapté pour des mesures dans la gamme de température de la SRT et en particulier au voisinage de T_m , la température de fusion. Le protocole expérimental consiste à saturer l'échantillon en appliquant un champ magnétique perpendiculaire, puis à enregistrer d'abord une image sous champ. L'amplitude du champ magnétique est ensuite progressivement ramenée à zéro. La fin de ce processus de désaimantation marque le temps t_0 de référence. Quand le champ magnétique est nul, le système relaxe rapidement vers son état d'équilibre. D'autres images magnétiques sont ensuite enregistrées toutes les 5 secondes. Le rapport entre le signal magnéto-optique et le fond optique est de l'ordre de 10^{-3} ce qui oblige à effectuer des différences d'images pour améliorer le contraste. Deux types de procédures seront utilisés dans cette section :

- Les images PMOKE : différence entre l'image saturée sous champ et une image

prise à un instant t après la désaimantation. Ce type d'image permet d'observer la structure en domaines magnétiques.

- Les images DIFF : différence entre deux images prises après désaimantation. Le temps t dans ce cas correspond au temps qui s'est écoulé entre la prise de la première image et la désaimantation. Le temps δt correspond au temps séparant les deux images. Ce type d'image permet d'obtenir une information sur les fluctuations.

7.4.2 Rôle du piégeage sur les fluctuations

Les images PMOKE de la structure en domaines magnétiques en champ nul obtenues sur l'échantillon Pt/Co(5Å)/Pt uniformément irradié (dosage de 10^{16} He/cm²) (figure 7.20) mettent en évidence un régime de fluctuations qui s'amplifie avec la température jusqu'à effacer la structure magnétique en rubans. Une nouvelle série d'images PMOKE, toujours en fonction de la température, est présentée figure 7.15. Le comportement en température de la structure en domaine des rubans est encore conforme au diagramme de phase magnétique que nous avons proposé section 7.1. Néanmoins, la présence d'un défaut extrinsèque (rayure à la surface de l'échantillon, encerclée en rouge) stabilise les rubans magnétiques, même à 285K (figure 7.15(d)), alors que le régime de fluctuations est déjà très efficace à cette température. La figure 7.16 représente des images PMOKE uniques mesurées après $t=5$ secondes (a) et $t=16$ minutes (b). La différence entre ces images (figure 7.15(c)) montre qu'à température constante, la structure en rubans évolue en fonction du temps.

L'image de la figure 7.17(a) représente la différence entre l'image initiale au temps $t=t_0$ (temps marquant la fin de la désaimantation) et une image prise 5 secondes plus tard à la température de 266.3K. Sur cette image, les zones uniformément grises correspondent à des régions où la structure en rubans n'a pas bougé. Les zones blanches et noires traduisent quand à elles des fluctuations locales des rubans. A cette basse température, et après 5 secondes les fluctuations demeurent très localisées et couvrent seulement une faible portion de l'image 7.17(a). Les images des figures 7.17(b) et 7.17(c) représentent également des différences entre des images prises à 5 secondes d'intervalle, mais pour un temps $t=5$ minutes (b) et $t=9$ minutes (c). Une simple observation de ces fluctuations permet de constater que pour un écart de temps fixé (ici 5 secondes) entre la prise des deux images, le nombre de centres fluctuants (c'est à dire d'endroits où sont amorcées les fluctuations) reste quasi constant au cours du temps, ainsi que leur extension spatiale. Par contre, la position de certains de ces centres de fluctuation change au cours du temps. Le même protocole expérimental a été répété mais avec des temps entre les prises d'images de 5 minutes au lieu de 5 secondes. Ces images sont présentées figures 7.18 pour des temps $t=5$ secondes (a), $t=5$ minutes (b) et $t=11$ minutes. La même conclusion s'impose, à savoir

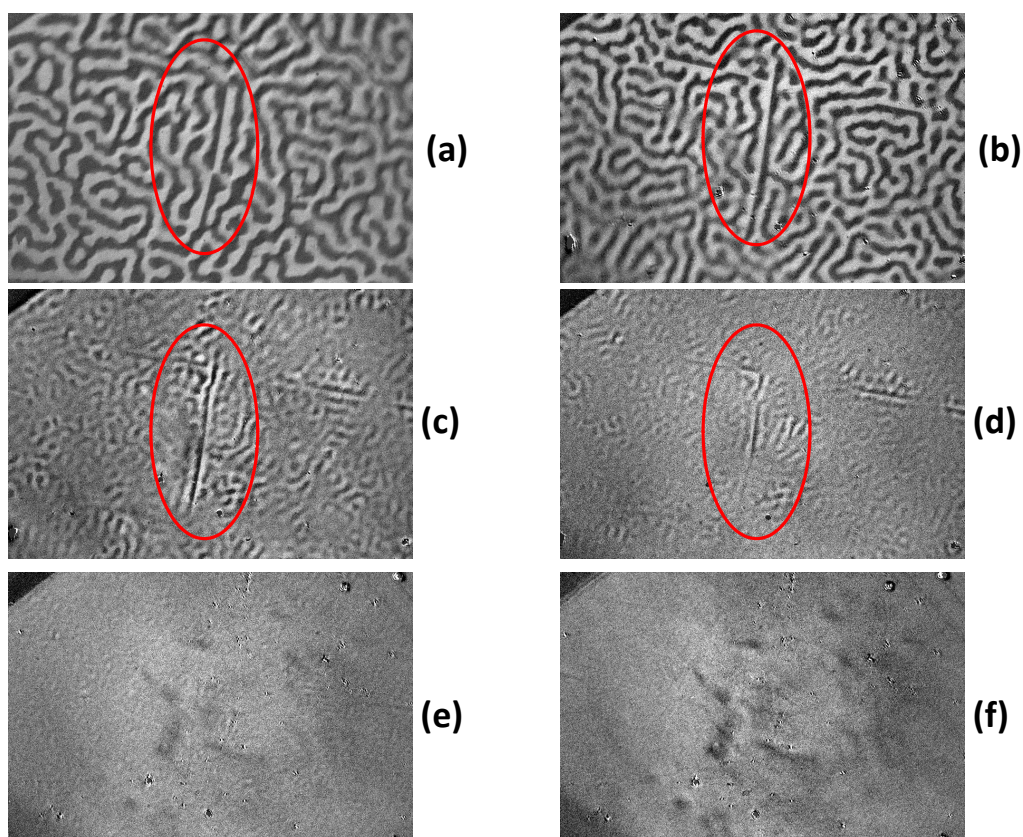


Fig. 7.15 : Image PMOKE d'un échantillon uniformément irradié en fonction de la température : $T=266.3\text{K}$ (a), $T=274.6\text{K}$ (b), $T=282.6\text{K}$ (c), $T=285\text{K}$ (d), $T=288.6\text{K}$ (e) et $T=294\text{K}$ (f). Images accumulées pendant 50 secondes.

le nombre de centre de fluctuations et leur extension semblent indépendant du temps t . La résolution temporelle du microscope Kerr limite l'observation de fluctuations rapides dans cet échantillon dans le régime "stationnaire".

La cadence d'acquisition d'images de notre microscope n'étant pas suffisante pour observer les états transitoires aux temps courts dans l'échantillon $\text{Pt}/\text{Co}(5\text{\AA})/\text{Pt}$ uniformément irradié, nous avons effectué des études similaires sur un échantillon $\text{Pt}/\text{Co}(5\text{\AA})/\text{Pt}$ dans lequel nous avons créé un réseau périodique de défauts. L'intérêt de ces défauts périodiques est de stabiliser les fluctuations et d'orienter les domaines magnétiques en rubans.

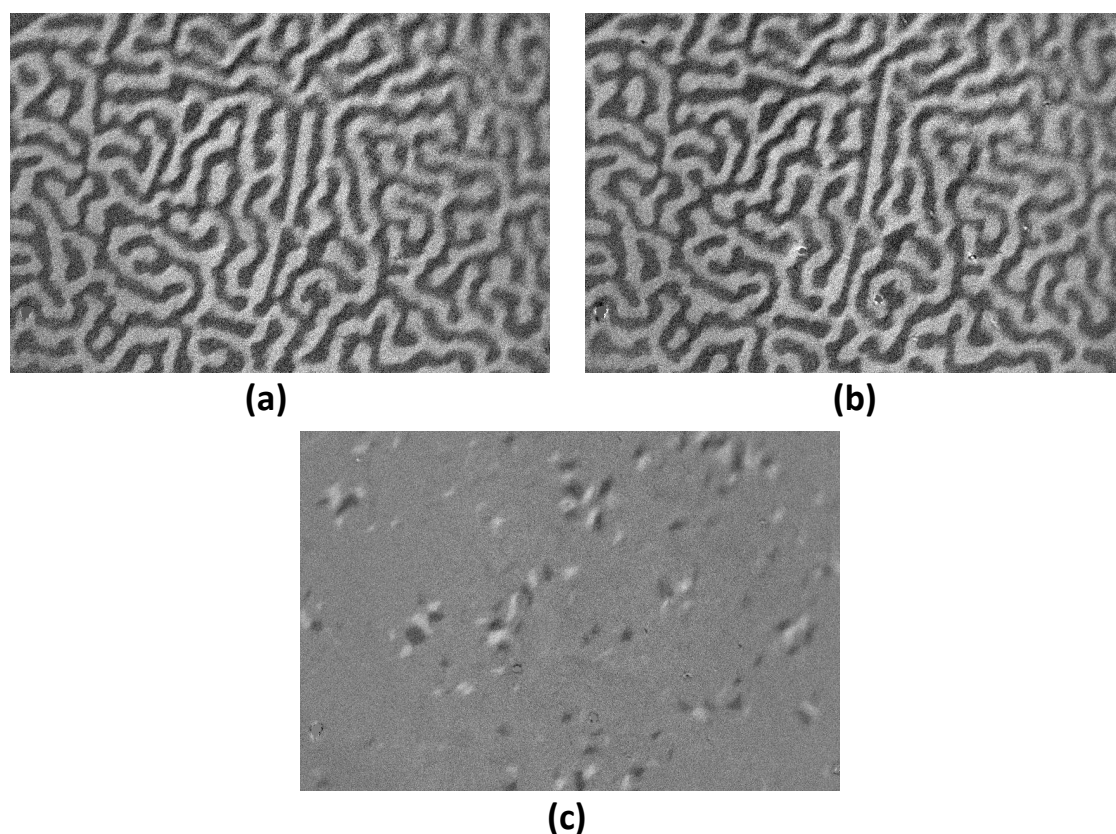


Fig. 7.16 : Images PMOKE de l'échantillon uniformément irradié pour une température de 266.3K prises à des temps $t=5$ secondes (a) et $t=16$ minutes (b). Différence DIFF entre ces deux images (c)

7.5 Etude du régime de fluctuations associé à la SRT dans Pt/Co(5Å)/Pt nanostructuré par un réseau de défauts crée par irradiation sous faisceau d'ions Ga⁺ focalisés

7.5.1 L'échantillon

L'irradiation par un faisceau d'ions gallium focalisés (FIB) à 30 keV d'un échantillon Pt/Co(5Å)/Pt permet de créer des régions non magnétiques de taille nanométrique. Le processus associé est globalement le même que pour l'irradiation par des ions hélium, sauf qu'ici la dose d'irradiation est locale et choisie de telle manière que la partie centrale irradiée soit paramagnétique. Un schéma succinct du réseau carré de défauts étudié est présenté figure 7.19. Les points FIB ont un diamètre à mi hauteur de l'ordre de 15 nm

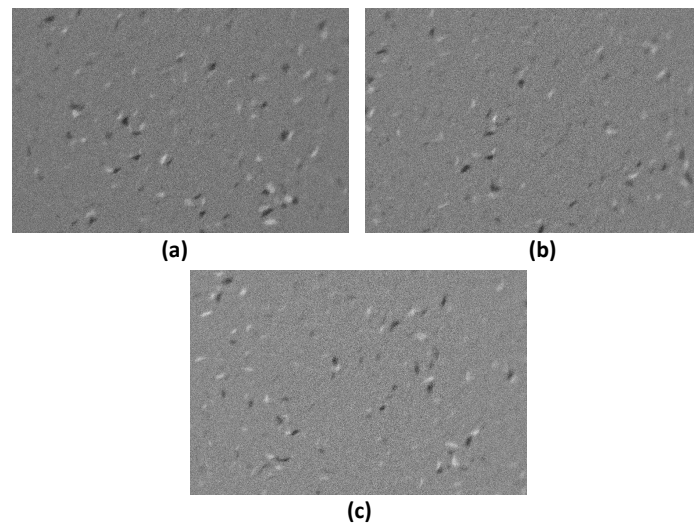


Fig. 7.17 : Images DIFF pour des temps t de 5 secondes (a), de 5 minutes (b) et 9 minutes (c) et $\delta t=5$ secondes.

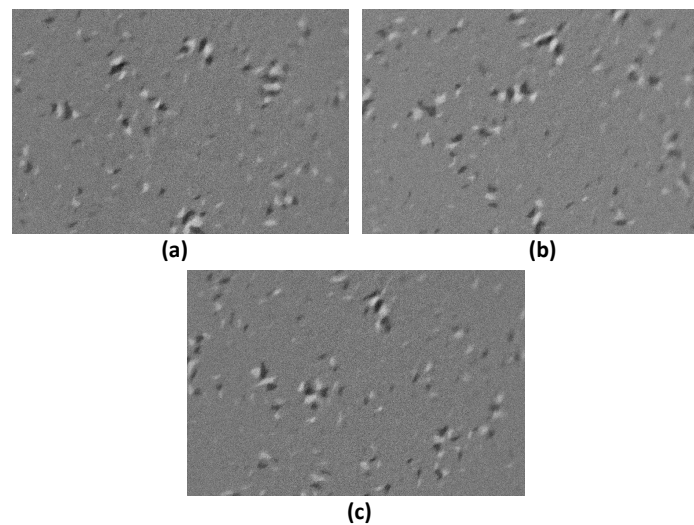


Fig. 7.18 : Images DIFF pour des temps t de 5 secondes (a), de 5 minutes (b) et 11 minutes (c) et $\delta t=5$ minutes.

et leur espacement selon deux directions orthogonales dans le plan est de l'ordre de 30 nm. Compte tenu de la proximité des points FIB et de leur profil gaussien qui se recouvre partiellement, on a pu abaisser la température de réorientation de spin au voisinage de la température ambiante.

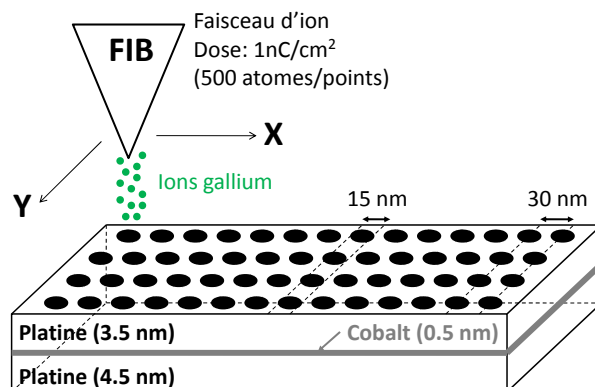


Fig. 7.19 : Schéma de la gravure de l'échantillon Pt/Co(5Å)/Pt par bombardement d'ions Ga (FIB).

7.5.2 Observation de la structure magnétique et des fluctuations

La figure 7.20 représente les images PMOKE à plusieurs températures pour l'échantillon gravé par FIB. Comme pour l'échantillon uniformément irradié, les domaines magnétiques en rubans sont assez contrastés à basse température. Des fluctuations apparaissent dès que la température atteint 293K puis la structure en rubans disparaît vers T_m à cause des fluctuations. A première vue, l'hystérésis thermique de la transition est encore peu marqué. L'orientation préférentielle des rubans dans le plan est liée au sens de balayage du faisceau lors de la gravure qui induit une faible ellipticité des points FIB [120, 121]. Le réseau de points FIB permet alors un faible ancrage des parois de rubans magnétiques. Le diamètre des points FIB est ici de l'ordre de la largeur des parois de domaines. Les transformées de Fourier des images 7.20(a) et 7.20(d) sont représentées respectivement sur les figures 7.21(a) et (b). La comparaison entre ces transformées de Fourier montre un cercle diffus à basse température, tandis que deux points plus contrastés apparaissent à plus haute température. Ces deux points sont dus à une orientation plus homogène des rubans à haute température.

Les images présentées figures 7.20 ont été moyennées sur un temps long de l'ordre de 50 secondes. Des images PMOKE ont été mesurées en mode rafale pour trois températures, 283 K (figure 7.22), 288 K (figure 7.23) et 296 K (figure 7.24) en fonction du temps. A 283K, la structure en rubans est à peu près stable au cours du temps, avec toutefois de petites modifications qui consistent en des coupures de rubans ou la création d'embranchements. A 288 K, les coupures et embranchements sont plus nombreux, et les zones d'instabilités s'étalent. Enfin à 296 K, les rubans restent contrastés, mais présentent des

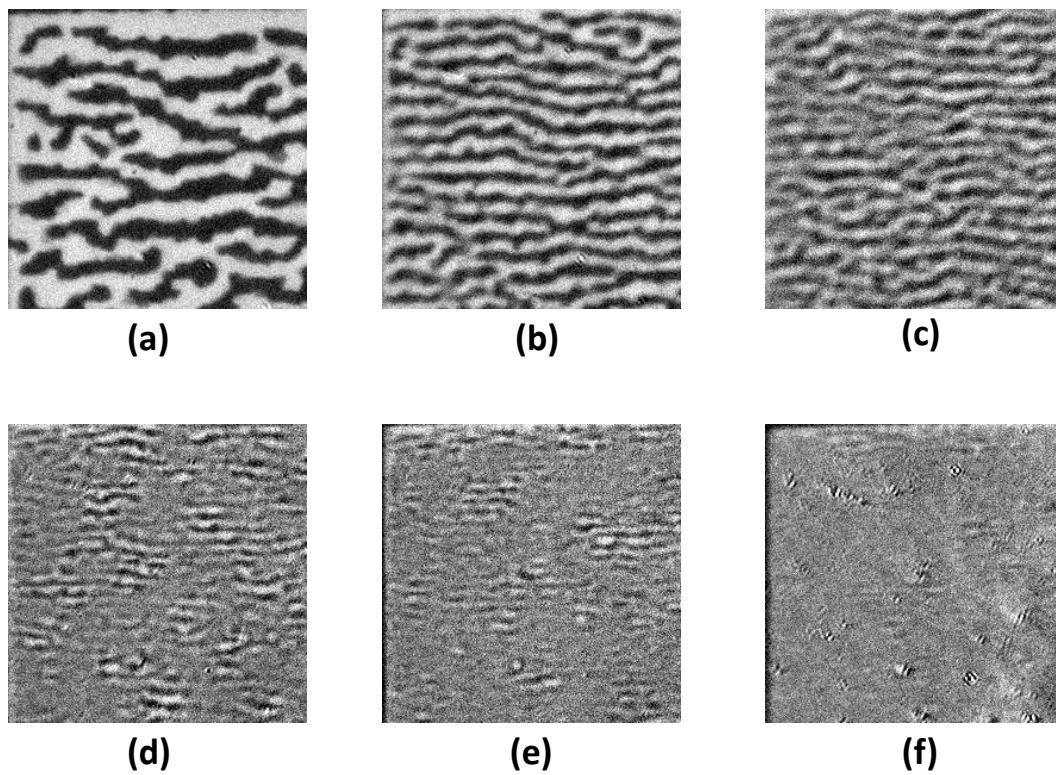


Fig. 7.20 : Structure en domaines pour des températures de 283 K (a), 291 K (b), 293 K (c), 297 K (d), 299 K (e) et 301 K (f). Les images correspondent à la différence entre l'état saturé et l'état à t_0 .

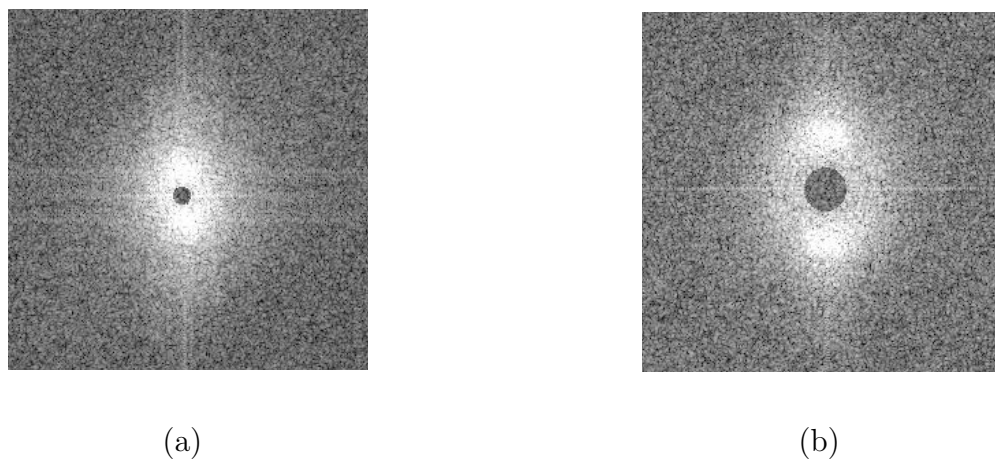


Fig. 7.21 : Transformée de Fourier des images PMOKE à $T=283$ K (a) et à $T=296$ K (b).

fluctuations de plus grande amplitude. L'observation de ces images montre qu'à basse température (loin de T_m), les mouvements sont trop localisés pour modifier la structure globale des domaines. En augmentant progressivement la température, ces effets locaux sont accompagnés de mouvements de plus grande amplitude de la structure en domaines.

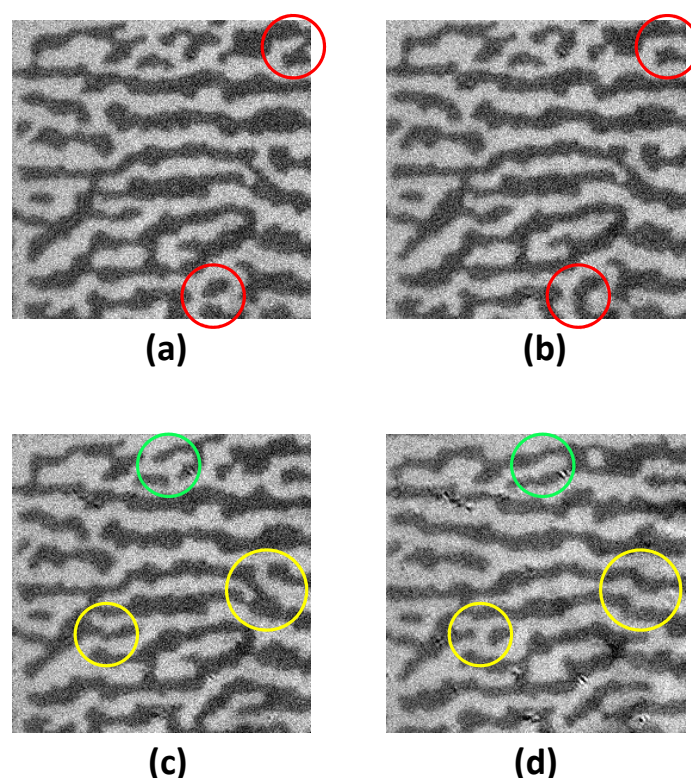


Fig. 7.22 : Images PMOKE acquises à $t=5$ secondes (a), à $t=1$ min (b), à $t=2$ min (c) et à $t=20$ min (d) pour une température de 283 K.

Les fluctuations observées sur les figures 7.22, 7.23 et 7.24 sont intégrées pendant le temps de moyennage des images. Des images prises avec une meilleure résolution temporelle ont permis de préciser l'origine des fluctuations : des coupures ou soudures de rubans, l'apparition et la disparition de branchements, des rétrécissements et élargissements de rubans. Des différences d'images permettent de suivre les évolutions de ces fluctuations en fonction du temps.

7.5.3 Caractérisation des échelles de temps mises en jeu

Pour mettre en évidence les modifications que ces fluctuations entraînent sur la structure en domaines, on s'est intéressé aux différences entre l'image désaimantée à t_0 et une

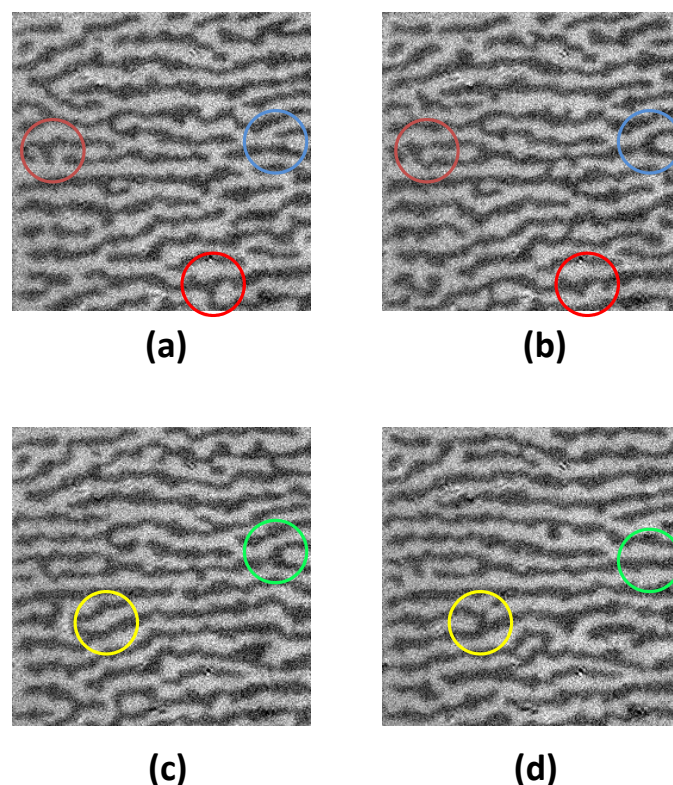


Fig. 7.23 : Images PMOKE acquises à $t=5$ secondes (a), à $t=1$ min (b), à $t=2$ min (c) et à $t=20$ min (d) pour une température de 288 K.

image désaimantée prise à un temps t_0+t . La figure 7.25 représente l'évolution temporelle des fluctuations à une température de 283 K. Contrairement au cas de l'échantillon uniformément irradié, le nombre de centres fluctuant augmente entre un temps $t=5$ secondes et $t=5$ minutes puis semble se stabiliser ensuite, tout comme l'extension spatiale des fluctuations associées. En augmentant la température à 296 K (figure 7.26), on observe des fluctuations avec une extension spatiale plus importante mais qui se stabilisent beaucoup plus rapidement qu'à basse température. Les zones encerclées sur la figure 7.26 correspondent à des disparitions puis réapparitions de structures au cours du temps.

Les images des figures 7.25 et 7.26 ont permis de tirer des informations sur l'évolution des fluctuations en fonction du temps et de la température. Une procédure a été mise en place pour extraire une information plus quantitative sur les échelles de temps mise en jeu, ainsi que sur le nombre de centres fluctuant et leur extension spatiale. Cette procédure, basée sur la transformée de Fourier des images réalisée avec le logiciel ImageJ [122], est illustrée sur la figure 7.27. Un profil d'intensité du halo plus lumineux est obtenu, ce qui conduit à la distribution présentée figure 7.27(c). Dans le cas de fluctuations très locales

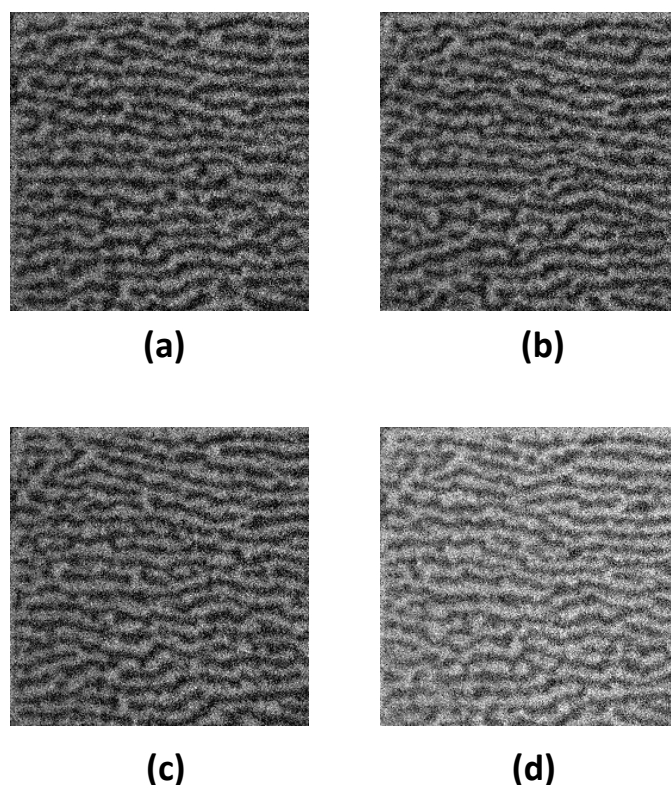


Fig. 7.24 : Images PMOKE acquises à $t=5$ secondes (a), à $t=1$ min (b), à $t=2$ min (c) et à $t=20$ min (d) pour une température de 296 K.

(à 283 K par exemple), la transformée de Fourier correspond à un cercle diffus, alors qu'à plus haute température, sur des fluctuations orientées (voir figure 7.26(f)) la transformée de Fourier présente deux maximums dont l'écartement est proportionnel à l'inverse de la période du réseau de domaines. Les profils obtenus sont ajustés avec deux fonctions gaussiennes (en rouge sur la figure 7.27(c)). Par analogie à la diffraction, l'inverse de la largeur à mi-hauteur W des pics est reliée à l'extension spatiale des fluctuations et la hauteur du pic h est liée au nombre de centres fluctuants. La figure 7.28 présente l'évolution temporelle du profil de la transformée de Fourier des images de la figure 7.25. Cette technique est suffisamment sensible pour distinguer quantitativement le comportement observé figure 7.25(a) et 7.25(b).

La figure 7.28 montre qu'à partir de $t=20$ minutes, le profil de la transformée de Fourier n'évolue plus. Le même comportement est observé à une température de 296 K. Les largeurs à mi-hauteurs W ainsi que les hauteurs de pics h sont normalisées par rapport aux valeurs obtenues au temps longs. Les figures 7.29 (a) et (b) regroupent les résultats obtenus pour les températures de 283 et 296 K. Ces résultats montrent sans ambiguïté que

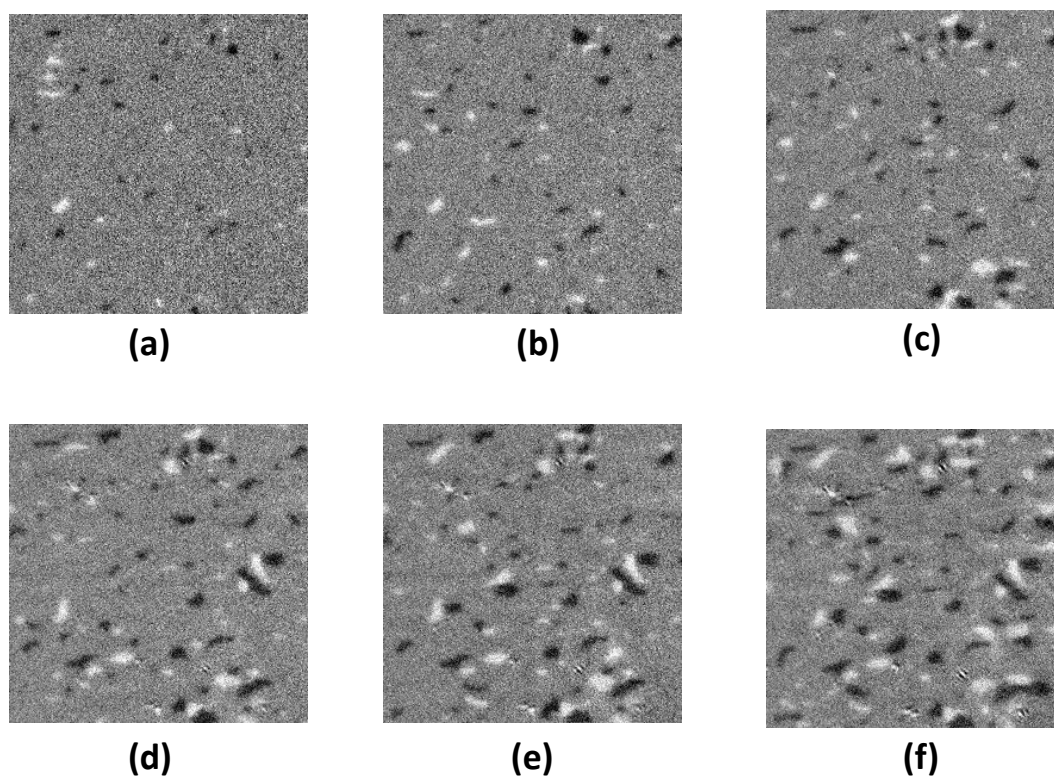


Fig. 7.25 : Différence entre l'image désaimantée à t_0 et l'image désaimantée à $t=1$ (b), 2 (c), 5 (d), 10 (e) et 20 (f) minutes. L'image (a) représente le différence entre deux images successives prises à des temps t_0 et $t_0+5\text{sec}$. Ces mesures ont été réalisées à une température $T=283\text{K}$.

l'extension spatiale des fluctuations ainsi que le nombre de centres fluctuants se saturent à un temps d'autant plus court que la température est élevée.

Des mesures ont ainsi été réalisées sur ce même échantillon sur une gamme de temps beaucoup plus étendue. Les images, correspondant à des différences entre l'état en rubans après désaimantation et des états en ruban aux temps longs (de 7 minutes à plus d'une heure) à $T=296\text{K}$ sont présentées figure 7.30. Ces images montrent que les fluctuations sont stationnaires, en ce qui concerne le nombre de centre fluctuants et leur extension spatiale. La structure en rubans conserve sa symétrie planaire, mais la position des zones fluctuantes change profondément au cours du temps.

L'échantillon nanostructuré par un réseau périodique de défauts nous a permis de préciser l'origine des fluctuations dans des gammes de temps accessibles avec notre microscope. Nous avons mis en évidence que l'amplitude, ainsi que le nombre de centres fluctuants,

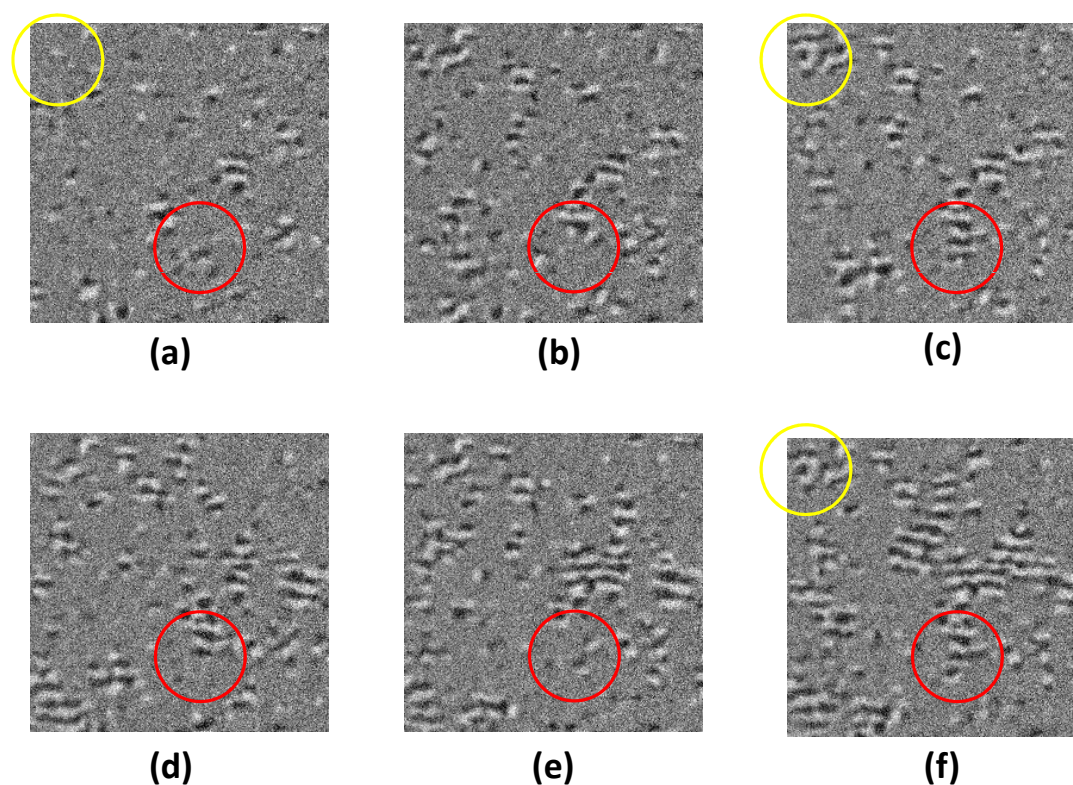


Fig. 7.26 : Différence entre l'image désaimantée à t_0 et l'image désaimantée à $t=1$ (b), 2 (c), 5 (d), 10 (e) et 20 (f) minutes. L'image (a) représente le différence entre deux images successives prises à des temps t_0 et $t_0+5\text{sec}$. Ces mesures ont été réalisées à une température $T=296\text{K}$.

se stabilise aux temps longs vers un régime stationnaire. Les temps caractéristiques associés au régime transitoire diminuent fortement lorsque l'on augmente la température, ce qui s'explique par un abaissement des barrières d'énergie impliquées à la fin de la SRT, favorisant l'effet des fluctuations thermiques. Nous avons observé à la fois la formation et disparition de défauts topologiques sur la structure à basse température, et des fluctuations d'amplitude croissante dès que l'on se rapproche de la fin de la transition de réorientation de spin. Ces résultats ne peuvent pas être expliqués par les théories qui existent actuellement, mais doivent être vus comme une base expérimentale permettant de fixer des hypothèses de travail pour élaborer des théories dynamiques sophistiquées. Dans cette optique, une collaboration avec des théoriciens du groupe de R. Stamps a été récemment initiée.

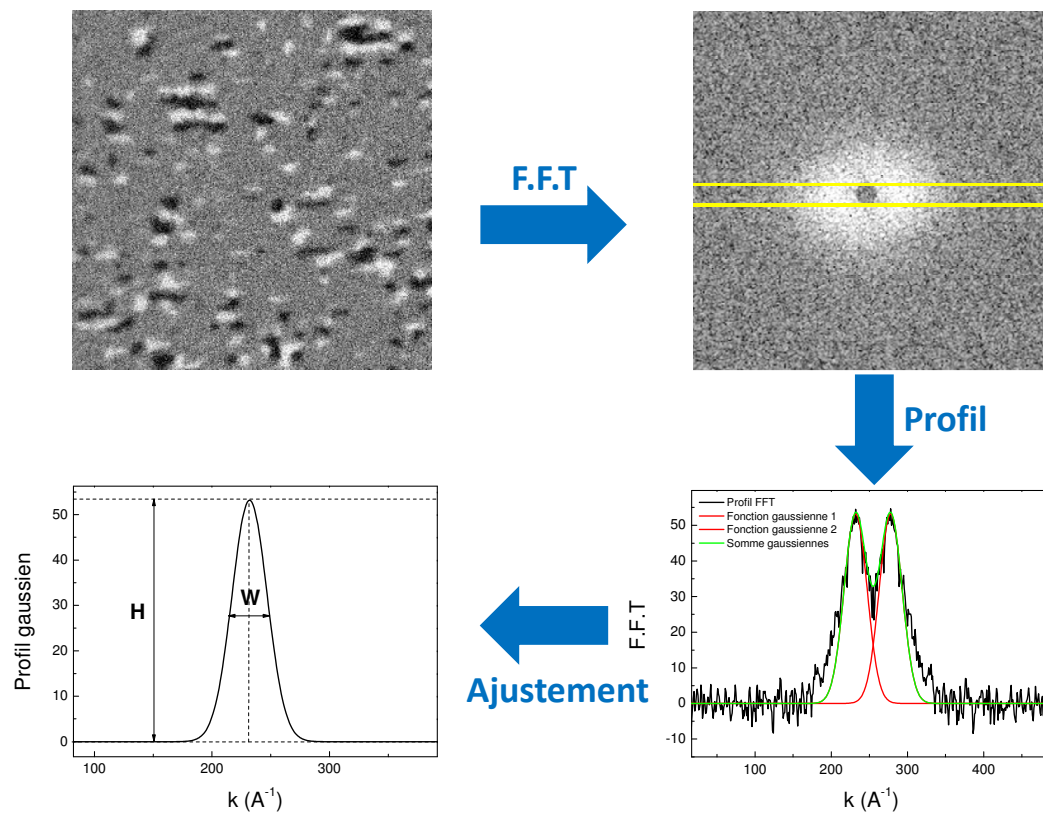


Fig. 7.27 : Illustration de la procédure permettant d'extraire une information quantitative sur le nombre et l'extension des fluctuations.

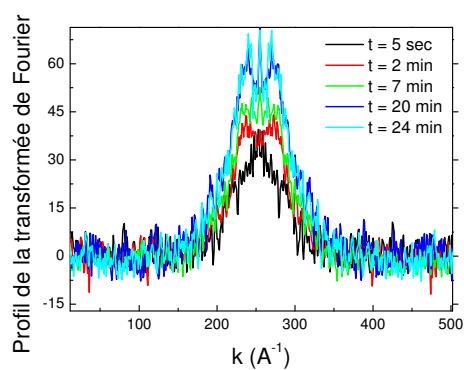


Fig. 7.28 : Profil de la transformée de Fourier en fonction du temps pour une température de 10°.

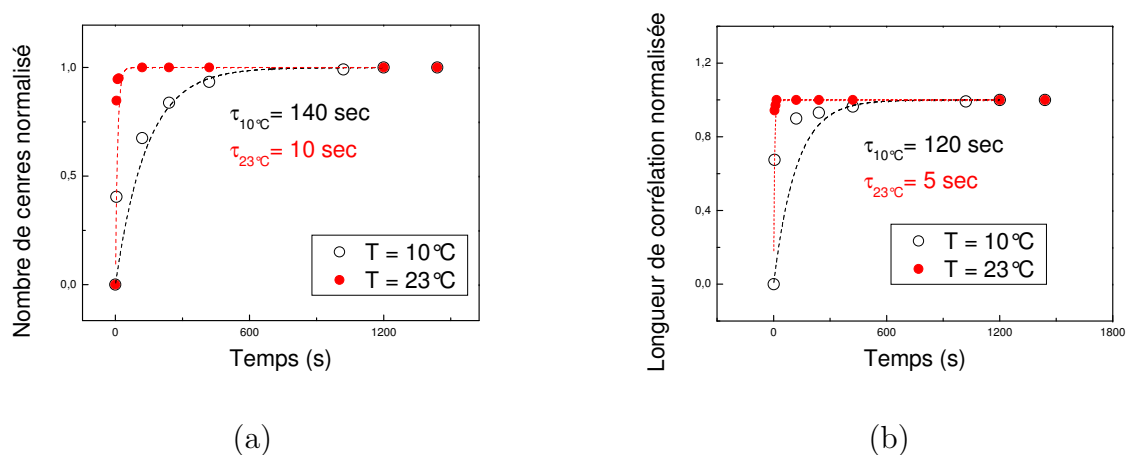


Fig. 7.29 : Hauteur normalisée par la valeur au temps long des fonctions gaussiennes en fonction du temps (a) pour une température de 283 K (courbes noires) et de 296 K (courbes rouges). Inverse de la largeur à mi-hauteur des fonctions gaussiennes normalisée par l'inverse de la largeur à mi-hauteur au temps long en fonction du temps (b) pour une température de 283 K (courbes noires) et de 296 K (courbes rouges). Les courbes en pointillés représentent des ajustements par des fonctions exponentielles, permettant d'extraire les temps caractéristiques.

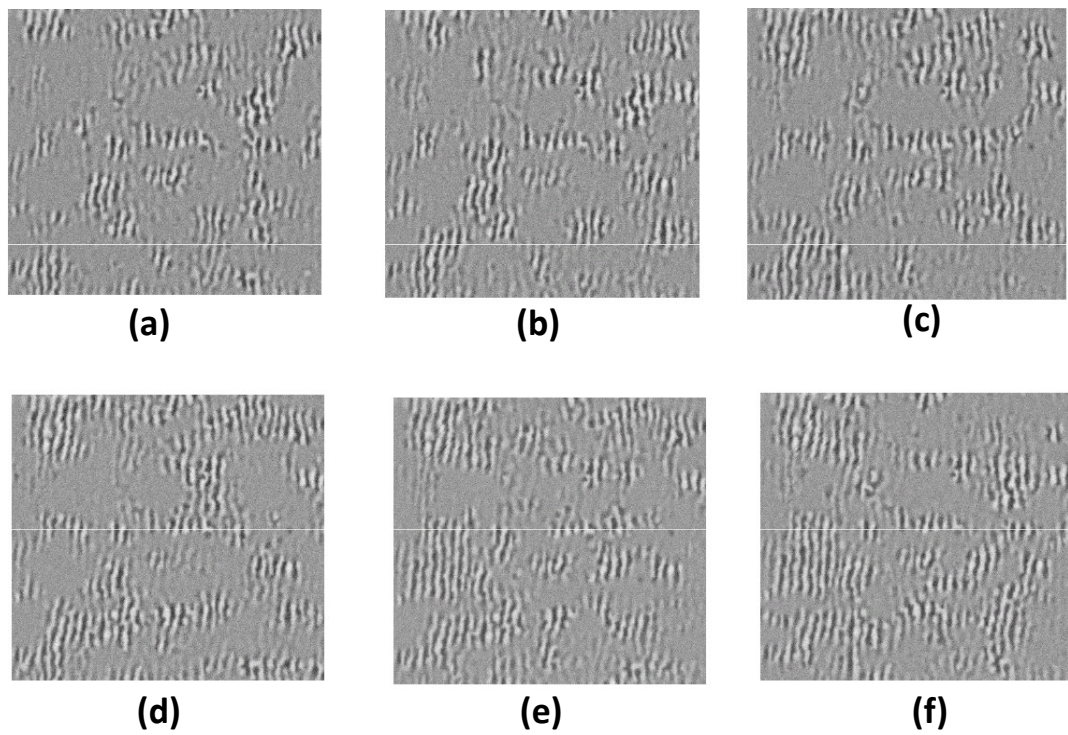


Fig. 7.30 : Images DIFF pour une température de 296 K pour des temps $t=7$ (a), $t=15$ (b), $t=32$ (c), $t=42$ (d), $t=63$ (e) et $t=80$ minutes (f).

7.6 Conclusions

L'ensemble de l'étude reportée dans ce chapitre intéresse le magnétisme de films quasi 2D. Grâce à nos mesures de magnétométrie et de microscopie Kerr, nous avons étudié les mécanismes liés à la réorientation de l'aimantation de perpendiculaire à planaire. Dans ces films, après coupure du champ magnétique, l'état uniformément aimanté devient métastable et évolue vers une structure de domaines en rubans avec un temps caractéristique dépendant de la température. La période des rubans diminue avec la température jusqu'à être complètement occultée par un régime de fluctuations associé au phénomène de fusion 2D. Nous avons mis en évidence une phase isotrope entre la température de fusion et la température de fin de réorientation de spin qui est une conséquence de la dynamique du système.

Perspectives

La possibilité d'apporter une contribution à la description des phénomènes de transfert d'énergie dans les processus de dynamique rapide de l'aimantation a motivé mon travail pour la caractérisation des alliages RE-TM et des films ultraminces Pt/Co/Pt.

L'anisotropie magnétique est un paramètre essentiel dans le processus de renversement de l'aimantation. Dans les films ultraminces Pt/Co/Pt, elle peut être contrôlée finement par un processus d'irradiation par des ions hélium. Ces échantillons représentent par conséquent des systèmes modèles pour étudier l'effet de l'anisotropie magnétique sur la dynamique ultrarapide de l'aimantation.

Un des processus permettant un contrôle rapide de l'aimantation est le transfert de spin. Les alliages CoGd sont des candidats particulièrement intéressants pour étudier les effets induits par un courant électrique autour de la température de compensation magnétique. En effet, la théorie prévoit une aimantation à saturation nulle pour une température égale à la température de compensation magnétique. Zhang et Li ont proposé un modèle pour calculer le couple exercé par un courant sur les électrons 3d d'un métal de transition [123]. Il apparaît notamment que le terme d'efficacité de transfert de spin est proportionnel à l'inverse de l'aimantation à saturation. En utilisant les mêmes approximations, nous avons, en collaboration avec Nicolas Charpentier (étudiant en thèse dans le groupe théorie au LPS), réfléchi à un modèle simple pour comprendre l'effet d'un courant électrique sur les moments magnétiques du cobalt et du gadolinium ainsi que sur le couple qui s'applique sur chacun des sous réseaux magnétiques. L'idée est de se convaincre que malgré l'existence d'une température de compensation magnétique, le courant électrique, porté par les électrons 6s du gadolinium et 4s du cobalt, n'agira pas sur les deux sous réseaux de manière équivalente. Nous en déduisons que le couple exercé sur le sous réseau de cobalt est plus efficace que le couple exercé sur le sous réseau de gadolinium. Nous n'attendons par conséquent pas d'effet particulier au voisinage de la température de compensation magnétique. Le raisonnement se base sur le recouvrement des orbitales délocalisées (électrons de conduction) et des orbitales localisées (électrons 4f et 5d du gadolinium et 3d du cobalt). Ce modèle ne considère pas les effets thermiques du courant électrique.

L'activité sur les alliages RE-TM représente le démarrage de la collaboration avec l'équipe de la ligne TEMPO à Soleil et le groupe IDMAG au LPS, qui s'est renforcée avec le projet FEMTOMAG soutenu en 2009 par le triangle de la physique. L'objet du projet regroupe l'installation d'un laser femtoseconde sur la ligne TEMPO pour réaliser en parallèle de la magnétométrie Kerr résolue en temps et de la spectroscopie des photoélectrons à partir d'une même excitation, celle du laser femtoseconde. L'expertise dans le domaine de la désaimantation ultrarapide et de l'utilisation des lasers femtosecondes est apportée par Gregory Malinowski, également porteur du projet FEMTOMAG. Un projet regroupant les

deux équipes est d'ors-et-déjà prévu concernant les alliages CoGd. Il s'agit de déterminer le temps caractéristique de désaimantation du gadolinium dans les alliages $\text{Co}_x\text{Gd}_{1-x}$ en fonction de la composition. Il a été démontré que les temps caractéristiques associés à la désaimantation des métaux 3d et du gadolinium sont très différents (voir figure 7.31). Pour unifier ces deux comportements, Koopmans et al ont proposé un modèle basé sur le

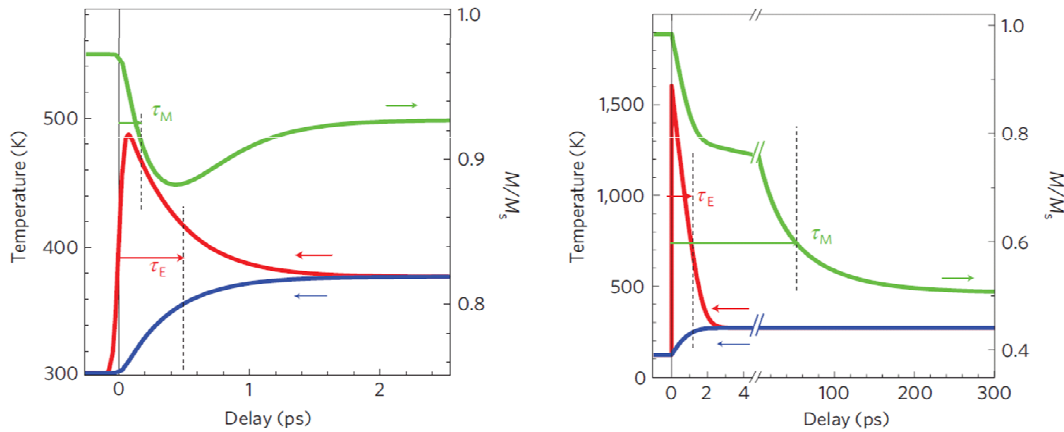


Fig. 7.31 : M/M_s en fonction du temps (courbes vertes) dans le cas du nickel (à gauche) et du gadolinium (à droite), ainsi que la température des électrons (courbes rouges) et la température du réseau (courbes bleue). Ces deux figures sont extraites de l'article de Koopmans et al [124].

modèle à trois températures [4] qui prédit que l'efficacité du processus de désaimantation est liée au rapport T_c/μ_{at} , avec T_c la température de Curie et μ_{at} le moment magnétique atomique [124]. Du fait de la faible température de Curie du gadolinium (293K) et du fort moment du gadolinium ($7.55\mu_B$ à $T=0K$), le temps de désaimantation est supérieur au temps de relaxation électron-phonon, alors que la désaimantation est beaucoup plus rapide dans le cobalt. Les alliages CoGd sont des systèmes particulièrement intéressants car ils mélangent des moments magnétiques portés par des électrons caractérisés par des temps de relaxation très différents (3d du cobalt et 4f du gadolinium). Il est de plus aisé de modifier les valeurs des moments magnétiques portés par les atomes en modifiant la composition de l'échantillon. Le comportement dynamique de l'aimantation du gadolinium peut-être étudié en fonction de la composition de l'alliage, et en fonction de la température, dans le but d'offrir une vérification du modèle de Koopmans et al [124].

Références

- [1] J. Ferré, V. Grolier, P. Meyer, S. Lemerle, A. Maziewski, E. Stefanowicz, S. V. Tarasenko, V. V. Tarasenko, M. Kisielewski, and D. Renard. Magnetization-reversal processes in an ultrathin Co/Au film. *Phys. Rev. B*, 55(22) :15092–15102, Jun 1997.
- [2] F. Sirotti, S. Girlando, P. Prieto, L. Floreano, G. Panaccione, and G. Rossi. Dynamics of surface magnetization on a nanosecond time scale. *Phys. Rev. B*, 61(14) :R9221–R9224, Apr 2000.
- [3] C. H. Back and D. Pescia. Applied physics : Speed limit ahead. *Nature*, 428 :808–809, 2004.
- [4] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot. Ultrafast spin dynamics in ferromagnetic nickel. *Phys. Rev. Lett.*, 76(22) :4250–4253, May 1996.
- [5] E. Beaurepaire, M. Maret, V. Halté, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot. Spin dynamics in CoPt₃ alloy films : A magnetic phase transition in the femtosecond time scale. *Phys. Rev. B*, 58(18) :12134–12137, Nov 1998.
- [6] B. Koopmans, M. van Kampen, J. T. Kohlhepp, and W. J. M. de Jonge. Ultrafast magneto-optics in nickel : Magnetism or optics? *Phys. Rev. Lett.*, 85(4) :844–847, Jul 2000.
- [7] J. Hohlfeld, E. Matthias, R. Knorren, and K. H. Bennemann. Nonequilibrium magnetization dynamics of nickel. *Phys. Rev. Lett.*, 78(25) :4861–4864, Jun 1997.
- [8] A. Scholl, L. Baumgarten, R. Jacquemin, and W. Eberhardt. Ultrafast spin dynamics of ferromagnetic thin films observed by fs spin-resolved two-photon photoemission. *Phys. Rev. Lett.*, 79(25) :5146–5149, Dec 1997.
- [9] G. P. Zhang and W. Hubner. Laser-induced ultrafast demagnetization in ferromagnetic metals. *Phys. Rev. Lett.*, 85(14) :3025–3028, Oct 2000.
- [10] J. Hohlfeld, Th. Gerrits, M. Bilderbeek, Th. Rasing, H. Awano, and N. Ohta. Fast magnetization reversal of GdFeCo induced by femtosecond laser pulses. *Phys. Rev. B*, 65(1) :012413, Dec 2001.
- [11] A. V. Kimel, A. Kirilyuk, P. A. Usachev, R. V. Pisarev, A. M. Balbashov, and Th.

- Rasing. Ultrafast non-thermal control of magnetization by instantaneous photomagnetic pulses. *Nature*, 435 :655–657, 2004.
- [12] C. D. Stanciu, F. Hansteen, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, A. Tsukamoto, A. Itoh, and Th. Rasing. All-optical magnetic recording with circularly polarized light. *Phys. Rev. Lett.*, 99(4) :047601, Jul 2007.
- [13] C. D. Stanciu, A. V. Kimel, F. Hansteen, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk, and Th. Rasing. Ultrafast spin dynamics across compensation points in ferrimagnetic GdFeCo : The role of angular momentum compensation. *Phys. Rev. B*, 73(22) :220402, Jun 2006.
- [14] M. Binder, A. Weber, O. Mosendz, G. Woltersdorf, M. Izquierdo, I. Neudecker, J. R. Dahn, T. D. Hatchard, J.-U. Thiele, C. H. Back, and M. R. Scheinfein. Magnetization dynamics of the ferrimagnet CoGd near the compensation of magnetization and angular momentum. *Phys. Rev. B*, 74(13) :134404, Oct 2006.
- [15] R. W. Schoenlein, S. Chattopadhyay, H. Chong, T. E. Glover, P. A. Heimann, C. V. Shank, A. A. Zholents, and M. S. Zolotarev. Generation of Femtosecond Pulses of Synchrotron Radiation. *Science*, 287(5461) :2237–2240, 2000.
- [16] C. Stamm, T. Kachel, N. Pontius, R. Mitzner, T. Quast, K. Holldack, S. Khan, C. Lupulescu, E. F. Aziz, M. Wietstruk, H. A. Durr, and W. Eberhardt. Femtosecond modification of electron localization and transfer of angular momentum in nickel. *Nature Material*, 7 :704, 2007.
- [17] Myron Bander and D. L. Mills. Ferromagnetism of ultrathin films. *Phys. Rev. B*, 38(16) :12015–12018, Dec 1988.
- [18] K. De’Bell, A. B. MacIsaac, and J. P. Whitehead. Dipolar effects in magnetic thin films and quasi-two-dimensional systems. *Rev. Mod. Phys.*, 72(1) :225–257, Jan 2000.
- [19] S. S. P. Parkin and D. Mauri. Spin engineering : Direct determination of the Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida far-field range function in ruthenium. *Phys. Rev. B*, 44(13) :7131–7134, Oct 1991.
- [20] M. Bauer, R. Lopusnik, J. Fassbender, and B. Hillebrands. Suppression of magnetic-field pulse-induced magnetization precession by pulse tailoring. *Applied Physics Letters*, 76(19) :2758–2760, 2000.
- [21] M. Vomir, L. H. F. Andrade, L. Guidoni, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot. Real space trajectory of the ultrafast magnetization dynamics in ferromagnetic metals. *Phys. Rev. Lett.*, 94(23) :237601, Jun 2005.
- [22] J. Stöhr and H. C. Siegmann. *From fundamentals to nanoscale dynamics*. Springer-Verlag, 2006.

- [23] J. Stöhr and H. C. Siegmann. *From fundamentals to nanoscale dynamics*, chapter 7, pages 221–312. Springer-Verlag, 2006.
- [24] O. S. Anilturk and A. R. Koymen. Element-specific magnetization of a Gd-Co composite system using spin-polarized Auger electron spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 68(2) :024430, Jul 2003.
- [25] B. N. Harmon and A. J. Freeman. Spin-polarized energy-band structure, conduction-electron polarization, spin densities, and the neutron magnetic form factor of ferromagnetic gadolinium. *Phys. Rev. B*, 10(5) :1979–1993, Sep 1974.
- [26] M S S Brooks, L Nordstrom, and B Johansson. 3d-5d band magnetism in rare earth-transition metal intermetallics : total and partial magnetic moments of the RFe₂ (R=Gd-Yb) Laves phase compounds. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 3(14) :2357, 1991.
- [27] M. A. Laguna-Marco, J. Chaboy, and C. Piquer. Experimental determination of the $r(5d)-t(3d)$ hybridization in rare-earth intermetallics. *Phys. Rev. B*, 77(12) :125132, Mar 2008.
- [28] A. Agui, M. Mizumaki, T. Asahi, K. Matsumoto, T. Morikawa, J. Sayama, and T. Osaka. Microscopic magnetic property of perpendicular magnetic films of Dy_xCo_{100-x} measured using soft X-ray magnetic circular dichroism. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 68(11) :2148 – 2152, 2007.
- [29] J. Vogel. *Magnetic and crystal field effects in thin transition metal and rare earth overlayers : an x-ray dichroism study*. PhD thesis, Katholieke Universiteit Nijmegen, 1994.
- [30] T.N. NGuyen. *fabrication and study of magnetic and transport properties of Gd-Co based thin films and Fe/Cr multilayer*. PhD thesis, Joseph Fourier, Grenoble and Vietnam National University, Hanoï, 2007.
- [31] M. Mansuripur and M. Ruane. Mean-field analysis of amorphous rare earth-transition metal alloys for thermomagnetic recording. *IEEE transactions on magnetics*, 22(1) :33–43, Jan 1986.
- [32] M. Aeschlimann, A. Vaterlaus, M. Lutz, M. Stampanoni, and F. Meier. Ultrafast thermomagnetic writing processes in rare-earth transition-metal thin films. *Journal of Applied Physics*, 67(9) :4438–4440, 1990.
- [33] N. Heiman and K. Lee. Magnetic Properties of Ho-Co and Ho-Fe Amorphous Films. *Phys. Rev. Lett.*, 33(13) :778–781, Sep 1974.
- [34] N. Sato. Magnetic properties of amorphous Tb-Fe thin films with an artificially layered structure. *Journal of Applied Physics*, 59(7) :2514–2520, 1986.

- [35] R. C. Taylor. Magnetic properties of amorphous Gd-Fe films prepared by evaporation. *Journal of Applied Physics*, 47(3) :1164–1167, 1976.
- [36] Herd S. R. and Chaudhari P. Electron microscopy of amorphous GdCo alloy thin films. *Physica Status Solidi (a)*, 18(2) :603–611, 1973.
- [37] R. B. van Dover, M. Hong, E. M. Gyorgy, Jr. J. F. Dillon, and S. D. Albiston. Intrinsic anisotropy of Tb-Fe films prepared by magnetron Co sputtering. *Journal of Applied Physics*, 57(8) :3897–3899, 1985.
- [38] T. Egami, C.D Graham, W. Dmowski, P. Zhou, Flanders P.J., E.E. Marinero, H. Notarys, and C. Robinson. Anisotropy and coercivity of amorphous RE-TM films. *IEEE transactions on magnetics*, 23(5) :2269–2271, Sep 1987.
- [39] H. J. Leamy and A. G. Dirks. Microstructure and magnetism in amorphous rare-earth–transition-metal thin films. ii. magnetic anisotropy. *Journal of Applied Physics*, 50(4) :2871–2882, 1979.
- [40] V. G. Harris, K. D. Aylesworth, B. N. Das, W. T. Elam, and N. C. Koon. Structural origins of magnetic anisotropy in sputtered amorphous Tb-Fe films. *Phys. Rev. Lett.*, 69(13) :1939–1942, Sep 1992.
- [41] H. Fu, M. Mansuripur, and P. Meystre. Generic source of perpendicular anisotropy in amorphous rare-earth-transition-metal films. *Phys. Rev. Lett.*, 66(8) :1086–1089, Feb 1991.
- [42] R. J. Gambino and J. J. Cuomo. Selective resputtering-induced anisotropy in amorphous films. *Journal of Vacuum Science and Technology*, 15(2) :296–301, 1978.
- [43] X. Yan, M. Hirscher, T. Egami, and E. E. Marinero. Direct observation of anelastic bond-orientational anisotropy in amorphous $Tb_{26}Fe_{62}Co_{12}$ thin films by x-ray diffraction. *Phys. Rev. B*, 43(11) :9300–9303, Apr 1991.
- [44] SCN. Cheng, MH. Kryder, and MCA. Mathur. Stress related anisotropy studies in dc-magnetron sputtered tb-co and tbfe films. *IEEE transactions on magnetics*, 25(5) :4018–4020, SEP 1989.
- [45] R. Harris, M. Plischke, and M. J. Zuckermann. New model for amorphous magnetism. *Phys. Rev. Lett.*, 31(3) :160–162, Jul 1973.
- [46] R. C. Taylor and A. Gangulee. Magnetization and magnetic anisotropy in evaporated GdCo amorphous films. *Journal of Applied Physics*, 47(10) :4666–4668, 1976.
- [47] J. Schneider and A. Brunsch. O_2 contaminated amorphous FeGd films. *Journal of Applied Physics*, 49(3) :1747–1749, 1978.

- [48] P. Chaudhari, J.J. Cuomo, and R.J. Gambino. Amorphous metallic films for bubble domain applications. *IBM Journal res. Dev.*, 17 :66–68, 1973.
- [49] P. Chaudhari, J.J. Cuomo, and R.J. Gambino. Amorphous metallic films for magneto-optic applications. *Applied Physics Letters*, 22(7) :337–339, 1973.
- [50] R. J. Gambino, J. Ziegler, and J. J. Cuomo. Effects of ion radiation damage on the magnetic domain structure of amorphous GdCo alloys. *Applied Physics Letters*, 24(2) :99–101, 1974.
- [51] S. Lemerle. *Etude de la dynamique de renversement de l'aimantation dans les couches ultra-minces à anisotropie perpendiculaire*. PhD thesis, Université Paris-Sud, Orsay, 1998.
- [52] P. Metaxas. *Domain wall dynamics in ultra thin ferromagnetic films structures : disorder, coupling and periodic pinning*. PhD thesis, Université Paris-Sud, Orsay, 2008.
- [53] JP. Adam. *Du renversement sous champ de l'aimantation d'un nano-plot au déplacement sous courant d'une paroi de domaines dans une nano-piste par microscopie kerr polaire*. PhD thesis, Université Paris-Sud, Orsay, 2008.
- [54] M. Cormier. *Renversement d'aimantation dans des nanostructures par propagation de parois de domaines sous champ magnétique et courant électrique*. PhD thesis, Université Paris-Sud, Orsay, 2008.
- [55] N. W. E. McGee, M. T. Johnson, J. J. de Vries, and J. aan de Stegge. Localized Kerr study of the magnetic properties of an ultrathin epitaxial Co wedge grown on Pt(111). *Journal of Applied Physics*, 73(7) :3418–3425, 1993.
- [56] D. Weller, J. Stöhr, R. Nakajima, A. Carl, M. G. Samant, C. Chappert, R. Mégy, P. Beauvillain, P. Veillet, and G. A. Held. Microscopic Origin of Magnetic Anisotropy in Au/Co/Au Probed with X-Ray Magnetic Circular Dichroism. *Phys. Rev. Lett.*, 75(20) :3752–3755, Nov 1995.
- [57] C. Chappert and P. Bruno. Magnetic anisotropy in metallic ultrathin films and related experiments on cobalt films (invited). *Journal of Applied Physics*, 64(10) :5736–5741, 1988.
- [58] V. Grolier, J. Ferré, A. Maziewski, E. Stefanowicz, and D. Renard. Magneto-optical anisometry of ultrathin cobalt films. *37th Annual conference on magnetism and magnetic materials*, 73(10) :5939–5941, 1993.
- [59] C. Chappert, H. Bernas, J. Ferré, V. Kottler, J.-P. Jamet, Y. Chen, E. Cambril, T. Devolder, F. Rousseaux, V. Mathet, and H. Launois. Planar Patterned Magnetic Media Obtained by Ion Irradiation. *Science*, 280(5371) :1919–1922, 1998.

- [60] F. Cayssol, J. L. Menéndez, D. Ravelosona, C. Chappert, J.-P. Jamet, J. Ferré, and H. Bernas. Enhancing domain wall motion in magnetic wires by ion irradiation. *Applied Physics Letters*, 86(2) :022503, 2005.
- [61] J. Ferré, C. Chappert, H. Bernas, J. P. Jamet, P. Meyer, O. Kaitasov, S. Lemerle, V. Mathet, F. Rousseaux, and H. Launois. Irradiation induced effects on magnetic properties of Pt/Co/Pt ultrathin films. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 198-199 :191 – 193, 1999.
- [62] T. Devolder, J. Ferré, C. Chappert, H. Bernas, J.-P. Jamet, and V. Mathet. Magnetic properties of He^+ -irradiated Pt/Co/Pt ultrathin films. *Phys. Rev. B*, 64(6) :064415, Jul 2001.
- [63] J Ferré, T Devolder, H Bernas, J P Jamet, V Repain, M Bauer, N Vernier, and C Chappert. Magnetic phase diagrams of He ion-irradiated Pt/Co/Pt ultrathin films. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 36(24) :3103, 2003.
- [64] M. Kisielewski, A. Maziewski, M. Tekielak, J. Ferré, S. Lemerle, V. Mathet, and C. Chappert. Magnetic anisotropy and magnetization reversal processes in Pt/Co/Pt films. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 260(1-2) :231 – 243, 2003.
- [65] A. Berger and H. Hopster. Nonequilibrium magnetization near the reorientation phase transition of Fe/Ag(100) films. *Phys. Rev. Lett.*, 76(3) :519–522, Jan 1996.
- [66] R. Allenspach, M. Stampanoni, and A. Bischof. Magnetic domains in thin epitaxial Co/Au(111) films. *Phys. Rev. Lett.*, 65(26) :3344–3347, Dec 1990.
- [67] Ar. Abanov, V. Kalatsky, V. L. Pokrovsky, and W. M. Saslow. Phase diagram of ultrathin ferromagnetic films with perpendicular anisotropy. *Phys. Rev. B*, 51(2) :1023–1038, Jan 1995.
- [68] M. Grioni. *Neutron and X-Ray Spectroscopy*, chapter 6, pages 189–237. Springer-Verlag, 2006.
- [69] C. Cohen-Tannoudji and F Diu, B. Laloë. *Mécanique Quantique*. Hermann, 1997.
- [70] Reiko Nakajima, J. Stöhr, and Y. U. Idzerda. Electron-yield saturation effects in L-edge x-ray magnetic circular dichroism spectra of Fe, Co, and Ni. *Phys. Rev. B*, 59(9) :6421–6429, Mar 1999.
- [71] A.J. Achkar, T. Z. Regier, H. Wadati, Y. Kim, H. Zhang, and D. G. Hawthorn. Bulk sensitive X-ray absorption spectroscopy free of self-absorption effects. *ArXiv e-print*, 1001(1925) :1 – 4, jan 2010.
- [72] C. T. Chen, F. Sette, Y. Ma, and S. Modesti. Soft-x-ray magnetic circular dichroism at the $l_{2,3}$ edges of nickel. *Phys. Rev. B*, 42(11) :7262–7265, Oct 1990.

- [73] B. T. Thole, P. Carra, F. Sette, and G. van der Laan. X-ray circular dichroism as a probe of orbital magnetization. *Phys. Rev. Lett.*, 68(12) :1943–1946, Mar 1992.
- [74] Paolo Carra, B. T. Thole, Massimo Altarelli, and Xindong Wang. X-ray circular dichroism and local magnetic fields. *Phys. Rev. Lett.*, 70(5) :694–697, Feb 1993.
- [75] C. T. Chen, Y. U. Idzerda, H.-J. Lin, N. V. Smith, G. Meigs, E. Chaban, G. H. Ho, E. Pellegrin, and F. Sette. Experimental confirmation of the x-ray magnetic circular dichroism sum rules for iron and cobalt. *Phys. Rev. Lett.*, 75(1) :152–155, Jul 1995.
- [76] J. Stohr and H. Keonig. Determination of spin- and orbital-moment anisotropies in transition metals by angle-dependent x-ray magnetic circular dichroism. *Phys. Rev. Lett.*, 75(20) :3748–3751, Nov 1995.
- [77] G. Y. Guo, H. Ebert, W. M. Temmerman, and P. J. Durham. First-principles calculation of magnetic x-ray dichroism in Fe and Co multilayers. *Phys. Rev. B*, 50(6) :3861–3868, Aug 1994.
- [78] Ruqian Wu, Dingsheng Wang, and A. J. Freeman. First principles investigation of the validity and range of applicability of the x-ray magnetic circular dichroism sum rule. *Phys. Rev. Lett.*, 71(21) :3581–3584, Nov 1993.
- [79] Ruqian Wu and A. J. Freeman. Limitation of the magnetic-circular-dichroism spin sum rule for transition metals and importance of the magnetic dipole term. *Phys. Rev. Lett.*, 73(14) :1994–1997, Oct 1994.
- [80] Y. Huttel, G. van der Laan, T. K. Johal, N. D. Telling, and P. Bencok. Induced V and reduced Co magnetic moments at the V/Co interface. *Phys. Rev. B*, 68(17) :174405, Nov 2003.
- [81] J. Hamrle. *Magneto-optical determination of the in-depth magnetization profile in magnetic multilayers*. PhD thesis, Université Paris-Sud, Orsay, 2003.
- [82] N. Weiss. *Propriétés magnétiques de nanostructures de cobalt absorbées*. PhD thesis, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, 2004.
- [83] S. Sugano and N. Kojima. *Magneto-optics*, chapter 5, pages 137–175. Springer-Verlag, 2000.
- [84] H. Hertz. Ueber einen einfluss des ultravioletten lichtes auf die electrische entladung. *J Annalen der Physik und Chemie*, 267(8) :983–1000, Mar 1887.
- [85] A. Einstein. Über einen die erzeugung und verwandlung des lichtes betreffenden heuristischen gesichtspunkt. *Annalen der Physik*, 322(6) :132–148, Mar 1905.
- [86] J. J. Yeh and I. Lindau. Atomic subshell photoionization cross sections and asymmetry parameters. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 32(1) :1 – 155, 1985.

- [87] C. N. Berglund and W. E. Spicer. Photoemission studies of copper and silver : Theory. *Phys. Rev.*, 136(4A) :A1030–A1044, Nov 1964.
- [88] C. N. Berglund and W. E. Spicer. Photoemission studies of copper and silver : Experiment. *Phys. Rev.*, 136(4A) :A1044–A1064, Nov 1964.
- [89] I. Lindau and W. E. Spicer. The probing depth in photoemission and auger-electron spectroscopy. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, 3(5) :409 – 413, 1974.
- [90] C.J. Powell. Attenuation lengths of low-energy electrons in solids. *Surface Science*, 44(1) :29 – 46, 1974.
- [91] D.H. Shen, Y. Mizokawa, H. Iwasaki, D.F. Shen, T. Numata, and S. Nakamura. XPS Study of Gd-Co and Gd-Fe Amorphous Films. *Japanese Journal of Applied Physics*, 20(10) :L757–L760, 1981.
- [92] J Szade and M Neumann. Electronic structure investigation of Gd intermetallics. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 11(19) :3887–3896, 1999.
- [93] Ch. Roth, F. U. Hillebrecht, H. Rose, and E. Kisker. Linear magnetic dichroism in angular resolved Fe 3p core level photoemission. *Phys. Rev. Lett.*, 70(22) :3479–3482, May 1993.
- [94] B. T. Thole and G. van der Laan. Spin polarization and magnetic dichroism in photoemission from core and valence states in localized magnetic systems. *Phys. Rev. B*, 44(22) :12424–12439, Dec 1991.
- [95] G. van der Laan and B. T. Thole. Spin polarization and magnetic dichroism in photoemission from core and valence states in localized magnetic systems. ii. emission from open shells. *Phys. Rev. B*, 48(1) :210–223, Jul 1993.
- [96] B. T. Thole and Gerrit van der Laan. Spin polarization and magnetic dichroism in photoemission from core and valence states in localized magnetic systems. iii. angular distributions. *Phys. Rev. B*, 49(14) :9613–9631, Apr 1994.
- [97] G. Panaccione, P. Torelli, G. Rossi, G. van der Laan, M. Sacchi, and F. Sirotti. Local magnetic moment coupling of Gd on Fe(100) studied by magnetic dichroism in angular-dependent photoemission. *Phys. Rev. B*, 58(10) :R5916–R5919, Sep 1998.
- [98] W.K. Chu, J. W. Meyer, and M.A. Nicollet. *Backscattering Spectrometry*. Academic Press, INC, 1978.
- [99] A. G. Dirks and H. J. Leamy. Microstructure and magnetism in amorphous rare earth–transition metal thin films. *Journal of Applied Physics*, 49(3) :1735–1737, 1978.

- [100] F. Sirotti. Site web de la ligne tempo au synchrotron soleil. <http://www.synchrotron-soleil.fr/Recherche/LignesLumiere/TEMPO>.
- [101] U. Meyer. Site web de la société ferrovac spécialisée dans l'équipement ultravide. <http://www.ferrovac.ch/>.
- [102] A. Moen, D. G. Nicholson, B. S. Clausen, P. L. Hansen, A. Molenbroek, and G. Steffensen. X-ray Absorption Spectroscopic Studies at the Cobalt K-Edge on a Reduced Al₂O₃-Supported Rhenium-Promoted Cobalt Fischer-Tropsch Catalyst. *Chemistry of Materials*, 9(5) :1241–1247, may 1997.
- [103] H. Magnan, D. Chandesris, G. Rossi, G. Jezequel, K. Hricovini, and J. Lecante. Determination of the local order in amorphous cobalt films. *Phys. Rev. B*, 40(14) :9989–9992, Nov 1989.
- [104] H. Li-Shing, S.C. Chung, and G.H. Gweon. Electronic-Structure Study of a Co-Al Alloy. *Journal of Taiwan normal university*, 46(2) :13–22, 2001.
- [105] P. Hansen, C. Clausen, G. Much, M. Rosenkranz, and K. Witter. Magnetic and magneto-optical properties of rare-earth transition-metal alloys containing Gd, Tb, Fe, Co. *Journal of Applied Physics*, 66(2) :756–767, 1989.
- [106] H J Leamy and A G Dirks. The microstructure of amorphous rare-earth/transition-metal thin films. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 10(8) :L95, 1977.
- [107] F. Nolting. Site web de la ligne sim au sls. <http://sls.web.psi.ch/view.php/beamlines/sim/index.html>.
- [108] F. C. Vicentin, S. Turchini, F. Yubero, J. Vogel, and M. Sacchi. Absorption cross sections at the M_{4,5} edges of rare earths : a soft X-ray transmission experiment. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, 74(3) :187 – 194, Apr 1995.
- [109] G. Champion, N. Lalioti, V. Tangoulis, M-A. Arrio, P. Sainctavit, F. Villain, A. Caneschi, D. Gatteschi, C. Giorgetti, F. Baudelet, M. Verdagner, and C. Cartier dit Moulin. XmcD for monitoring exchange interactions. the role of the gd 4f and 5d orbitals in metal-nitronyl nitroxide magnetic chains. *Journal of the American Chemical Society*, 125(27) :8371–8376, 2003.
- [110] M. Mizumaki, K. Yano, I. Umehara, F. Ishikawa, K. Sato, A. Koizumi, N. Sakai, and T. Muro. Verification of Ni magnetic moment in GdNi₂ Laves phase by magnetic circular dichroism measurement. *Phys. Rev. B*, 67(13) :132404, Apr 2003.
- [111] D. Nelson. Study of melting in two dimensions. *Phys. Rev. B*, 18(5) :2318–2338, Sep 1978.
- [112] D. Nelson and B. Halperin. Dislocation-mediated melting in two dimensions. *Phys. Rev. B*, 19(5) :2457–2484, Mar 1979.

- [113] S. Brazovskii. Dislocation-mediated melting in two dimensions. *Sov. Phys. JETP*, 41(1) :85–89, Jan 1975.
- [114] O. Portmann, A. Vaterlaus, and D. Pescia. Observation of stripe mobility in a dipolar frustrated ferromagnet. *Phys. Rev. Lett.*, 96(4) :047212, Feb 2006.
- [115] K. von Bergmann, M. Bode, and R. Wiesendanger. Coverage-dependent spin reorientation transition temperature of the Fe double-layer on W(1 1 0) observed by scanning tunneling microscopy. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 305(2) :279 – 283, 2006.
- [116] K. A. Seu, S. Roy, J. J. Turner, S. Park, C. M. Falco, and S. D. Kevan. Cone phase and magnetization fluctuations in au/co/au thin films near the spin-reorientation transition. *Phys. Rev. B*, 82(1) :012404, Jul 2010.
- [117] V. Mathet, T. Devolder, C. Chappert, J. Ferré, S. Lemerle, L. Belliard, and G. Guentherodt. Morphology and magnetic properties of Pt/Co/Pt sandwiches grown by argon sputter deposition. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 260(1-2) :295 – 304, 2003.
- [118] A. Kashuba and V. L. Pokrovsky. Stripe domain structures in a thin ferromagnetic film. *Phys. Rev. Lett.*, 70(20) :3155–3158, May 1993.
- [119] Y.A. Fridman, D.V. Spirin, and P.N. Klevets. Reorientation of magnetization with temperature in 2D ferromagnets. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 253 :105 – 110, 2002.
- [120] Stan Konings, Jorge Miguel, Jeroen Luigjes, Hugo Schlatter, Huib Luigjes, Jeroen Goedkoop, and Vishwas Gadgil. Lock in of magnetic stripe domains to pinning lattices produced by focused ion-beam patterning. *Journal of Applied Physics*, 98(5) :054306, 2005.
- [121] Stan Konings, Jorge Miguel, Jeroen Goedkoop, Julio Camarero, and Jan Vogel. Magnetic domain pinning in an anisotropy-engineered GdTbFe thin film. *Journal of Applied Physics*, 100(3) :033904, 2006.
- [122] ImageJ. Site web du projet imagej. <http://rsbweb.nih.gov/ij/>.
- [123] S. Zhang and Z. Li. Roles of nonequilibrium conduction electrons on the magnetization dynamics of ferromagnets. *Phys. Rev. Lett.*, 93(12) :127204, Sep 2004.
- [124] B. Koopmans, G. Malinowski, F. Dalla Longa, D. Steiauf, M. Fahnle, T. Roth, M. Cinchetti, and M. Aeschlimann. Explaining the paradoxical diversity of ultrafast laser-induced demagnetization. *Nature Material*, 9 :259, 2010.