HAL
open science

Réflectivité magnétique résonante de rayons X mous : une sonde de la distribution d'aimantation complexe au sein de films minces

Emmanuelle Jal

To cite this version:

Emmanuelle Jal. Réflectivité magnétique résonante de rayons X mous : une sonde de la distribution d'aimantation complexe au sein de films minces. Physique [physics]. Université de Grenoble, 2013. Français. NNT : 2013GRENY015 . tel-00952868

HAL Id: tel-00952868

https://theses.hal.science/tel-00952868v1

Submitted on 27 Feb 2014

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.

UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

Spécialité : **Physique de la matière condensée et du rayonnement**

Arrêté ministériel :

Présentée par

Emmanuelle JAL

Thèse dirigée par **Jean-Marc TONNERRE**

préparée au sein **de l'Institut Néel**
et de **l'Ecole doctorale de physique de Grenoble**

Réflectivité Magnétique Résonante de rayons X mous : une sonde de la distribution d'aimantation complexe au sein de films minces

Thèse soutenue publiquement le **26 Septembre 2013**,
devant le jury composé de :

Monsieur Jan VOGEL
Directeur de recherche, Institut Néel, Président
Monsieur Manuel BIBES
Chargé de recherche, Unité mixte de Physique CNRS/Thales, Rapporteur
Monsieur Frédéric OTT
CEA, Laboratoire Léon Brillouin, Rapporteur
Madame Karine DUMESNIL
Chargée de recherche, Institut Jean Lamour, Examinateur
Monsieur Maurizio SACCHI
Directeur de recherche, Institut des Nanosciences de Paris, Examinateur
Monsieur Jean-Marc TONNERRE
Directeur de recherche, Institut Néel, Directeur de thèse

Tout d'abord j'aimerais remercier Frédéric Ott et Manuel Bibes d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ma thèse. Merci pour les commentaires, suggestions, corrections apportés ainsi que pour les discussions qui ont permis d'améliorer la qualité de mon manuscrit. Merci également à Jan Vogel d'avoir présidé mon jury ainsi qu'à Maurizio Sacchi et Karine Dusmesnil pour leurs contributions.

Ce travail de thèse a été réalisé au sein de l'Institut Néel dans le département MCMF (Matière Condensée - Matériaux et Fonctions). Je remercie Alain Fontaine et Alain Schuhl de m'avoir accueillie au sein de l'institut, ainsi que Benoit Boulanger et Alain Ibanez pour leur accueil au sein du département. Je pense également à Muriel Boyer qui a su rendre plus facile la partie administrative et les questions pratiques.

Durant ces trois années j'ai eu la chance d'avoir une activité d'enseignement à PHELMA (PHysique, ELectronique et MAtériaux), école du groupe Grenoble INP (Institut National Polytechnique). Je tiens à remercier Stéphane Pignard qui m'a aidé à franchir le pas qu'il y a entre le monde des élèves et le monde des enseignants, et qui m'a permis d'enseigner des matières proches de ma thématique et qui me plaisaient. Je remercie également toutes les équipes pédagogiques qui m'ont encadrées lors de ces enseignements.

Je voudrais particulièrement remercier Jean-Marc Tonnerre pour son soutien et sa clairvoyance tout au long de cette thèse. Son aide et sa compréhension, notamment sur la technique de Réflectivité Magnétique Résonante de rayons X, sur l'analyse des nombreuses données expérimentales, et sur toutes les discussions scientifiques qui ont permis de mener mon projet à bien et de pouvoir faire ressortir l'essentiel. Un grand merci pour la découverte du monde du synchrotron que tu as su me faire aimer, et les nombreuses discussions métaphysiques durant nos nuits de manip.

J'aimerais également remercier Stéphane Grenier pour son aide sur le programme Dyna, et sans qui je n'aurais pas pu être si efficace lors de l'analyse. Je le remercie également pour les nombreuses précisions concernant la compréhension de la physique qui se cache derrière la réflectivité magnétique, et pour son soutien sur l'appareil de réflectivité RESOXS.

Je remercie grandement nos collègues du Max Planck Institut de Halle, sans qui les expériences auraient été impossibles faute d'échantillons. Plus particulièrement, je tiens à remercier Marek Przybylski pour son accueil à plusieurs reprises à Halle, son sens physique du magnétisme et sa connaissance du domaine ainsi que pour les nombreuses discussions scientifiques qui ont permis d'aboutir à des résultats consistants. Je remercie chaleureusement Maciek Dabrowski pour son engouement à élaborer de nouveaux échantillons Au/Fe/Ag(116) "à la demande", à les caractériser par MOKE (Effet Kerr Magnéto-Optique), et pour sa patience lors de ses explications sur la croissance et la caractérisation de ceux-ci. Un grand merci à Carlos Viol Barbosa pour sa très forte implication dans la fabrication, la mesure et l'analyse des échantillons de Fe/Cu(100), ainsi qu'à Holger Meyerheim.

La réflectivité magnétique résonante de rayons X mous étant une technique nécessitant le rayonnement synchrotron, je remercie toutes les personnes qui m'ont permis d'effectuer de bonnes mesures de réflectivité, notamment Urs Staub du SLS et Flora Yakhou de l'ESRF pour leur accueil et leur soutien lors des expériences sur les lignes SIM et ID08 respectivement.

Un très grand merci à Nicolas Jaouen pour son accueil et sa collaboration sur la ligne SEXTANTS où le réflectomètre RESOXS est exploité. Merci pour ses explications sur le fonctionnement d'une ligne de lumière de rayons X mous, pour les nombreuses heures passées à gérer l'interface utilisateur et à créer les programmes permettant d'effectuer des mesures "standards", ainsi que pour sa présence permanente lors des problèmes techniques liés au synchrotron ou à RESOXS. Je tiens également à remercier Maurizio Sacchi pour ses conseils et ses discussions concernant les mesures de réflectivité, ainsi que Horia Popescu et Roland Gaudemer pour leur soutien technique et logistique lors de la préparation et pendant les expériences.

Je remercie l'équipe du SERAS sans qui RESOXS n'existerait pas, et qui continue à relever nos défis pour améliorer et équiper le diffractomètre de nouvelles fonctionnalités. Merci à Pierre Taunier, Jérôme Lapicière, et Emmanuel Roy, pour leurs études techniques ainsi qu'à Patrick Tabogga, Phillipe Jaquet, et Igor Kapoujyan, pour leurs réalisations.

Je remercie également Stéphanie Garaudée pour son soutien technique concernant RESOXS.

Je remercie l'équipe SIN : Hélio Tolentino, Aline Ramos, et Maurizio De Santis pour leurs discussions à propos du magnétisme et du synchrotron, Yves Joly pour ses remarques très pertinentes concernant le phénomène de résonance, Marie-Claire pour ses discussions engagées et ses conseils, ainsi que Aude Bailly et Farid Fettar. Un remerciement spécial à tous pour la place que vous m'avez réservée au sein de l'équipe et pour les nombreuses conférences/écoles auxquelles vous m'avez permis de participer. De manière plus générale, je remercie toutes les personnes du département MCMF qui m'ont permises de me sentir à ma place au sein du laboratoire.

Je remercie tous les thésards, post-docs, et stagiaires qui ont rendu les poses conviviales et avec qui j'ai partagé de nombreux moments : Marta Elzo, avec qui j'ai pu parler de RESOXS et du synchrotron, Anne Lamirand, Adrien Borne, Medhi Mevel, Vincent Kemlin, Joséphine Zimmermann avec qui nous avons refait le monde des thésards en discutant autour de quelques bières. Denis Bredontiot, Vinicius Guimarez, Sophie Cersoy, Laurianne Religieux, Issam Laoufi, Audray, Oumed, Julien, et Yan, pour leur sympathie et leur bonne humeur.

Je remercie également tous mes amis "d'avant", et notamment mes amis d'école (d'ingénieur), de prépa, et d'enfance avec qui j'ai pu décompresser et passer de très bons moments : Amélie, Arthur, Alex, Coco, Alix, Hana, Hélène, Ben, Clément(s), Jilou, Bobby, Jérémy, Camille, Ludo, Mathieu, Emilie, Sandrine, Sylvain, Solen, Sophie, Lucille, Delphine(s), Marion, Plune, Tintan, Tachou, FX, Svéta, Eva, Léa et Esther.

Merci à David qui m'a supportée pendant ces trois années, et qui a enduré mes craintes, et mes plaintes. Merci pour les très bons moments que tu m'as faits passer, malgré leur souvent trop courte durée. Merci à sa famille qui m'a accueillie et soutenue.

Enfin, un énorme merci à ma famille qui m'a soutenue inconditionnellement dans les moments difficiles. A mes parents, Laurence et Jean-François qui ont su trouver les mots pour me réconforter lors des passages à vides, et qui m'ont toujours aidée à leur façon. A mon frérot, Jean-Baptiste qui a toujours été là pour m'épauler et me montrer son admiration.

Sans toutes les personnes que j'ai citées, et toutes celles que je n'ai pas mentionnées, je n'aurais pas pris autant de plaisir à effectuer cette thèse. Merci.

Table des matières

Introduction **1**
Bibliographie 4

1 Interaction Rayonnement - Magnétisme **5**
1.1 Conventions, Définitions 6
1.1.1 Le rayonnement électromagnétique : dualité onde-corpuscules 6
1.1.2 Section efficace 7
1.1.3 Ondes électromagnétiques 8
1.1.4 Propriétés des Photons 10
1.1.5 Bases de la matière condensée 11
1.2 Interactions matière condensée - rayons X 12
1.2.1 Absorption 13
1.2.2 Diffusion 15
1.2.3 Diffusion résonante 17
1.3 Interaction matière magnétique - rayons X 19
1.3.1 Propriétés magnétiques 19
1.3.2 Interaction avec un rayonnement 23
1.4 Cas particulier de la réflectivité magnétique résonante de Rayons X . 26
1.4.1 Théorie dynamique : point de vue optique 29
1.4.2 Théorie cinématique : point de vue diffusion 32
Bibliographie 35

2 Films magnétiques ultra-minces **39**
2.1 Introduction 40
2.2 Propriétés 43
2.2.1 Croissances et propriétés structurales 43
2.2.2 Propriétés magnétiques 46
2.2.3 Cas particulier du Fe 53
2.3 Caractérisation 54
2.3.1 Laboratoire 54
2.3.2 Grands instruments 56
Bibliographie 60

3 Dispositifs expérimentaux et Programmes d'analyse **63**
3.1 Préparation des films ultraminces 64
3.1.1 Bâtis de croissance 64
3.1.2 Calibration des sources 66
3.1.3 Préparation du substrat 66
3.1.4 Fabrication de l'échantillon 67
3.1.5 Caractérisation magnétique in situ : MOKE 68
3.2 Production des Rayons X, cas particulier du synchrotron 70
3.2.1 Production et propriétés du rayonnement synchrotron 70
3.2.2 SEXTANTS : une ligne de lumière de rayons X mous 71
3.3 Dispositifs de SXRMR 72
3.3.1 Caractéristiques générales 73
3.3.2 RESOXS 75
3.3.3 Configurations Expérimentales 81
3.4 Analyse 83
3.4.1 Analyse qualitative 84
3.4.2 Analyse quantitative : DYNA 88
Bibliographie 98

4 Détermination du profil magnétique de films minces de Au/Fe/Ag(116) par SXRMR **101**
4.1 Motivations 102
4.1.1 Anisotropie et états de puits quantiques 102
4.1.2 Résultats MOKE 103
4.2 Expérience de XRMR 106
4.2.1 Echantillons et configurations 106
4.2.2 Analyse qualitative 110
4.2.3 Conclusions 118
4.3 Analyse quantitative 119
4.3.1 Structure 120
4.3.2 Magnétisme des échantillons à saturation magnétique 123
4.3.3 Magnétisme des échantillons à rémanence 135
4.3.4 Conclusions, synthèse 142
4.4 Discussions 147
4.4.1 Augmentation de l'aimantation aux interfaces 147
4.4.2 Composante magnétique hors du plan 149
4.4.3 Composante magnétique dans le plan : domaines 151
Bibliographie 154

5 Profil d'aimantation complexe et dépendance en température : Fe/Cu(100) **159**
5.1 Le système Fe/Cu(100) : un archétype de distribution d'aimantation complexe 160
5.1.1 Etat de l'art 160
5.1.2 Apport des expériences SXRMR 162
5.2 Expériences 164

5.2.1 Préparation de l'échantillon 164
5.2.2 XRMR : Conditions expérimentales et configurations 164
5.2.3 Analyse qualitative 166
5.3 Analyse quantitative 168
5.3.1 Structure 168
5.3.2 Modèle magnétique 172
5.3.3 Discussion, Conclusion 176
Bibliographie 180

Conclusion **183**

Annexes **187**

A Réflectivité Magnétique Résonante de Rayons X : XRMR **191**
A.1 Définitions 191
A.2 Principales relations 192
A.3 Relations entre l'indice optique n et le facteur de diffusion atomique f : problèmes de signes 192
A.4 Absorption et coefficients f'' et β. 193
A.5 Théorie cinématique 194
A.5.1 Base linéaire 194
A.5.2 Base circulaire 196
A.5.3 Calcul des asymétries pour différentes configurations 196
A.6 Théorie dynamique 199
A.6.1 Résolution des équations de Maxwell 199
A.6.2 Conditions aux limites, et rugosité 203
A.6.3 Matrice de Propagation 206
A.6.4 Réflectivité 206
Bibliographie 208

B Alignement de l'échantillon par rapport au faisceau synchrotron **209**

C Expérience XRMR Fe/Ag(116) **213**
C.1 Orientations des échantillons 213
C.2 Récapitulatif des propriétés pour toutes les épaisseurs 214
C.3 Autres expériences 215
C.3.1 PNR 215
C.3.2 XMCD 219

Introduction

Les interactions électroniques dans les solides sont à l'origine de nombreuses propriétés physique intéressantes telle que la supraconductivité ou le magnétisme. L'aimantation telle que tout le monde la connait : attraction de deux aimants, est un phénomène connu depuis l'antiquité et a été utilisé dans un premier temps pour construire un objet qui permette de se repérer sur la terre : la boussole. De nos jours, les implications du magnétisme et des matériaux magnétiques pour la société sont importantes économiquement et très variées puisque ces matériaux sont utilisés autant pour le stockage d'informations dans les disques durs que pour la construction de transformateurs et de moteurs. Dans l'industrie du stockage de l'information, la qualité, la rapidité et la densité des données se doivent d'être de plus en plus performantes. Dans ce cadre, le domaine du nanomagnétisme est porté aussi bien par son intérêt en physique fondamentale que par l'industrie du stockage de l'information qui se place aujourd'hui dans la même branche d'attractivité que les semiconducteurs [1].

Scientifiquement de nombreuses découvertes permettant l'amélioration des applications industrielles ont été faites, comme la magnétorésistance géante, le décalage d'échange ou le contrôle de l'aimantation grâce à un courant électrique. Les aspects de transport électroniques, concernant la charge de l'électron et les champs électriques, couplés au magnétisme (spin de l'électron et champs magnétiques) ont permis l'avancée de l'électronique de spin (ou spintronique) [2]. Cependant beaucoup de questions concernant les interactions et les propriétés microscopiques de ces matériaux restent sans réponses, et certains phénomènes ne sont pas encore compris et expliqués. Dans le domaine du magnétisme, de nombreux nouveaux développements sont liés à la capacité de préparer des matériaux dont les propriétés dépendent de la réduction de dimension. Aujourd'hui les films ultraminces sont les briques de bases pour la construction des hétérostuctures qui sont étudiées dans le cadre de la spintronique. La recherche sur les films ultra minces magnétiques est essentielle pour étudier les propriétés magnétiques des hétérostructures, et des couplages entre films, et comprend l'étude de phénomènes tels que l'anisotropie, les transitions de phases, les phénomènes quantiques, et les effets d'interfaces.

Afin d'étudier ces propriétés, la sensibilité du rayonnement électromagnétique aux propriétés magnétiques de la matière est souvent utilisée. La modification d'un rayonnement électromagnétique par un matériau magnétique, découverte en 1845 par Faraday [3], est plus connue sous le terme d'effet magnéto-optique, et est couramment utilisée en laboratoire. Ce n'est qu'en 1972 que les premiers effets magnétiques sur un diagramme de diffraction de rayons X furent observés par F. de Bergevin et M.

Brunel [4], et il fallu attendre l'avênement des synchrotrons de troisième génération pour que cette interaction rayons X-matière magnétique soit suffisament intense. Le développement d'expérience de dichroïsme magnétique, de photo-émission résolue en spin, de diffusion résonante élastique et inélastique, et de réflectivité est alors devenu indispensable pour remonter à des propriétés magnétiques jusque là inaccessibles [5] et étudier des films minces et des nano-objets magnétiques.

L'étude présentée dans ce manuscrit s'inscrit dans le cadre du développement d'une technique basée sur la diffusion magnétique résonante dans la gamme des rayons X mous. C'est en effet dans cette gamme d'énergie que se situent les seuils $L_{2,3}$ qui permettent de sonder spécifiquement les électrons $3d$ qui portent le magnétisme dans les métaux de transitions comme le Fe, Ni, Co qui sont aussi les éléments magnétiques les plus courants. Ce manuscrit se situe dans le prolongement des travaux de thèse de Laurent Sève [6] puis de Nicolas Jaouen [7]. L'étude proposée s'attache à explorer les possibilités de la réflectivité magnétique résonante de rayons X mous (SXRMR : Soft X-ray Resonant Magnetic Reflecivity) utilisée dans plusieurs configurations expérimentales afin d'être sensible aux trois composantes d'aimantation pour des configurations magnétiques complexes. Dans le cadre de l'étude de films minces, avoir accès à la direction et la norme des moments magnétiques en fonction de leurs positions en profondeur dans le film mince est essentiel. La réflectivité magnétique résonante de rayons X mous est une technique sensible aux propriétés électroniques et magnétiques d'un élément et d'un type d'orbitale spécifique. Elle apporte en outre des informations intrinsèquement résolues spatialement le long de l'axe de croissance d'un film mince et permet donc de distinguer par exemple les propriétés d'interfaces par rapport aux propriétés du centre de la couche. Peu de techniques permettent d'accèder à une telle information.

Afin de montrer les capacités de la SXRMR, deux études de films minces de fer magnétiques ont été réalisées. La première concerne des couches de fer cubique centré dont les propriétés d'anisotropie sont modifiées par la morphologie du substrat, l'effet du confinement et la présence d'une couche de couverture. Ces couches présentent également une transition de réorientation de spin. La seconde étude s'intéresse aussi à une couche de fer, mais de structure cubique face centrée, dont la structure magnétique intrinsèque est plus compliquée et pour laquelle on cherchera à étudier la dépendance en température pour chaque couche de fer.

Organisation du mémoire

Le **chapitre 1** décrit l'interaction rayonnement-matière magnétique. Dans un premier temps, nous expliquerons ce qu'est un rayonnement électromagnétique et plus particulièrement les caractéristiques des rayons X. Nous donnerons également les bases de la matière condensée qui seront nécessaires pour comprendre correctement l'interaction avec un rayonnement. Ces interactions seront décrites dans un deuxième temps, de manière générale, puis dans un troisième temps, les principales notions concernant les matériaux magnétiques seront données afin d'expliquer l'interaction Rayons X-matière magnétique. Enfin, une dernière partie présentera de manière plus poussée ce qu'est la réflectivité magnétique résonante de rayons X mous (SXRMR).

Le **chapitre 2** présente l'intérêt des films minces magnétiques. Il permet de sensibiliser le lecteur aux fortes modifications structuelles et magnétiques qu'apporte la diminution de l'épaisseur. En effet, le fait d'étudier des matériaux ayant une épaisseur de l'ordre du nanomètre, implique de ne plus négliger les effets d'interfaces, et d'être sensible à des phénomènes quantiques. Ce chapitre permet également de faire une liste exhaustive des caractérisations couramment utilisées dans l'étude de ces films minces.

Le **chapitre 3** rassemble les détails expérimentaux ainsi que les raisonnements utilisés durant l'analyse des données expérimentales. Tout d'abord, l'élaboration des films minces est présentée, puis les caractéristiques du rayonnement synchrotron sont introduites. Les dispositifs de réflectivité que nous avons utilisés pour effectuer des expériences de SXRMR, et plus particulièrement RESOXS, sont ensuite décrits. Enfin, la dernière partie détaille l'analyse des résultats expérimentaux : tout d'abord de manière qualitative, puis ensuite de manière quantitative.

Le **chapitre 4** est consacré à l'étude d'un film mince de Fe déposé sur un substrat vicinal d'Ag(116) et recouvert par quinze monocouches d'Au. Il montre qu'en utilisant plusieurs configurations expérimentales lors des mesures de réflectivité magnétique résonante, il est possible d'établir un profil d'aimantation résolu en profondeur et sensible aussi bien aux variations de la norme de l'aimantation qu'aux variations de sa direction. Deux résultats principaux sont issus de cette étude : une augmentation de l'aimantation de 20 à 30% dans les deux à trois monocouches près des interfaces d'Au et d'Ag, et l'inhomogénéité de la composante hors du plan à basse température.

Enfin, le **chapitre 5** présente l'étude effectuée par réflectivité magnétique résonante sur un film mince de six monocouches de Fe sur un substrat de Cu(100) et recouvert par une couche protectrice d'Au. Déposée sur du Cu(100) la phase cristallographique du Fe est cubique face centrée, ce qui change radicalement ses propriétés magnétiques. La réflectivité magnétique résonante permet de montrer que l'aimantation a une structure complexe avec deux couches ferromagnétiques à l'interface supérieure et une structure de type antiferromagnétique en profondeur. De plus, l'analyse de la dépendance en température du profil magnétique montre que selon la position de la monocouche dans le film mince, la variation en température de son aimantation n'est pas la même.

Bibliographie

[1] S.D. Bader and S.S.P. Parkin. Spintronics. *Annual Review of Condensed Matter Physics*, 1(1) :71–88, 2010.

[2] Olivier Fruchart. L'électronique de spin - un renouveau de la science et de la technologie du magnétisme. *Reflets de la physique*, 16 :4–5, 2009.

[3] Michael Faraday. Experimental researches in electricity. nineteenth series. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, 136 :1–20, January 1846.

[4] F. de Bergevin and M. Brunel. Diffraction of x-rays by magnetic materials. i. general formulae and measurements on ferro- and ferrimagnetic compounds. *Acta Crystallographica Section A*, 37(3) :314–324, May 1981.

[5] J.B. Kortright, D.D. Awschalom, J. Stöhr, S.D. Bader, Y.U. Idzerda, S.S.P. Parkin, Ivan K. Schuller, and H.-C. Siegmann. Research frontiers in magnetic materials at soft x-ray synchrotron radiation facilities. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 207(103) :7–44, December 1999.

[6] Laurent Sève. *Diffraction magnétique résonante des rayons X. Applications aux multicouches et films minces.* PhD thesis, Université Joseph Fourier, Grenoble), 1997.

[7] Nicolas Jaouen. *Etude de nanostructures magnétiques par réflectivité magnétique résonante des rayons X.* PhD thesis, Université Joseph Fourier-grenoble 1, 2001.

Chapitre 1

Interaction Rayonnement - Magnétisme

Sommaire

1.1 Conventions, Définitions 6

1.1.1 Le rayonnement électromagnétique : dualité onde-corpuscules 6

1.1.2 Section efficace 7

1.1.3 Ondes électromagnétiques 8

1.1.4 Propriétés des Photons 10

1.1.5 Bases de la matière condensée 11

1.2 Interactions matière condensée - rayons X 12

1.2.1 Absorption 13

1.2.2 Diffusion 15

1.2.3 Diffusion résonante 17

1.3 Interaction matière magnétique - rayons X 19

1.3.1 Propriétés magnétiques 19

1.3.2 Interaction avec un rayonnement 23

1.4 Cas particulier de la réflectivité magnétique résonante de Rayons X 26

1.4.1 Théorie dynamique : point de vue optique 29

1.4.2 Théorie cinématique : point de vue diffusion 32

Bibliographie 35

Pour sonder la matière à des échelles inférieures au micromètre, on ne peut plus se servir de nos yeux, et il faut utiliser une sonde extérieure. Cette sonde est souvent un faisceau de photons, neutrons ou électrons. C'est l'interaction de ce rayonnement avec la matière qui nous permet de remonter à des informations sur le matériau telles que structure, propriétés de transports, ou propriétés magnétiques. Dans ce travail de thèse, nous nous sommes intéressés uniquement aux rayonnements électromagnétiques et plus particulièrement à l'interaction des rayons X avec des films minces magnétiques. La technique que nous avons le plus utilisée pour sonder le magnétisme des films minces est la réflectivité magnétique résonante de rayons X.

Cette technique de réflectivité est apparue dans les années 1950. Du fait de la réflexion presque totale d'un faisceau par un miroir (une surface plane ?), la longueur de pénétration de l'onde électromagnétique dans le matériau est faible et le faisceau réfléchi donne alors des informations sur la composition et la structure de la surface. Avec la multiplication des films minces et ultra-minces dans de nombreuses applications, la caractérisation des surfaces et interfaces a pris une grande importance. En effet, dans des matériaux de plus en plus minces, les effets de bords ne peuvent plus être négligés et donnent naissance à de nouvelles propriétés physiques, comme nous le verrons dans le chapitre suivant. Ces propriétés sont souvent directement reliées à la qualité de la surface ou de l'interface, et donc une étude structurale est nécessaire pour comprendre correctement la physique mise en jeu dans les films ultraminces.

Afin de comprendre ce qu'est la réflectivité magnétique de rayons X, nous allons tout d'abord introduire les notions de base des ondes électromagnétiques et de la matière condensée. On montrera ensuite comment les rayons X interagissent avec la matière de manière générale, puis plus précisément avec un matériau magnétique. Dans ce dernier cas, nous aurons besoin de rappeler quelques notions de base du magnétisme. Enfin, nous parlerons du cas particulier de la réflectivité magnétique résonante, et nous détaillerons l'utilisation de deux théories : optique et cinématique.

1.1 Conventions, Définitions

Le but de cette section est d'expliquer des notions couramment utilisées en physique de la matière condensée afin de comprendre les principes décrits tout au long du manuscrit. Nous en profiterons pour définir les conventions et les notations utilisées. Les quatre premières parties sont consacrées à la description du rayonnement électromagnétique, tandis que la dernière partie rappelle les concepts de la physique de la matière condensée dont nous aurons besoin par la suite. Les notions abordées ci-dessous sont largement traitées et développées dans des ouvrages tels que [1, 2, 3] pour l'interaction rayonnement matière, et [4, 5, 6] pour la matière condensée.

1.1.1 Le rayonnement électromagnétique : dualité onde-corpuscules

Le rayonnement le plus connu est la lumière, qui fait partie du spectre plus large du rayonnement électromagnétique comprenant également les rayons X, et les rayons gamma, mais il en existe d'autre comme les rayonnements de neutrons et d'électrons.

Dans ce manuscrit nous parlerons uniquement du rayonnement électromagnétique, et plus particulièrement des rayons X. Lorsque ce rayonnement est unidirectionnel on parle de faisceau. Un rayonnement peut être vu de deux manières. Soit comme une onde avec une périodicité et donc une longueur d'onde et une fréquence propre, soit comme un ensemble de particules ayant une énergie et une polarisation propre. C'est ce qu'on appelle la dualité onde-corpuscule. Cette dualité est indispensable pour expliquer les différents phénomènes dus aux interactions avec la matière.

Un faisceau de rayons X correspond à un ensemble de photons ayant une énergie et une polarisation bien définies ainsi qu'à un ensemble d'ondes électromagnétiques ayant un champ électrique couplé à un champ magnétique. La relation entre ces deux visions est réalisée par l'intermédiaire de l'énergie propre d'un photon qui peut s'exprimer à l'aide de la fréquence du rayonnement :

$$E = h\nu \tag{1.1}$$

où h est la constante de Planck égale à $6.6210^{-34} J.s$, et ν la fréquence de l'onde électromagnétique :

$$\nu = \frac{c}{\lambda} = \frac{ck}{2\pi} \tag{1.2}$$

avec c la vitesse de la lumière c'est à dire d'un photon, λ la longueur d'onde et $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ la norme du vecteur d'onde $\vec{k}$. Lorsque ce rayonnement interagit avec de la matière, on modélise cette interaction par la section efficace.

1.1.2 Section efficace

Dans le cas d'un faisceau de rayons X interagissant avec un ensemble d'atomes, la section efficace exprime le rapport entre l'énergie rayonnée pendant l'interaction et le flux d'énergie incidente [1]. Elle dépend donc du nombre de photons dont la direction, la polarisation et/ou l'énergie ont été modifiées lors du processus d'interaction ainsi que de l'énergie et du flux de photons incidents. Elle est donnée en unité de surface. La section efficace va donc être différente, en fonction du type d'interactions : diffusion, diffraction, absorption (définies plus loin). C'est la comparaison entre le calcul théorique et la mesure expérimentale de cette section efficace qui permet de modéliser les effets observés et d'en déduire les propriétés des solides examinés. La section efficace permet donc de faire le lien entre l'expérience et la théorie [2].

Le calcul théorique de la section efficace utilise l'amplitude de transition entre deux états (au repos et excité), appelé aussi probabilité de transition et noté dans cette thèse W [4].

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{2\pi}{\text{Flux du faisceau incident}} |W|^2 \rho(E) \tag{1.3}$$

où $\rho(E)$ est la densité d'états ayant une énergie E. La probabilité de transition W est en général donnée par la règle d'or de Fermi à partir du Hamiltonien du système.

Pour obtenir expérimentalement la valeur de la section efficace, l'intensité du faisceau après interaction est mesurée. Cette intensité est proportionnelle aux nombres de photons ayant interagit et donc à la section efficace.

$$I = I_0 N \Delta\Omega \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right) \tag{1.4}$$

où I_0 est le nombre de photons incidents par seconde, N le nombre de particules par unité de surface, et $\Delta\Omega$ l'angle solide de détection.

Pour exprimer plus concrètement la section efficace, l'intensité, ou l'amplitude de transition, il faut tout d'abord mieux définir ce qu'est un faisceau de rayons X.

1.1.3 Ondes électromagnétiques

Un rayonnement électromagnétique peut être considéré comme une superposition d'ondes planes électromagnétiques. Une onde électromagnétique plane est la propagation d'une variation d'un champ électrique $\vec{E}$, associée à une variation d'un champ magnétique $\vec{B}$. Le champ électrique et le champ magnétique sont perpendiculaires, et l'onde se propage perpendiculairement à ces deux champs. On dit que l'onde est transverse (figure 1.1).

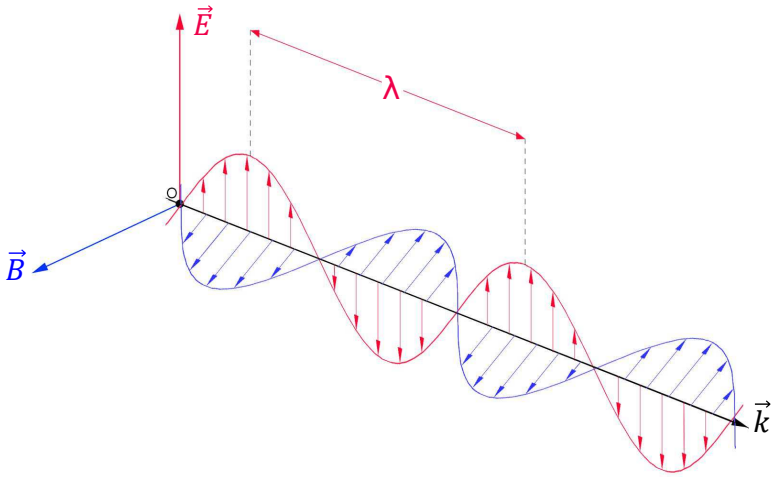


FIGURE 1.1 – Onde électromagnétique transverse où le champ électrique $\vec{E}$ et le champ magnétique $\vec{B}$ sont perpendiculaires : l'un par rapport à l'autre, et à la direction de propagation $\vec{k}$. Cas de la polarisation linéaire (définie plus loin).

En fonction de la fréquence ν, donc de la longueur d'onde λ (équation 1.2), la dénomination des ondes électromagnétiques varie. On parle de rayons gamma, rayons X, ultraviolets, lumière, infrarouges, micro-ondes ou ondes radios. C'est ce qu'on appelle le spectre électromagnétique (figure 1.2). Un rayonnement électromagnétique interagit avec la matière lorsque sa longueur d'onde est équivalente à la taille caractéristique de l'objet. Pour étudier la matière condensée, nous sommes intéressés par des ordres de grandeurs liés aux distance interatomiques et à l'agencement périodique des atomes allant de l'Angström (Å) au nanomètre (nm), et donc par les rayons X. On distinguera les rayons X durs qui ont une longueur d'onde comprise entre 10 picomètre et 6Å (2-100 keV), et les rayons X mous dont la longueur d'onde est comprise entre 6Å et une dizaine de nanomètre (50-2000eV).

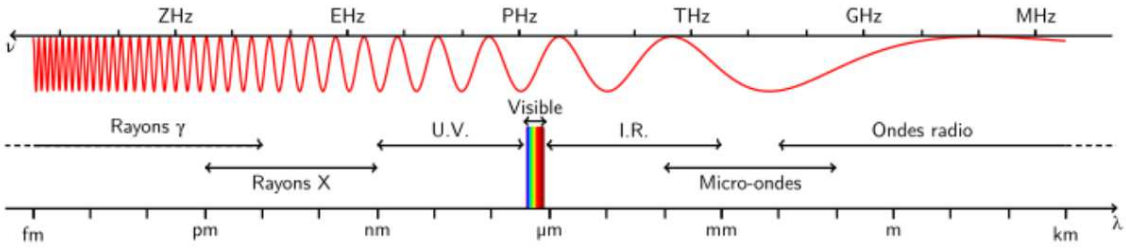


FIGURE 1.2 – Spectre électromagnétique

Les ondes électriques et magnétiques, sont reliées par les équations de Maxwell (voir Annexe A), et leurs variations spatiales et temporelles sont présentes dans une seule et même expression, où $\vec{r}$ est le vecteur position, t le temps et $\omega = 2\pi\nu$ la pulsation.

$$\vec{E} = \vec{E_0} e^{i(\vec{k}.\vec{r}-\omega t)}, \quad \vec{B} = \vec{B_0} e^{i(\vec{k}.\vec{r}-\omega t)} \tag{1.5}$$

Le terme exponentiel $(\vec{k}.\vec{r} - \omega t)$ est la phase de l'onde. Le champ électrique et le champ magnétique sont reliés via le potentiel vecteur $\vec{A}$ (voir Annexe A). Pour des questions pratiques, on ne prendra en compte dans la suite que le champ électrique.

Comme les ondes électromagnétiques sont décrites vectoriellement, on peut introduire la notion de polarisation. La polarisation décrit l'orientation des oscillations des champs $\vec{E}$ et $\vec{B}$. La description que nous venons de donner de l'onde électromagnétique est celle d'une onde polarisée linéairement (Fig. 1.1) puisqu'au cours du temps les deux plans d'oscillations ne changent pas d'orientation. Par extension, un rayonnement électromagnétique est dit polarisé lorsque toutes les ondes le composant ont des plans électriques parallèles entre eux. La polarisation peut être représentée par un vecteur $\vec{e}$. Si ce vecteur n'évolue pas dans un plan mais tourne autour de l'axe de propagation avec une période égale à la longueur d'onde, on dit que la polarisation est circulaire (Fig. 1.3 [7]). Afin de prendre en compte la polarisation, l'équation 1.5 devient alors :

$$\vec{E} = \vec{e} E_0 e^{i(\vec{k}\vec{r}-\omega t)} \tag{1.6}$$

De manière générale un faisceau de rayons X n'est pas polarisé et il faut utiliser soit des filtres pour polariser l'onde (figure 1.3), soit une source polarisée (chapitre 3).

Pour l'instant nous avons décrit les rayons X de manière classique, mais l'étude des phénomènes physiques à l'échelle de l'atome nécessite de faire appel à la mécanique quantique. La quantification du champ électromagnétique donne un champ électrique $\vec{E}_{\vec{k},\alpha}$ qui dépend d'un état de polarisation α et de son vecteur d'onde, ainsi qu'un potentiel vecteur $\vec{A}$ qui dépend des opérateurs création, ${c^+}_{\vec{k},\alpha}$, et annihilation, $c_{\vec{k},\alpha}$ qui permettent de créer ou d'annihiler un photon dans l'état $\vec{k}, \alpha$ [9].

$$\vec{E}_{\vec{k},\alpha} = \vec{e_\alpha} E_0 e^{i(\vec{k}\vec{r}-\omega t)} \tag{1.7}$$

$$\vec{A} = \sum_{\vec{k},\alpha} \left(c_{\vec{k},\alpha} \vec{E}_{\vec{k},\alpha} + {c^+}_{\vec{k},\alpha} \vec{E}^*_{\vec{k},\alpha} \right) \tag{1.8}$$

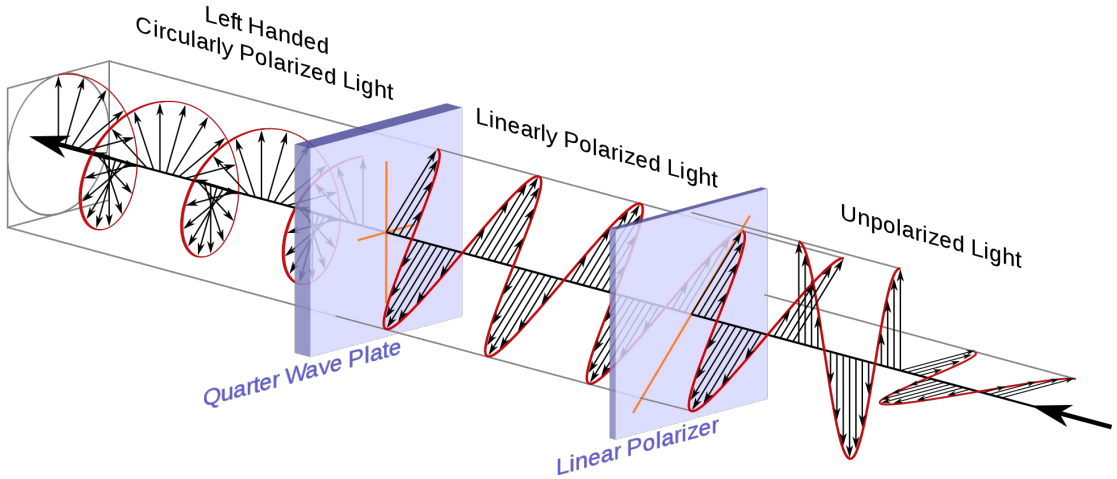


FIGURE 1.3 – Différentes polarisations d'une onde électromagnétique obtenues à partir d'une onde non polarisée grâce à des filtres [8]. Pour des raisons de clarté seul le champ électrique est représenté.

Cette formulation introduit implicitement la notion fondamentale de quanta de lumière plus communément appelé photons. Les équations de Maxwell sont alors remplacées par l'application de l'équation de Schrödinger aux photons. Ce lien entre la vision classique d'onde électromagnétique et la quantification a été introduite par A. Einstein en 1905. Le paragraphe suivant traite plus spécifiquement de cet aspect quantique du rayonnement électromagnétique.

1.1.4 Propriétés des Photons

Les photons sont des bosons ayant une énergie propre discrète (équation 1.1), et une polarisation. La notion de polarisation du photon est analogue à la notion de spin pour les autres particules (comme les électrons). Cependant on ne peut pas appliquer aux photons la définition de spin en tant que moment d'une particule au repos car il n'existe pas de référentiel de repos pour le photon puisqu'il se déplace à la vitesse de la lumière. On ne peut donc pas décomposer son moment total en un moment orbital et un moment de spin. Le vecteur de polarisation $\vec{e}$ joue pour le photon le rôle de "partie de spin" de la fonction d'onde. Ce vecteur est équivalent au vecteur défini dans la description classique des ondes électromagnétiques qui modélise la direction du champ électrique.

Une polarisation arbitraire $\vec{e}$ peut être représentée par la superpostion de deux polarisations orthogonales. Les vecteurs $\vec{e}$ sont normaux au vecteur d'onde $\vec{k}$. On peut prendre deux polarisations linéaires orthogonales appelées généralement σ et π ou bien décomposer une polarisation arbitraire en deux polarisations circulaires de sens de rotation contraires C^+ (polarisation circulaire droite) et C^- (polarisation circulaire gauche). On parle également d'hélicité. Le lien entre ces deux bases de polarisations est [9] :

$$C^{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}} (\mp\sigma - i\pi) \tag{1.9}$$

Pour avoir des informations sur les propriétés structurales, électroniques et magnétiques de la matière condensée, il faut que la longueur d'onde des rayons X soit du même ordre de grandeur que le phénomène sondé, c'est le point de vue classique et ondulatoire. Si les rayons X sont considérés comme des photons, ils peuvent alors être caractérisés par leur énergie en électronvolt (eV). La relation entre l'énergie et la longueur d'onde d'un faisceau de rayons X est :

$$\lambda[\text{Å}] = \frac{12.398[\text{keV.Å}]}{E[\text{keV}]}. \tag{1.10}$$

1.1.5 Bases de la matière condensée

Les matériaux présents sur terre sous forme de solides, liquides, verres, sont regroupés dans l'appelation matière condensée. Dans cette thèse nous nous intéresserons uniquement aux solides et plus précisément aux cristaux. Les principaux concepts de la physique du solide et de la cristallographie sont rappelés de manière qualitative dans cette section, de nombreux ouvrages comme le "Kittel" et "l'Ashcroft" [5, 6] donnant toutes les bases nécessaires.

Un solide est constitué d'un grand nombre d'atomes en interaction. Si ces atomes sont organisés de manière périodique dans l'espace, on parle de cristal. Un cristal est une répétition infinie en trois dimensions d'un élément appelé maille élémentaire. Cette maille élémentaire est définie par un motif d'un ou plusieurs atomes ainsi que des opérations de symétries qui déterminent le groupe d'espace. Un cristal est donc caractérisé par sa composition chimique, sa symétrie et sa période, appelée en cristallographie paramètre de maille a.

Nous verrons dans la partie suivante que la diffraction d'un rayonnement par un cristal permet de remonter à ces paramètres car elle donne une image du réseau dans l'espace réciproque qui peut être défini comme l'inverse de l'espace réel [1]. Dans cet espace la notion d'atome n'existe plus et est remplacée par la notion de noeuds. Cependant la périodicité est gardée et le réseau réciproque est donc périodique de période proportionnelle à l'inverse du paramètre de maille $a^* \propto 1/a$ c'est à dire de même dimension que le vecteur d'onde $\vec{k}$ (à 2π près pour un arrangement cubique) [2].

Un cristal peut également être modélisé comme un ensemble d'atomes ayant un noyau entouré d'électrons (nuage électronique). Les noyaux ayant une grande masse par rapport aux électrons sont considérés comme des points fixes tandis que les électrons peuvent circuler dans ce réseau de points fixes. Cependant tous les électrons ne se déplacent pas. Les électrons les plus proches du noyau appelés électrons de cœur restent autour de leurs noyaux tandis que les électrons les plus éloignés, appelés électrons de valence peuvent dans le cas des matériaux conducteurs être considérés comme libres c'est à dire sans interactions entre eux, avec le noyau, et avec le milieu

1. Mathématiquement, l'espace réciproque est la transformé de Fourier de l'espace réel
2. Si on considère un cristal comme un ensemble de plans atomiques, on peut décrire l'espace réel avec cet ensemble de plans atomiques. L'espace réciproque est alors l'espace décrit par l'ensemble des vecteurs perpendiculaires aux plans atomiques réels.

extérieur. Ce sont les électrons de conduction. Ces derniers forment ce qu'on appelle une mer de Fermi [5, 6] et sont responsables de nombreuses propriétés macroscopiques telles que celles de transport électrique. Ce modèle simple est le modèle de Fermi. Il peut être amélioré en considérant des interactions entre électrons, électrons-milieux extérieur, et électrons-noyaux.

Ce modèle de Fermi montre qu'il est nécessaire de quantifier l'énergie de ces électrons et est décrit dans l'espace des $\vec{k}$ ($\vec{k} = \frac{2\pi}{L}$ où L est une longueur macroscopique) . Chaque électron occupe un état d'énergie donné puisque les électrons sont des fermions et que le principe de Pauli interdit à deux électrons d'être dans le même état quantique. Les états sont remplis par énergie croissante jusqu'à ce qu'il n'y ait plus d'électrons. Les derniers électrons à remplir ces états sont les électrons de valence. Pour remplir correctement ces états d'énergie, il faut également tenir compte du spin de l'électron égal à $\pm\frac{1}{2}$, qui est le moment intrinsèque de l'électron. Pour une énergie donnée, il y a donc deux états électroniques. Le diagramme représentant les états d'énergie occupés et non occupés dans l'espace des $\vec{k}$ est appelé diagramme de bande. C'est la détermination de ce diagramme et de ces structures de bandes qui permet d'expliquer les phénomènes physiques macroscopiques comme le fait qu'un matériau soit isolant ou conducteur. La limite entre les états occupés et les états non occupés s'appelle la surface de Fermi et son énergie appelée énergie de Fermi est souvent prise comme référence.

Travailler dans l'espace des $\vec{k}$ ou dans l'espace réciproque signifie la même chose : on utilise un espace inversement proportionnel à l'espace réel avec des dimensions en m^{-1}. De même qu'il est pratique d'utiliser la dualité onde-corpuscule pour le rayonnement électromagnétique, on utilise aussi bien l'espace réel que l'espace réciproque pour expliquer les phénomènes physiques.

1.2 Interactions matière condensée - rayons X

Lorsqu'un faisceau de rayons X interagit avec la matière il peut être absorbé et/ou diffusé. Dans le cas de la diffusion, l'interaction peut être inélastique (le photon sortant n'a pas la même énergie que le photon entrant) et on parle de diffusion inélastique, incohérente ou d'effet Compton. Si l'interaction est élastique (l'énergie du photon est la même avant et après l'interaction), la diffusion est dite cohérente ou diffusion Thomson.

Les photons interagissent principalement avec les électrons et très peu avec les noyaux car ceux-ci sont trop lourds. On s'intéressera donc uniquement aux électrons. Dans le cadre de la mécanique quantique, le Hamiltonien décrivant les électrons dans un champ électromagnétique peut se décomposer en trois termes [4, 10, 11] :

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_e + \mathcal{H}_R + \mathcal{H}' \tag{1.11}$$

où $\mathcal{H}_e$ représente le Hamiltonien propre du système électronique, $\mathcal{H}_R$ celui des photons, et $\mathcal{H}'$ celui des interactions électrons-photons. Dans un premier temps, si on considère des électrons libres, on peut tenir compte de l'interaction du champ électromagnétique avec les électrons en remplaçant le moment cinétique de l'électron

$\vec{p}$ par $\vec{p}-\frac{e}{c}\vec{A}$, e étant la charge de l'électron, c la vitesse de la lumière et $\vec{A}$ le potentiel vecteur défini précédemment (équation 1.8). On a alors :

$$\mathcal{H} = \frac{(\vec{p}-\frac{e}{c}\vec{A})^2}{2m} + \mathcal{H}_R = \frac{p^2}{2m} + \frac{e^2A^2}{2mc^2} - \frac{e\vec{A}.\vec{p}}{mc} + \mathcal{H}_R = \mathcal{H}_e + \mathcal{H}' + \mathcal{H}_R \tag{1.12}$$

$$\text{avec} \qquad \mathcal{H}_e = \frac{p^2}{2m} \text{ et } \mathcal{H}' = \frac{e^2A^2}{2mc^2} - \frac{e\vec{A}.\vec{p}}{mc} = \mathcal{H}'_1 + \mathcal{H}'_2 \tag{1.13}$$

Dans cette expression simple de l'interaction électrons-photons, le deuxième terme $\mathcal{H}'_2$ représente le phénomène d'absorption tandis que le premier terme $\mathcal{H}'_1$ représente le phénomène de diffusion cohérente. En effet, d'après la définition du potentiel vecteur donné dans l'équation 1.8, celui-ci conduit à la création ou à l'annihilation d'un photon : il décrit donc les processus à un photon comme l'absorption. La diffusion étant un processus à deux photons, un entrant et un sortant, il y a successivement création puis annihilation d'un photon. Ce phénomène est donc décrit par le terme quadratique en $\vec{A}$.

Dans cette partie on s'intéressera dans un premier temps au phénomène d'absorption, de manière qualitative, puis à la diffusion cohérente, de manière quantitative. Finalement le dernier paragraphe regroupera ces deux phénomènes pour exposer les bases de la diffusion résonante.

1.2.1 Absorption

L'absorption des photons par le nuage électronique des atomes a plusieurs conséquences. L'énergie du photon est complètement transmise sous forme d'énergie cinétique à un électron qui se retrouve alors éjecté de son état initial et devient libre si l'énergie est suffisante, ou excité s'il reste près du niveau de Fermi (Fig. 1.4(2) et (2')). Dans le cas d'un électron libre, un courant électrique est alors généré. Afin de minimiser son énergie, l'atome va combler le trou laissé par le départ de cet électron en faisant "descendre" un électron d'une bande d'énergie plus élevée. Ce phénomène conduit soit à la création d'un photon dont l'énergie correspond à la différence d'énergie entre les deux bandes, il y a donc un rayonnement sortant appelé fluorescence (Fig. 1.4(2a)) ; soit a un processus d'auto ionisation permettant d'éjecter un électron de niveaux plus élevés : c'est l'effet Auger (Fig. 1.4(2b)). Dans le cas d'un électron excité, celui-ci se désexcite en revenant à son état initial en émettant un photon de même énergie que le photon entrant (Fig. 1.4(2')). C'est la diffusion élastique.

Les phénomènes qui découlent de l'absorption dépendent fortement de l'énergie du rayonnement incident. La figure 1.5 montre une mesure du courant produit par l'absorption des rayons X dans une couche de Fe, renormalisée en unité d'électrons [12]. Lorsque l'énergie du photon incident correspond exactement à l'énergie d'excitation d'un électron d'un état occupé à un état inoccupé, le photon réémis a la même énergie que le photon entrant. C'est le phénomène de résonance. Ces énergies spécifiques, appelées seuils d'absorptions, dépendent du niveau initial et final et sont nommées par des lettres : K, L, M (Fig. 1.5). Ce phénomène permet de sonder les états électroniques inoccupés et donc la structure de bande au dessus du niveau de Fermi.

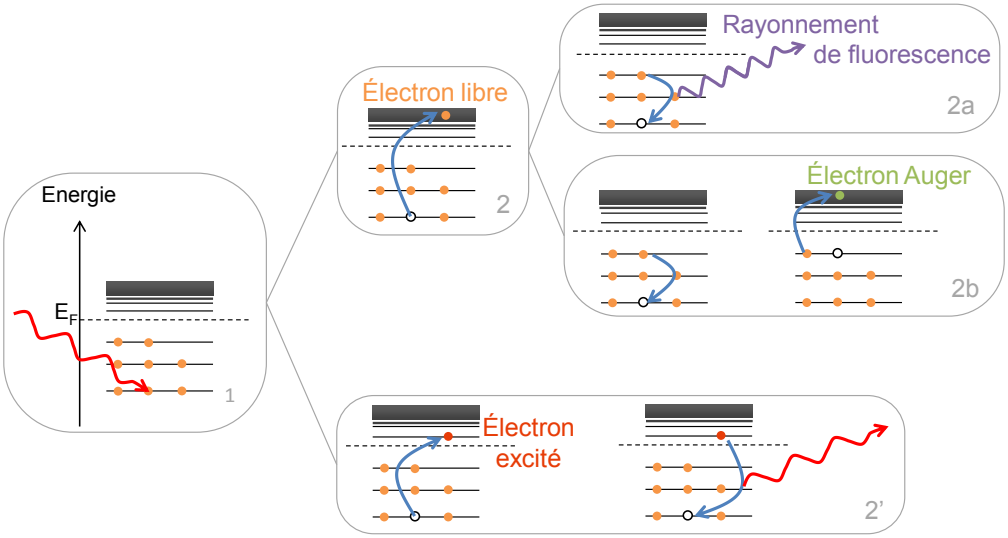


FIGURE 1.4 – Schéma du phénomène d'absorption. (1) Photon (rouge) arrivant sur un système électronique au repos : schéma simplifié de la structure de bande. Le photon transmet toute son énergie à l'électron qui, en fonction de l'énergie devient libre (2) ou excité (2'). L'atome, pour se stabiliser, va alors émettre un photon d'énergie différente (2a) ou bien égale (2') au photon entrant, ou bien un processus d'auto ionisation se crée donnant un électron Auger (2b).

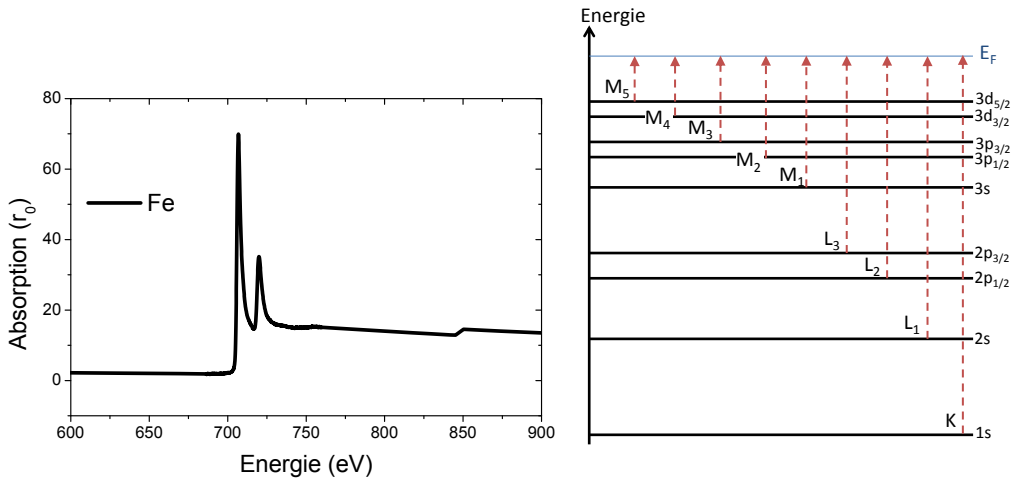


FIGURE 1.5 – A gauche, Spectre d'absorption du Fer obtenu par C.T. Chen *et al* [12] en unité d'électrons (r_0 est le rayon classique de l'électron appelé aussi longueur de diffusion Thomson et est égal à $r_0 = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 mc^2} = 2.8210^{-5}$Å) en utilisant les valeurs tabulées par Chantler. A droite, résumé de la nomenclature utilisée pour désigner les différents seuils d'absorptions.

Il existe différentes façons de mesurer l'absorption. La plus connue et la plus simple consiste à mesurer l'intensité du faisceau transmis (ayant traversé la matière).

Cependant les échantillons peuvent être trop épais pour faire des mesures en transmission. On mesure alors le courant de fuite, ou bien le rayonnement de fluorescence. Ces mesures correspondent à la spectroscopie d'absorption.

1.2.2 Diffusion

Considérons un seul électron. Le champ électrique d'une onde électromagnétique met en vibrations forcées cet électron car c'est une particule chargée de masse faible. Or la vibration d'une charge électrique émet dans tout l'espace une onde électromagnétique de même fréquence que sa vibration si aucune énergie de l'onde incidente n'est absorbée par l'électron. Tout se passe comme s'il y avait diffusion de l'onde incidente dans tout l'espace, sauf que cette onde est sphérique.

Considérons un atome. Dans un atome les protons et les neutrons ne participent pas à la diffusion puisque les uns sont trop lourds et les autres ne sont pas chargés. Cependant tous les électrons diffusent individuellement les rayons X et il peut y avoir interférences entre les ondes sphériques émergeant de ces différents électrons. L'amplitude résultante de ces interférences dépend de l'angle entre le faisceau transmis et le faisceau diffusé (2θ) et est appelé facteur de diffusion atomique (ou facteur de forme atomique) : $f(\theta)$ [13]. Ce facteur de diffusion atomique correspond à la transformée de Fourier de la densité électronique et est donc directement proportionnel aux nombres d'électrons de l'atome, c'est à dire au nombre atomique Z. Du point de vue de la diffusion, un atome peut donc être considéré comme ponctuel avec un pouvoir de diffusion[3] $f(\theta)$.

Considérons un cristal. Toutes les ondes provenant de la diffusion des rayons X par les atomes ont une amplitude f, et vont interférer entre elles. De manière générale les interférences sont incohérentes et l'intensité résultante est faible. Mais dans le cas d'un cristal, la périodicité du même ordre de grandeur que la longueur du rayonnement diffusé entraine une interférence constructive des ondes diffusées pour certaines orientations du cristal par rapport au faisceau incident. On dit qu'il y a diffraction des rayons X, et l'intensité résultante produit un pic, plus ou moins intense et plus ou moins large, appelé pic de diffraction. Ce sont ces pics de diffraction que l'on peut observer expérimentalement sous forme de points lumineux (Fig 1.6). Pour qu'il y ait diffraction, il faut que le cristal ait une certaine orientation par rapport au faisceau de rayons X. On parle de conditions de diffraction, et la plus connue est celle utilisée dans l'espace réel, appelée loi de Bragg : $2d\sin(\theta) = n\lambda$ avec d la distance interatomique et n un entier relatif. Lorsque la diffraction est élastique, θ et λ sont reliés par la norme du vecteur de diffusion $\vec{Q}$ qui est perpendiculaire au plan atomique et correspond donc à un vecteur du réseau réciproque.

$$\vec{Q} = \vec{k'} - \vec{k} \text{ et } Q = \frac{4\pi\sin(\theta)}{\lambda} \tag{1.14}$$

3. On parle aussi de longueur de diffusion b surtout lorsqu'on utilise un rayonnement de neutrons. Celle-ci est directement relié au facteur de diffusion atomique par le rayon classique de l'électron r_0 : $b = r_0 f$. Le rayon classique de l'électron est aussi appelé longueur de diffusion Thomson et est égal à $r_0 = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 mc^2} = 2.8210^{-5}$Å où ϵ_0 est la permittivité du vide.

Pour que cette condition soit vérifiée on retrouve le fait que la longueur d'onde des rayons X doit être du même ordre de grandeur que le paramètre de maille du cristal si on s'intéresse à la structure interne de celui-ci. Cette condition permet donc de remonter à l'aide d'un cliché de diffraction aux distances interatomiques puisqu'on connait la longueur d'onde du faisceau incident ainsi que l'angle θ.

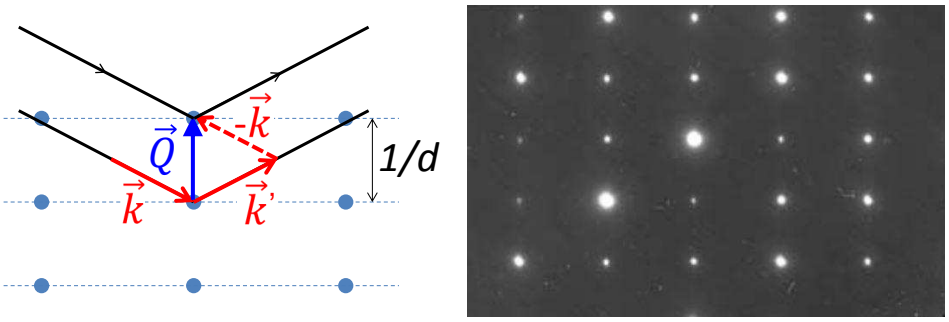


FIGURE 1.6 – Schéma de la loi de Bragg à gauche et cliché de diffraction d'un cristal cubique centré [14] à droite

Soit un cristal ayant j atomes et soit $\vec{r_j}$ le vecteur position de ces atomes dans le cristal, dans le cadre de la théorie cinématique, l'amplitude de l'intensité diffusée par ce cristal est proportionnelle à la somme du pouvoir diffusant des atomes, pondérés par la différence de phase entre ces atomes (Φ_j). C'est ce qu'on appelle le facteur de structure :

$$F(\theta) = \sum_j f_j(\theta) \exp^{i\Phi_j} . \tag{1.15}$$

Soit $\vec{k}$ le vecteur d'onde des rayons X incidents et $\vec{k'}$ celui des rayons diffusés, la différence de phase entre ces ondes diffusées par deux atomes aux extrémités du vecteur $\vec{r_j}$ est tout simplement $\Phi_j = (\vec{k'} - \vec{k}) \cdot \vec{r_j} = \vec{Q} \cdot \vec{r_j}$. On a donc

$$F(\theta) = \sum_j f_j(\theta) \exp^{i\vec{Q}\cdot\vec{r_j}} . \tag{1.16}$$

L'intensité diffusée est le carré de l'amplitude diffusée :

$$I(\theta) = \left| \sum_j f_j(\theta) \exp^{i\vec{Q}\cdot\vec{r_j}} \right|^2 . \tag{1.17}$$

La diffusion cohérente telle qu'on vient de la décrire est isotrope, et permet de déterminer des paramètres structuraux du cristal tel que son paramètre de maille, sa symétrie, son orientation, ou sa texture en fonction de la géométrie expérimentale utilisée.

Si θ et λ sont choisis pour un cristal donné afin de remplir la condition de diffraction, l'intensité diffractée ne dépend plus que du facteur de diffusion atomique, lui-même proportionnel à la densité électronique. Cependant, nous n'avons pas pris en compte plusieurs termes correctifs comme le terme d'agitation thermique, l'effet de la polarisation, les défauts cristallins, et la dépendance en énergie du facteur de diffusion atomique. Nous développerons dans la suite le fait que la densité électronique effective contribuant à l'amplitude de diffusion dépend de l'énergie du rayonnement incident. En effet, si on étudie un phénomène de diffusion des rayons X au voisinage d'un seuil d'absorption, le nuage électronique va être affecté, ce qui entraine une modification complexe du pouvoir diffusant.

Dans le cas où l'énergie des rayons X est différente par rapport aux énergies d'occupation des électrons, on peut considérer qu'il n'y a pas d'absorption, seul le facteur de diffusion de Thomson : $f_0(\theta)$ est pris en compte, et il est environ proportionnel au nombre d'électrons Z.

1.2.3 Diffusion résonante

A une énergie proche d'un seuil d'absorption d'un atome, on parle de diffusion résonante ou anomale, et le facteur de diffusion atomique résonant dépend alors de θ et de l'énergie [4].

$$f^{res}(\theta, E) = f_0(\theta) + F'(E) - iF''(E). \tag{1.18}$$

Il faut tenir compte d'un terme réel de dispersion F' et d'un terme imaginaire représentant l'absorption F''. Ces termes ont une dépendance en θ qui est faible et donc pas prise en compte dans le cas des éléments léger, et dans la gamme d'énergie des rayons X mous [15, 16]. Le terme F'' se déduit directement des mesures d'absorptions [5] tandis que le terme de dispersion est dérivé de F'' par la transformation de Kramers-Kronig. La figure 1.7 montre la dépendance en énergie des termes d'absorptions et de dispersions.

En absorption, chaque élément chimique présente des seuils d'absorption ayant une énergie unique et différente. Lorsqu'on fait de la diffusion résonante, seul le pouvoir diffusant de l'élément chimique correspondant est modifié et on devient plus sensible à cet élément car le contraste est en général augmenté. La diffusion résonante des rayons X permet donc une sélectivité chimique.

Le facteur de diffusion atomique résonant, f^{res} est toujours proportionnel à la transformée de Fourier de la densité électronique qui peut s'exprimer grâce au carré de la fonction d'onde. Cette fonction d'onde vérifie l'équation de Schrödinger ayant un Hamiltonien décrit dans l'équation 1.13 où la résonance est considérée comme un état intermédiaire et traitée comme une perturbation du deuxième ordre sur l'hamiltonien d'interactions $\mathcal{H}'$ entre les électrons et le champ électromagnétique [6].

Soit $|a\rangle$ l'état initial de l'électron. Celui-ci passe par un état intermédiaire $|n\rangle$ lorsqu'il absorbe un photon d'énergie $\hbar\omega \approx E_n - E_a$ où E_n et E_a sont les énergies des

4. Le signe moins devant le terme d'absorption dans l'expression du facteur de diffusion atomique (équation 1.18) implique que F'' est positif, ce qui est en accord avec la figure 1.7.

5. Un travail de normalisation par rapport aux tables de Chantler est nécessaire, et pas simple

6. Il y a également un phénomène direct : un photon est créé, puis un photon absorbé, mais nous négligerons ce phénomène [4, 10].

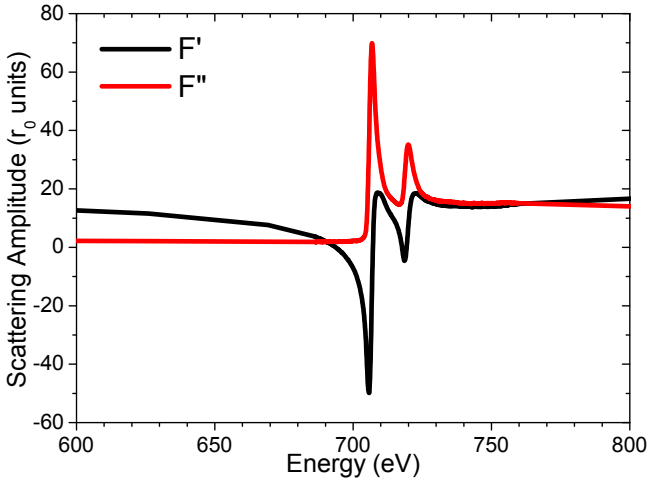


FIGURE 1.7 – Dispersion F' et absorption F'' du Fer près des seuils d'absorptions $L_{2,3}$

états a et n respectivement, puis revient à son état initial en émettant un photon de même énergie. La probabilité de transition par unité de temps, qui est directement reliée à la section efficace de diffusion (équation 1.4), est alors donnée par la règle d'or de Fermi :

$$W = \frac{2\pi}{\hbar} \left| \langle a|\mathcal{H}_1'|a\rangle + \sum_n \frac{\langle a|\mathcal{H}_2'|n\rangle\langle n|\mathcal{H}_2'|a\rangle}{E_a + \hbar\omega - E_n + i\frac{\Gamma}{2}} \right|^2 \tag{1.19}$$

Dans le terme du premier ordre seul $\mathcal{H}_1'$ est présent puisque la diffraction est un processus à deux photons. Le terme du deuxième ordre permet de prendre en compte $\mathcal{H}_2'$ qui est relié à l'absorption, ainsi que la largeur du niveau intermédiaire proportionnel au terme Γ. La figure 1.8 résume les termes de mécanique quantique associés aux différentes interactions électrons-photons.

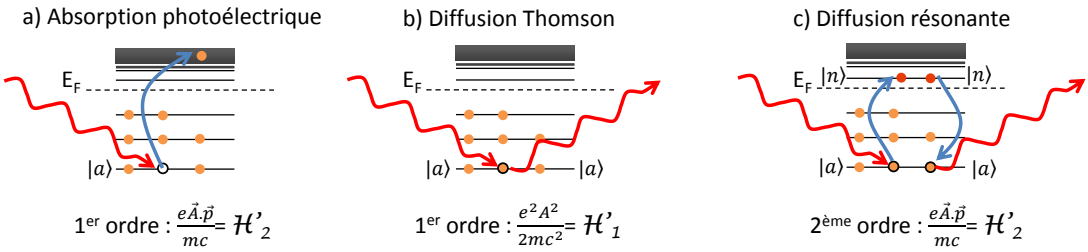


FIGURE 1.8 – Résumé des termes mécaniques associés aux différentes interactions électrons-photons. a) Absorption photoélectrique, phénomène à un photon du premier ordre. b) Diffusion cohérente ou Thomson, phénomène à deux photons du premier ordre. c) Diffusion résonante, phénomène à deux photons du deuxième ordre.

La diffraction résonante permet de sonder les états atomiques intermédiaires d'un atome particulier. Ces états intermédiaires peuvent donner des informations sur l'environnement de cet atome et révéler des informations telles que la centro-symétrie

d'un cristal. De plus, les états intermédiaires peuvent dépendre des interactions magnétiques, ce qui permet de sonder les propriétés magnétiques du cristal : c'est la diffusion magnétique résonante que nous allons détailler dans la section suivante.

1.3 Interaction matière magnétique - rayons X

Dans la partie précédente, nous avons considéré les électrons comme libres et n'avons absolument pas pris en compte le spin de l'électron. Or dans certains cas, un couplage spin-orbite ainsi que des interactions fortes entre électrons, et notamment entre leurs spins peuvent avoir lieu, ce qui donne lieu à des propriétés magnétiques. L'interaction matière-rayonnement se trouve modifiée par ces propriétés magnétiques, autant en absorption qu'en diffusion.

Afin de mieux comprendre les modifications que le magnétisme apporte à l'interaction électrons-photons, un rappel des notions de base sur le magnétisme atomique sera fait dans une première partie. La deuxième partie décrira les interactions matière magnétique-rayonnement et plus particulièrement le cas de la diffusion magnétique résonante.

1.3.1 Propriétés magnétiques

Les premières traces écrites parlant du magnétisme, sous la forme d'une attraction à distance de deux objets remontent à l'antiquité [17]. Il a fallu beaucoup de temps avant que ces propriétés étranges commencent à être étudiées et expliquées. En effet, ce n'est qu'en 1795 que Poisson instaure la notion de champ magnétique et de dipôle magnétique. Un corps magnétique serait en fait la réunion de deux "masses" magnétiques de pôles opposés exerçant une force décrite par Coulomb. Ce point de vue de pôle magnétique est encore utilisé en électrotechnique.

Quelques années après, en 1820, Ampère fait le lien entre l'électricité et le magnétisme. Un champ magnétique peut être engendré soit par un dipôle, soit par une charge électrique en mouvement. La notion de moment magnétique $\vec{m}$ est alors introduite. C'est le moment du couple exercé sur une barre magnétique ou une boucle de courant en présence d'un champ magnétique extérieur $\vec{H}$. C'est à partir de cette définition que la physique du magnétisme s'est développée ; tout d'abord à l'échelle macroscopique c'est ce qu'on appelle la magnétostatique, puis à partir du 20ème siècle à l'échelle microscopique, celle de l'atome, celle qui nous intéresse.

Les notions développées en magnétostatique tel que l'induction magnétique $\vec{B}$, l'aimantation propre du matériau $\vec{M}$, le champ magnétique extérieur $\vec{H}$, la susceptibilité $\chi = \frac{M}{H}$ et la perméabilité $\mu = \frac{B}{H}$ sont également utilisées en magnétisme atomique. Tous les matériaux ont un comportement magnétique, puisqu'ils sont tous diamagnétiques, c'est-à-dire que la matière s'oppose au champ extérieur $\vec{H}$. Toutefois, pour certains matériaux, la matière est attirée par ce champ extérieur, c'est ce qu'on appelle le paramagnétisme, et ce phénomène est bien plus fort que le diamagnétisme. Par abus de langage, on appelle matériaux magnétiques seulement les matériaux paramagnétiques ayant un ordre magnétique permettant une aimantation permanante en dessous d'une certaine température [18].

Origine atomique du moment magnétique

Dans un atome, le magnétisme est principalement dû aux électrons car le moment magnétique du noyau est mille fois inférieur au moment magnétique électronique [19]. Encore une fois on va donc considérer uniquement les électrons. Si on considère que les électrons tournent autour du noyau, d'après Faraday, on a un moment magnétique. C'est ce qu'on appelle le moment magnétique orbital $\vec{m_L}$. Cependant il ne suffit pas à expliquer la valeur du moment magnétique total qui est expérimentalement plus élevée. Il a fallu introduire la notion de spin, qui est un moment cinétique intrinsèque de l'électron et qui peut prendre la valeur $S = \pm 1/2$. Le moment magnétique dû au spin est appelé moment magnétique de spin $\vec{m_S}$ et s'additionne à $\vec{m_L}$ pour donner le moment magnétique totale :

$$\vec{m} = \vec{m_L} + \vec{m_S} \tag{1.20}$$

Comme il y a deux moments magnétiques, ceux-ci peuvent interagir l'un sur l'autre. C'est ce qu'on appelle le couplage spin-orbite. Dans le cas des métaux de transition comme le Fe, pour les électrons de valence, c'est à dire de la bande $3d$, le champ électrique formé par les ions du cristal, appelé champ cristallin, est tellement fort, qu'il bloque le moment orbital, le rendant peu sensible au moment de spin. C'est ce qu'on appelle le "quenching" [6, 5, 18]. De plus, dans le cas d'un cristal hautement symétrique (cubique) comme le Fe, le moment orbital des électrons $3d$ s'annule et seul le moment magnétique de spin subsiste. Celui-ci est directement relié au moment cinétique de spin $\vec{S}$ par le magnéton de Bohr $\mu_B = \frac{e\hbar}{2m}$ et par le facteur de Landé $g_s = 2.0023$.

Interactions magnétiques

Afin de décrire le magnétisme dans la matière, il faut considérer un grand nombre d'atomes, et donc des modèles de comportements d'électrons, comme le modèle de Fermi. Dans le cadre du magnétisme, il existe un modèle d'électrons localisés pour décrire les matériaux ioniques et les terres rares, et un modèle d'électrons libres ou itinérants pour décrire les métaux. Cependant dans les métaux de transitions, les électrons de cœurs sont localisés tandis que les électrons de conduction peuvent être considérés comme libres et donc délocalisés. Il faut alors utiliser un modèle, appelé modèle de liaison forte [5], qui couple les modèles d'électrons localisés et itinérants et tient compte d'une hybridation entre les orbitales de différents électrons.

De manière plus macroscopique, le magnétisme est le résultat de la minimisation de l'énergie globale de l'échantillon. Cette énergie est directement reliée à quatre types d'interactions auxquelles sont associées quatre énergies : l'énergie Zeeman, l'énergie magnétocristalline, l'énergie dipolaire et l'énergie d'échange [20]. Comme nous allons le voir, ces énergies peuvent avoir des longueurs caractéristiques complètement différentes.

- **Energie Zeeman.**
  Elle permet de prendre en compte l'action d'un champ magnétique extérieur $\vec{H}$. Cette énergie E_Z tend à aligner l'aimantation $\vec{m}$ selon le champ magnétique et correspond à une force macroscopique.

- **Energie magnétocristalline.**
  Cette énergie tient compte des interactions entre les moments magnétiques atomiques et le champ électrique formé par le réseau cristallin. Elle dépend donc de la structure cristalline, et favorise une direction d'aimantation particulière liée à un axe du réseau cristallin. On parle d'axe de facile aimantation et l'aimantation n'est plus homogène dans toutes les directions : il y a brisure de symmétrie et anisotropie magnétique.
- **Energie dipolaire : anisotropie de forme.**
  Cette énergie aussi appelé champ démagnétisant, permet de modéliser l'influence des dipôles magnétiques que sont les moments magnétiques sur les autres dipôles magnétiques les entourant. A l'échelle de deux atomes cette énergie est faible par rapport à l'énergie d'échange, mais à l'échelle macroscopique, cette énergie devient assez importante pour créer une inhomogénéité dans l'aimantation totale du matériau et former ce qu'on appelle des domaines magnétiques. Cette interaction joue donc un rôle pour de longues distances et dépend de la forme macroscopique du matériau. Elle peut devenir une énergie dominante dans le cas des films ultraminces, induisant une anisotropie de forme.
- **Interaction d'échange**
  Cette énergie tient compte des interactions directes entre spin d'électrons voisins. Elle permet de modéliser les phénomènes électrostatiques d'un point de vue de la mécanique quantique et est représentée par l'hamiltonien d'Heisenberg :

$$\mathcal{H}_H = -\sum_{i,j} J_{i,j}\vec{S}_i.\vec{S}_j \text{ où } J_{i,j} \text{ est la constante de couplage d'échange} \tag{1.21}$$

  Cette interaction tend à aligner ($J > 0$) ou non ($J < 0$) les moments magnétiques entre eux. C'est une interaction à courte distance (de l'ordre de l'Ångstrom) qui est responsable de l'ordre à grande distance des moments magnétiques. S'ils sont tous parallèles entre eux on parle de ferromagnétisme, alors que s'ils sont tous antiparallèles on parle d'antiferromagnétisme. Il existe d'autres types d'échanges (indirect, RKKY, etc.) et d'autres types d'ordre magnétique (ferrimagnétisme, spirale...) mais ils ne sont pas étudiés dans le cadre de cette thèse.
  Dans le cas des métaux de transition, le moment magnétique est dû à la différence d'occupation des bandes de spin "up" et "down". C'est le critère de Stoner qui permet de déterminer ce moment magnétique en fonction de la densité d'état électronique. Dans le cas des métaux de transitions, les électrons de la bande $4s$ ont une densité d'état qui est faible, et il n'y a pas d'interaction ferromagnétique entre eux. Mais les électrons de la bande $3d$ ont une grande densité d'état, ce qui réduit la différence entre l'énergie d'un état $|n\rangle$ et l'énergie d'un état $|n+1\rangle$. Cette énergie de "passage" d'un état à l'autre se retrouve alors plus petite que l'énergie d'échange, et l'un des deux électrons de l'état $|n\rangle$ va préférer occuper l'état $|n+1\rangle$ et avoir son spin parallèle avec son plus proche voisin, plutôt que de rester dans le même état énergétique avec un spin antiparallèle. L'interaction coulombienne entre ces deux électrons se retrouve

donc diminuée. En effet, si les spins de deux électrons voisins sont parallèles, à cause du principe d'exclusion de Pauli, les électrons occupent alors deux orbitales différentes et sont spatialement plus éloignés que si leurs spins étaient antiparallèles. Si on parle en terme de remplissage de bande, la bande $3d$ se retrouve partagée en deux bandes distinguant les spins des électrons $3d_{+1/2}$ et $3d_{-1/2}$ ayant un décalage en énergie égal à l'énergie d'échange (voir figure 1.9). Il y a donc plus d'électrons dans une bande que dans l'autre, et donc dans notre cas une majorité de spin "up" et une minorité de spin "down" ce qui crée une aimantation spontanée [18, 19, 17].
L'interaction entre entre ces moments magnétiques est due au recouvrement des orbitales $3d$, et est modélisée par la constante de couplage d'échange J. Le signe de cette interaction dépend du remplissage de la bande $3d$, et est positif lorsque la bande est peu rempli, ce qui est le cas du Fe.
Ce raisonnement est vrai pour une température nulle. Cependant au-delà d'une certaine température critique, appelée température de Curie, l'aimantation spontanée disparait.

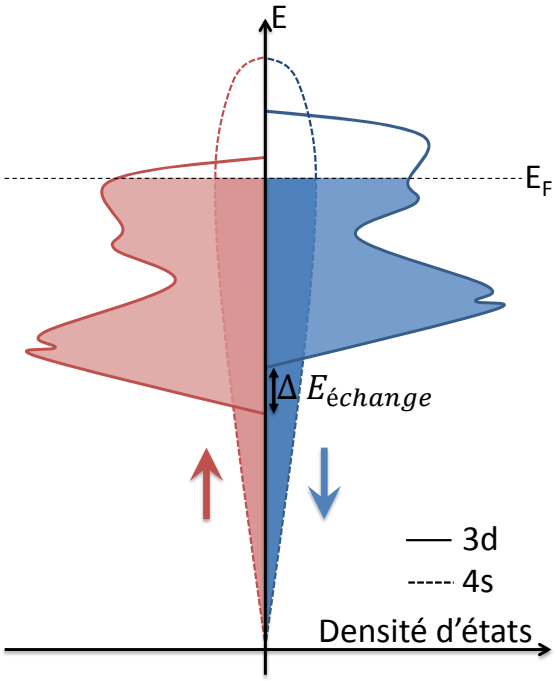


FIGURE 1.9 – Schéma des bandes de valences près du niveau de Fermi pour les métaux de transition $3d$. L'énergie d'échange provoque un partage de la bande $3d$ en fonction du spin de l'électron. On dit que les électrons de spins "up" sont majoritaires, tandis que les électrons de spin "down" sont minoritaires.

C'est la compétition entre ces différentes énergies qui donnent les caractéristiques magnétiques d'un matériau et est responsable de plusieurs phénomènes macroscopiques. Pour pouvoir minimiser l'énergie et prédire les comportements magnétiques, il faut donc connaitre l'expression de chacune de ces énergies. La difficulté du

magnétisme consiste dans le fait que ces expressions dépendent grandement du matériau étudié comme nous le verrons dans le chapitre 2. Maintenant que les notions de bases qui interviennent pour le magnétisme des éléments de transition $3d$ sont expliquées, on peut regarder comment réagit ce matériau lorsqu'il est soumis à un rayonnement.

1.3.2 Interaction avec un rayonnement

Introduction

Les premiers effets dus aux interactions entre un champ électromagnétique et un matériau magnétique furent observés par Michael Faraday [21] en 1846 sous la forme d'une modification de la polarisation incidente de la lumière après transmission à travers le matériau. C'est ce qu'on appelle l'effet Faraday. Kerr observa le même type de phénomène, mais en réflexion, environ 30 ans plus tard [22]. Depuis ces effets magnéto-optiques sont couramment employés, et utilisent un rayonnement laser. Il faudra attendre le début du vingtième siècle pour que le même type d'expérience soit effectué avec des rayons X. L'avènement du rayonnement synchrotron permettra d'augmenter l'accès à des effets de plus en plus fins [23, 24]. Dans ce manuscrit, nous ne développerons pas ces propriétés qui sont bien expliquées dans différents ouvrages [25, 26].

La diffusion des rayons X par un matériau magnétique a quant à elle été prédite par Gell-Mann et Goldberger [27] en 1954, et sera observée expérimentalement par François de Bergevin et M. Brunel sur un matériau antiferromagnétique en 1972. Cependant cette observation est difficile car, la diffraction purement magnétique est environ 10^4 fois plus faible que la diffraction due aux charges électriques [28]. En effet, les calculs montrent que la diffusion purement magnétique est pondérée par un facteur égal à $\frac{\hbar\omega}{mc^2}$ qui est de l'ordre de 10^{-4}. Il faudra donc attendre les années 80 pour que le rayonnement synchrotron devienne assez performant afin d'observer plus systématiquement la diffraction magnétique [29]. De plus, bien que la prédiction par Blume d'une amplification des pics magnétiques lorsqu'on se place à une énergie proche d'un seuil d'absorption ait été faite en 1985 [28], ce n'est qu'en 1988 qu'un pic magnétique est observé par Gibbs *et al* [30] en condition de résonance au seuil $M_{4,5}$ de l'Ho. C'est la naissance de la diffustion magnétique résonante.

Diffusion magnétique résonante

La diffusion magnétique résonante permet, entre autre, de sonder les moments magnétiques des matériaux de transition $3d$ particulièrement si l'énergie du rayonnement utilisée est proche des seuils $L_{2,3}$. En effet, à cette énergie, le phénomène d'absorption n'est plus négligeable, et une transition est effectuée entre un niveau de coeur $2p$ et un niveau libre dans la bande $3d$, qui selon le spin des électrons n'est pas remplie de la même manière (figure 1.9). Du fait du couplage spin-orbite des niveaux $2p$, l'excitation des électrons $2p_{1/2}$ ou $2p_{3/2}$ par des photons polarisés circulairement $(+)$ ou $(-)$ (droite ou gauche), va créer des photo-électrons polarisés en spin qui vont pouvoir occuper ou non un état vide de la bande $3d$ en fonction de leur spin (figure 1.10). En effet, selon le nombre d'états finaux, correspondant aux états de

la bande $3d$ ayant une énergie supérieure à l'énergie de Fermi, le taux de transition de cet électron excité ne va pas être le même pour un spin "up" et un spin "down". L'absorption ne va donc pas être la même selon la polarisation du faisceau incident et l'aimantation interne du matériau. La séparation de la bande d agit comme un détecteur sélectif de photo-électrons polarisés. Ce phénomène est généralement observé en mesure d'absorption, c'est le principe du dichroïsme magnétique circulaire ou linéaire (XMCD ou XMLD) (figure 1.10). Ce phénomène est également à l'origine de la modification du faisceau diffusé (en intensité et en polarisation) lors de la diffusion magnétique résonante (XRMS). La diffusion magnétique résonante peut être vue comme la combinaison du phénomène de XMCD et de diffusion résonante.

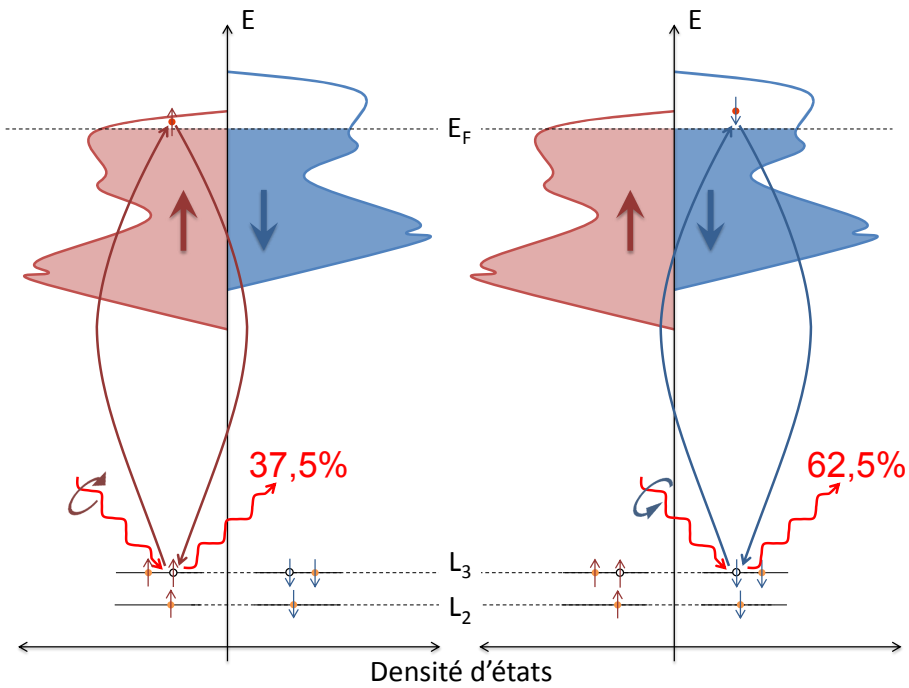


FIGURE 1.10 – Schéma du phénomène de dichroïsme magnétique circulaire. Selon la polarisation du faisceau incident, (+) à gauche, et (−) à droite, ainsi que la différence de niveaux non-occupé pour les bandes $3d$ "up" et "down", la probabilité de transition et donc le taux d'absorption n'est pas le même.

C'est Hannon [31], en 1988, qui donne l'expression du facteur de diffusion résonant magnétique pour un cristal à symétrie uniaxiale dans le cas d'une transition dipolaire [7] :

$$f^{res} = F_{c,r}.\vec{e'^*} \cdot \vec{e} - iF_{m,r}.\vec{u} \cdot (\vec{e'^*} \times \vec{e}) \tag{1.22}$$

Les vecteurs $\vec{e}$ et $\vec{e'^*}$ sont les vecteurs polarisation de l'onde incidente et réfléchie respectivement. Le vecteur $\vec{u}$ est l'axe de quantification et peut être choisi égal au vecteur unitaire portant le moment magnétique atomique $\vec{m}$. Les facteurs de diffusion de charges et magnétique peuvent être exprimés en fonction des orbitales

7. On peut également considérer la transition quadripolaire pour certains cas d'anisotropie [3, 31, 32, 33], mais dans le cadre de cette thèse et des études au seuil $L_{2,3}$ du Fe, on peut se limiter à une transition dipolaire.

électroniques et des fonctions F_{LM} qui représentent la probabilité de transition associée au transfert M du moment angulaire le long de l'axe de quantification.

$$\begin{aligned} F_{c,r} &= -f_0 - F' + iF'' = -f_0 + \frac{3}{4} r_0 (F_{11} + F1\bar{1}) \\ F_{m,r} &= M' + iM'' = \frac{3}{4} r_0 (F_{11} - F1\bar{1}) \end{aligned} \tag{1.23}$$

Cette expression du facteur de diffusion atomique résonant magnétique n'est valable que pour un système cristallographique isotrope où la symétrie sphérique ou cubique n'est brisée que par le moment magnétique. On peut aussi noter qu'elle ne tient pas compte du terme magnétique d'ordre 2 représentant l'interaction spin-orbite des électrons $3d$ qui peut-être négligée pour un métal de transition et permet de modéliser le phénomène de dichroïsme linéaire [34]. Seul le phénomène de dichroïsme circulaire magnétique est donc pris en compte ici puisqu'il est proportionnel à $F''/2$.

Comme F' et F'', M' et M'' peuvent être déduits d'une mesure expérimentale d'absorption pour différentes hélicitées ou différents champs magnétiques appliqués. On déduit M'' à partir de la différence des signaux d'absorptions (XMCD), puis on utilise la relation de Kramers-Kronig pour obtenir M' à partir de M''. Pour déterminer la valeur du moment magnétique, on applique les règles de sommes établies par Thole et Carra [35, 36, 37, 26]. La figure 1.11 représente les différents coefficients dans le cas du Fe obtenus à partir des mesures de C.T. Chen *et al* [12].

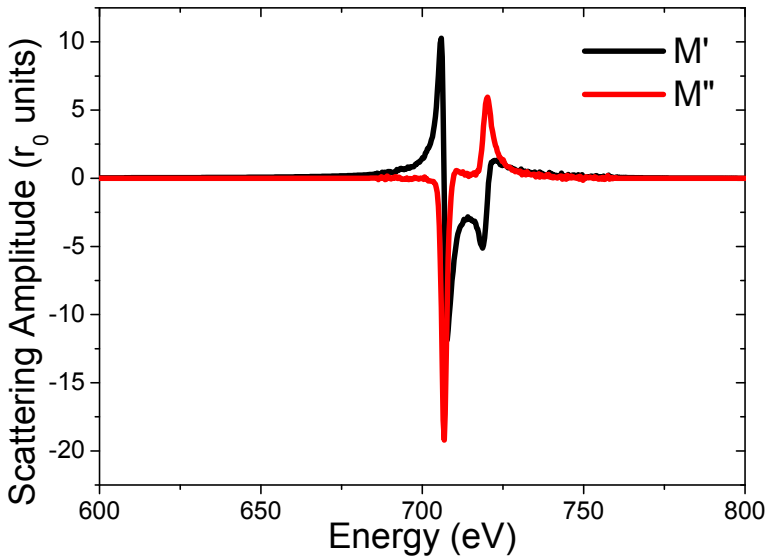


FIGURE 1.11 – Coefficients magnétiques M' et M'' du Fer près des seuils d'absorption $L_{2,3}$ déduits de la mesure d'absorption par les règles de sommes pour M'' et par la transformation de Kramers Kronig pour M'.

Plusieurs caractéristiques importantes de la diffraction magnétique résonante peuvent être soulignées.

- **La sélectivité chimique**
  Comme pour la diffraction résonante, la diffraction résonante magnétique permet de sélectionner chimiquement quel élément on veut étudier au sein d'un échantillon ayant plusieurs éléments chimiques. Ceci permet donc d'étudier le comportement magnétique d'un élément au sein d'un matériau magnétique complexe comme les alliages, les multiferroïques, et les multicouches.
- **Résolution spatiale**
  Une autre propriété remarquable est la résolution spatiale car on sonde une direction de l'espace réciproque. En effet si on reprend l'expression de l'intensité (équation 1.17) celle-ci dépend du facteur de diffusion atomique que nous venons de décrire dans le cas de la diffusion magnétique résonante, ainsi qu'un terme exponentiel dépendant du vecteur de diffusion $\vec{Q}$. Ce vecteur dans l'espace réciproque représente l'espace entre deux plans hkl, ce qui signifie que dans l'espace réel il permet de sonder une direction perpendiculaire à ces plans, c'est à dire d'être résolu spatialement dans cette direction. De plus, ce vecteur est relié à l'angle θ par l'équation 1.14, ce qui signifie que si on fait varier θ on change l'épaisseur sondée.
- **L'anisotropie de la diffusion magnétique résonante**
  D'après l'équation 1.22 le facteur de diffusion magnétique résonant atomique dépend de la polarisation incidente et diffusée ainsi que de l'orientation de la polarisation par rapport au moment magnétique intrinsèque du matériau (deuxième terme de l'équation). Selon la polarisation des faisceaux incidents, et l'orientation de l'échantillon par rapport au plan de diffraction, on sera donc plus ou moins sensible à certaines composantes de l'aimantation. Ce phénomène sera plus développé dans la partie suivante ainsi que dans la partie analyse du troisième chapitre.

Les deux dernières caractéristiques ensemble montrent à quelle point la diffusion magnétique résonante est importante car elle permet de sonder le profil magnétique résolu en profondeur.

1.4 Cas particulier de la réflectivité magnétique résonante de Rayons X

Jusqu'à présent, nous avons considéré les cristaux comme un empilement périodique d'atomes. Cette vision nous a permis de montrer que l'interaction entre les rayons X et la matière donne naissance à une intensité diffusée ayant des pics de diffraction. Dans le cadre de cette thèse, on va s'intéresser à des empilements de couches minces qu'on peut considérer comme une succession de milieux continus ayant des densités différentes et donc des interfaces. En fonction de l'épaisseur et de la qualité cristalline des couches on pourra observer des pics de diffraction. Cependant, si on s'intéresse à l'épaisseur des couches et à la qualité des interfaces, on étudiera les oscillations générées par les interférences constructives des rayons X réfléchis par chaque couche. Ces oscillations sont observées aux petites valeurs du vecteur de diffusion $\vec{Q}$ du fait

de dimensions supérieures aux distances interatomiques. Dans ce cas on parle de réflectivité de rayons X. Comme en optique, les rayons X sont réfractés ou réfléchis par les différentes interfaces du milieu stratifié. Le milieu est alors caractérisé par son indice optique n qui est égal à 1 dans le vide et inférieur à 1 pour tous les autres milieux. Cet indice optique peut-être relié au facteur de diffusion atomique via l'équation suivante [25, 34, 38] :

$$n - 1 = \frac{r_0 \lambda^2}{2\pi} \sum_i \rho_i f_i \tag{1.24}$$

où ρ est la densité de l'élément i (c'est à dire le nombre d'atomes par unité de volume), et f est le facteur de diffusion atomique qui dans notre cas est égal à f^{res}. Selon les conventions de signe prises, une différence de signe peut exister (annexe A.3). En général l'indice de réfraction s'écrit $n = 1 - \delta + i\beta$ où δ représente la dispersion et β l'absorption. Ces termes correspondent aux termes $f_0 + f'$ et f'' du facteur de diffusion atomique, et β peut-être déduit de la mesure d'absorption via le théorème optique, puis δ calculé en utilisant la relation de Kramers-Kronig (voir annexe A.4).

La réflectivité est donc un cas particulier de la diffusion magnétique résonante : on se place dans une configuration géométrique particulière. Dans le cas de la réflectivité spéculaire, l'angle incident est égal à l'angle réfléchi, et le vecteur de diffusion $\vec{Q}$ est alors perpendiculaire à la surface. On sonde alors le magnétisme de manière résolue en profondeur. Dans le cas de la réflectivité hors spéculaire, l'angle réfléchi est différent de l'angle d'incidence, et on peut être résolu latéralement. Dans le cadre de cette thèse, nous avons effectué principalement de la réflectivité spéculaire, en effectuant des scans en angle, avec une polarisation du faisceau incident et un champ appliqué pouvant varier. La figure 1.12 présente deux courbes de réflectivité expérimentales I^+ et I^- obtenues en renversant le champ magnétique appliqué. A cause du dichroïsme magnétique circulaire les courbes de réflectivité ne se superposent pas, et cette différence est reliée au magnétisme. Afin d'être plus sensible à cette différence on introduit le rapport d'asymétrie magnétique A (de Bergevin *et al* en 1981) :

$$A = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} \tag{1.25}$$

qui est montré en bleu sur la figure 1.12

La figure 1.13 décrit le repère et les notations avec lesquelles nous allons travailler par la suite. Le faisceau incident arrive sur l'échantillon et est réfléchi avec le même angle θ par rapport à la surface de l'échantillon. Le plan formé par les faisceaux incident et réfléchi est appelé plan de diffusion, et dans notre cas, est perpendiculaire à la surface de l'échantillon. La polarisation du faisceau incident est soit circulaire, soit linéaire : π lorsque la polarisation est dans le plan de diffusion, σ lorsque la polarisation est perpendiculaire au plan de diffusion. La polarisation du faisceau réfléchi est inconnue et peut-être décomposée dans la base π', σ'. On peut noter que $\vec{\sigma'} = \vec{\sigma}$ et que $\vec{\pi'}.\vec{\pi} = cos(2\theta)$. Le vecteur d'aimantation unitaire peut-être décomposé dans une base orthonormée directe (x, y, z) tel que $\vec{m} = \begin{pmatrix} m_{tran} & m_{lon} & m_{pol} \end{pmatrix}$ où la direction transverse est parallèle à l'axe x, la direction longitudinale parallèle à l'axe y et la direction hors du plan (O.P : out of plane) est parallèle à l'axe z.

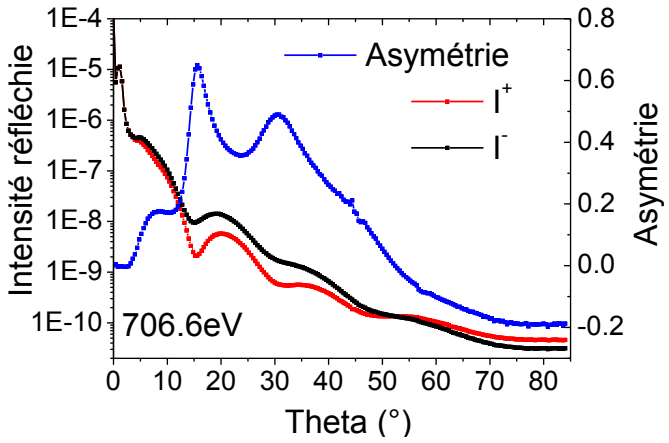


FIGURE 1.12 – Courbes de réflectivité expérimentales I^+ en rouge et I^- en noir et l'asymétrie associée en bleu

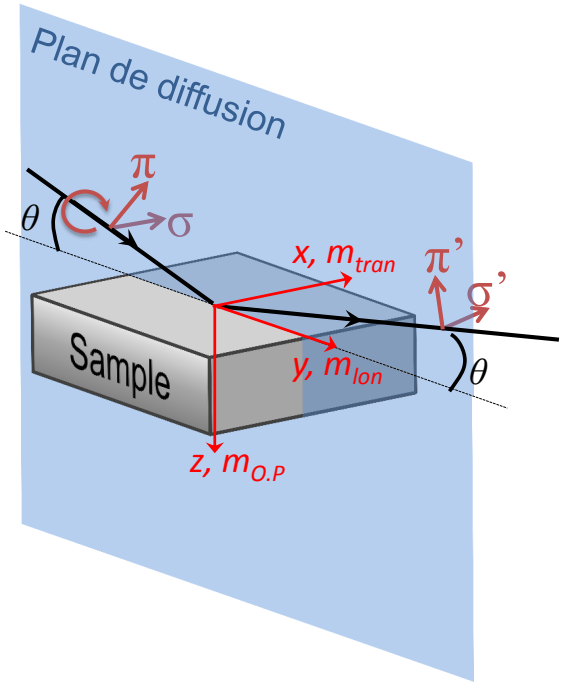


FIGURE 1.13 – Configuration expérimentale d'une expérience de réflectivité.

La réflectivité des rayons X s'est fortement développée pour l'étude des surfaces, interfaces, et films minces enfouis, dans les années 50, notamment suite aux travaux de Parratt [39]. En France, on peut noter les travaux de Herpin [40] et Abelès [41] qui jetèrent les bases du formalisme matriciel pour l'étude de la propagation des ondes dans un milieu stratifié. La reflectivité peut-être définie comme $R(\theta) = \frac{I(\theta)}{I_0}$ où $I(\theta)$ est l'intensité réfléchie, et I_0 l'intensité incidente. Cette réflectivité est totale : $R = 1$, jusqu'à un angle critique qui peut être calculé grâce aux lois de Snell-Descartes

comme étant égale à $\theta_c = \sqrt{2\delta}$. En général δ est très petit, ce qui induit, dans le cas des rayons X mous, un angle critique de l'ordre de quelques degrés. Pour des angles supérieurs à θ_c il y aura réflectivité partielle. Lorsque $R(\theta) \neq 1$ le faisceau rentre dans la matière et on peut définir une longueur de pénétration qui va de quelques angstroms à une centaine de micromètres en fonction de l'angle et de l'énergie du faisceau incident [42]. Cette théorie de la réflectivité ne prend en compte que la structure de l'empilement des couches et permet de déterminer de manière précise l'épaisseur et la rugosité des différentes couches au sein de films ultraminces.

L'avènement de la diffusion magnétique résonante ainsi que le développement des mesures d'effets Kerr pour caractériser les films magnétiques ont permis d'étendre cette théorie de réflectivité aux films magnétiques au début des années 90 par Zak *et al* [43, 44]. Dans la fin de ce chapitre, on abordera les deux aspects théoriques de la réflectivité magnétique résonante. Tout d'abord on utilisera les principes de réflectivité des ondes électromagnétiques pour décrire la théorie dynamique grâce à un formalisme matriciel, puis on présentera une théorie cinématique qui utilise le facteur de diffusion atomique, afin de mieux comprendre la dépendance du rapport d'asymétrie en fonction de m_{tran}, m_{lon}, et m_{pol}.

1.4.1 Théorie dynamique : point de vue optique

La réflectivité magnétique résonante peut être considérée comme une expérience d'effet Kerr magnéto-optique (MOKE) effectuée avec des rayons X polarisés autour d'une énergie particulière pour plusieurs angles θ. Pour décrire l'aspect dynamique de la réflectivité, nous utiliserons donc la théorie optique qui pemet de décrire l'effet MOKE et qui a été développée par Zak *et al* dans les années 1990 [44] puis par Qui *et al* pour la technique MOKE de surface dans les années 2000 [45]. Ces théories utilisent des formalismes matriciels avec principalement deux matrices : une matrice de conditions aux limites et une matrice de propagation, ainsi qu'un vecteur magnéto-optique $\vec{G}$ aussi appelé vecteur de Voigt et relié à notre terme de diffusion magnétique $F_{m,r}$ par $\vec{G} = \frac{r_0 \lambda \sum_i \rho_i}{\pi} F_{m,r}$ dans le cas d'une transition dipolaire.

Nous avons développé au sein de l'équipe un formalisme permettant de trouver les vecteurs propres de la matrice de propagation que nous utiliserons dans la suite. L'utilisation des vecteurs propres, associés à des ondes propres, permet de simplifier les calculs puisque ces vecteurs propres ne sont pas changés lors des opérations matricielles. Dans notre cas, nous allons montrer que les vecteurs propres sont les vecteurs de polarisation circulaire.

Dans cette partie, nous donnerons uniquement les résultats finaux de ce formalisme. Le raisonnement et les calculs permettant d'aboutir à ces résultats sont expliqués dans l'annexe A.6.

Formalisme

La réponse d'un matériau à un champ électromagnétique est décrite par le déplacement diélectrique $\vec{D}$ et l'induction magnétique $\vec{B}$. Ces deux grandeurs sont reliées entre elles par les équations de Maxwell. Pour trouver les ondes propres de la matrice de propagation, il faut d'abord résoudre les équations de Maxwell, et

exprimer l'indice de réfraction. La résolution donne un indice de réfraction :

$$n^{\pm} \approx 1 + \frac{r_0 \lambda^2 \rho}{2\pi} \left(F_{c,r} \mp (\cos\theta m_{lon} + \sin\theta m_{pol}) F_{m,r} \right) \tag{1.26}$$

avec un vecteur propre

$$\vec{D}^{\pm} \quad \propto \quad \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} \mp 1 \\ 0 \\ -i \end{pmatrix} \text{ dans la base de l'onde incidente } (x', y', z') \tag{1.27}$$

Il y a donc deux vecteurs propres, et leurs expressions dans le repère associé à l'onde électromagnétique montrent clairement que les ondes associées à ces vecteurs propres ont une polarisation circulaire positive ou négative.

Les équations de Maxwell imposent comme conditions aux limites la continuité des composantes dans le plan du champ électromagnétique. Pour respecter ces conditions un pseudo vecteur $\vec{\mathcal{D}}_m$ représentant le vecteur $\vec{D}^{\pm}$ pour une direction de propagation incidente $\searrow$ ou réfléchi $\nearrow$ dans le milieu m, ainsi qu'une matrice de conditions aux limites de dimensions 4 par 4, $\hat{A}_m$, sont introduits. La condition de continuité à l'interface entre les milieux m et $m+1$ s'écrit alors :

$$\hat{A}_m \vec{\mathcal{D}}_m = \hat{A}_{m+1} \vec{\mathcal{D}}_{m+1} \tag{1.28}$$

ce qui nous permet de calculer le changement de polarisation de l'onde entre les milieux m et $m+1$: $\vec{\mathcal{D}}_{m+1} = \hat{A}_{m+1}^{-1} \hat{A}_m \vec{\mathcal{D}}_m$. A chaque interface, la polarisation de l'onde est changée, ce qui implique qu'à partir du moment où l'onde pénètre dans la matière, on ne connait plus exactement sa polarisation.

Nous venons de modéliser le passage d'une onde électromagnétique d'un milieu à un autre pour une interface parfaite. Cependant la rugosité aux interfaces peut modifier grandement la réflectivité [46, 47]. Tenir compte de cette rugosité entre une couche m et $m+1$ consiste à multiplier tous les termes de la matrice $\hat{A}_{m+1}^{-1} \hat{A}_m$ par $r^{\pm} = e^{-(k_m \pm k_{m+1})^2 \sigma^2 / 2}$ où k_m est la norme du vecteur d'onde du milieu m projeté sur l'axe hors du plan Oz.

Lorsqu'une onde électromagnétique se propage à travers un matériau, elle est atténuée et sa phase Φ est modifiée. Cette modification dépend de l'indice de réfraction du milieu $n_m^{\pm}$, de l'angle d'incidence θ ainsi que de la profondeur à laquelle se trouve l'onde c'est à dire z. On doit donc multiplier le pseudo vecteur $\vec{\mathcal{D}}_m$ par la matrice de propagation $\hat{P}_m(z)$ suivante pour connaitre les amplitudes des ondes électromagnétiques lorsqu'elles se trouvent à une épaisseur z au sein du milieu.

$$\hat{P}_m(z) = \begin{pmatrix} e^{\frac{2\pi}{\lambda} n^{+\searrow} \sin\theta z} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & e^{\frac{2\pi}{\lambda} n^{-\searrow} \sin\theta z} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e^{-\frac{2\pi}{\lambda} n^{+\nearrow} \sin\theta z} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e^{-\frac{2\pi}{\lambda} n^{-\nearrow} \sin\theta z} \end{pmatrix} \tag{1.29}$$

Lorsqu'un champ électromagnétique de polarisation quelconque $\vec{\mathcal{D}}_0$ arrive sur un matériau, il subit une transformation due à son passage de l'interface entre le vide et le milieu 1 et on obtient un champ électromagnétique de polarisation $\vec{\mathcal{D}}_1 = \hat{A}_1^{-1}\hat{A}_0\vec{\mathcal{D}}_0$. Ce champ se propage ensuite dans le milieu 1 ce qui le modifie, $\vec{\mathcal{D}}_1' = \hat{P}_1\vec{\mathcal{D}}_1$, jusqu'au passage de l'interface entre le milieu 1 et le milieu 2 qui modifie la polarisation du champ électromagnétique en $\vec{\mathcal{D}}_2 = \hat{A}_2^{-1}\hat{A}_1\vec{\mathcal{D}}_1' = \hat{A}_2^{-1}\hat{A}_1\hat{P}_1\vec{\mathcal{D}}_1 = \hat{A}_2^{-1}\hat{A}_1\hat{P}_1\hat{A}_1^{-1}\hat{A}_0\vec{\mathcal{D}}_0$. Si on fait ce raisonnement pour plusieurs couches, jusqu'à ce que le champ électromagnétique ne soit plus assez intense pour continuer à se propager, on peut exprimer la polarisation finale du champ électromagnétique $\vec{\mathcal{D}}_f$ en fonction des différentes matrices de passages, et de conditions aux limites ainsi que de $\vec{\mathcal{D}}_0$.

$$\vec{\mathcal{D}}_f = \hat{A}_f^{-1}\left(\prod_m \hat{A}_m\hat{P}_m\hat{A}_m^{-1}\right)\hat{A}_0\vec{\mathcal{D}}_0 = \hat{M}\vec{\mathcal{D}}_0 \tag{1.30}$$

On peut exprimer les vecteurs $\vec{\mathcal{D}}_f$ et $\vec{\mathcal{D}}_0$ en fonction de l'onde incidente ($i_{C\pm}$), de l'onde réfléchie dans le vide ($r_{C\pm}$), et de l'onde transmise finale ($t_{C\pm}$). Si on prend en compte que toutes ces ondes peuvent se décomposer dans la base circulaire et que dans le milieu final, il n'y a pas d'onde réfléchie, on obtient :

$$\vec{\mathcal{D}}_f = \begin{pmatrix} t_{C^+} \\ t_{C^-} \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \text{ et } \vec{\mathcal{D}}_0 = \begin{pmatrix} i_{C^+} \\ i_{C^-} \\ r_{C^+} \\ r_{C^-} \end{pmatrix} \text{ ce qui donne } \begin{pmatrix} t_{C^+} \\ t_{C^-} \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} = \hat{M}\begin{pmatrix} i_{C^+} \\ i_{C^-} \\ r_{C^+} \\ r_{C^-} \end{pmatrix} \tag{1.31}$$

Dans cette équation on connait entièrement $\hat{M}$, i_{C^+}, et i_{C^-}. Résoudre cette équation revient à trouver la solution d'un système de quatre équations à quatre inconnus : r_{C^+}, r_{C^-}, t_{C^+}, et t_{C^-}. On peut donc exprimer l'amplitude de polarisation de l'onde réfléchie, c'est à dire l'intensité réfléchie, en fonction des coefficients matricielles de $\hat{M}$. La matrice $\hat{M}$ dépendant bien sûr du vecteur $\vec{m}$ est donc directement sensible à l'aimantation pour différentes couches magnétiques, c'est à dire pour différentes profondeurs.

Conclusions : approximations et utilisation.

Cette théorie dynamique permet donc via une simulation numérique de modéliser la propagation d'une onde électromagnétique à travers plusieurs milieux et de donner l'intensité réfléchie en fonction de l'angle θ. Le formalisme que nous venons de développer est également applicable aux effets magnéto-optiques et est équivalent aux formalismes développés par Zak [44], Qiu [45] et Kortright [34]. L'originalité de notre formalisme [38], qui est d'utiliser les ondes propres qui s'avèrent être circulaires pour résoudre les équations de Maxwell, permet de ne pas faire d'approximation quant à la géométrie de l'aimantation au sein de l'échantillon.

Notre formalisme peut donc être utilisé quelle que soit l'orientation de l'aimantation par rapport à la polarisation du faisceau incident mais uniquement pour des échantillons dont les différents milieux sont homogènes et où le couplage spin-orbite des électrons $3d$ peut être négligé à cause d'une très grande symétrie (sphérique ou

cubique) ou bien du phénomène de “quenching”. Cette dernière condition permet de ne pas tenir compte des termes magnétiques d'ordre supérieur ou égal à deux et donc de simplifier les calculs. Pour aller au-delà de ces approximations, on peut consulter les papiers de Stepanov et Lee [48, 49] qui tiennent compte du terme magnétique d'ordre 2 dans l'expression du facteur de diffusion atomique résonant, ainsi que des papiers de Haverkort [50] et de Stojic [33] qui vont au-delà de la symétrie sphérique du cristal en proposant des symétries d'ordre moins élevées. Une dernière approximation consiste à ne considérer que la rugosité structurale aux interfaces et à négliger la rugosité magnétique. On peut se référer au papier de Lee *et al* [49] si on estime nécessaire de prendre en compte cette rugosité magnétique.

Ce formalisme peut être utilisé pour modéliser l'intensité réfléchie $I(\theta)$ obtenue en reflectivité spéculaire pour différentes polarisations incidentes et différentes configurations de l'aimantation, ce qui permet de modéliser des asymétries magnétiques (équation 1.25). On peut également modéliser une intensité réfléchie en fonction de l'énergie pour un angle fixe, ou bien en fonction de l'énergie pour un vecteur de diffusion $\vec{Q}$ fixe. Dans toutes ces configurations l'utilisation de ce formalisme pour fitter des courbes expérimentales permet de déterminer la valeur et la direction de l'aimantation résolue en profondeur. Un exemple de l'utilisation de ce formalisme sur des films minces sera faite à la fin du chapitre 3.

Ce formalisme est assez complexe et ne permet pas d'expliquer de manière directe la forme des asymétries magnétiques obtenues expérimentalement. Pour cela, il faut faire appel à un formalisme cinématique.

1.4.2 Théorie cinématique : point de vue diffusion

Ce formalisme permet d'exprimer de manière simple l'intensité réfléchie en fonction des composantes du moment magnétique m_{tran}, m_{lon}, et m_{pol} ; de l'angle θ et de la polarisation. Cependant, ce formalisme ne prend pas en compte le fait qu'il y ait plusieurs couches, et donc le pouvoir polarisant du matériau et les multiples réflexions, transmissions qu'il peut y avoir ; ainsi que la rugosité aux interfaces. En principe, il ne permet donc pas de dériver un profil magnétique en fonction de la profondeur [8], contrairement à la théorie dynamique développée précédemment, mais juste de montrer quelle sensibilité on a de l'orientation du moment magnétique en fonction des différentes configurations expérimentales.

Une manière d'exprimer l'intensité réfléchie en fonction de la polarisation est d'exprimer le facteur de diffusion atomique résonant dans une base de polarisation circulaire ou linéaire. Suite aux travaux de Brunnel et De Bergevin [52], Hill et McMorrow développèrent le facteur de diffusion dans une base linéaire $(\vec{\sigma}, \vec{\pi})$ [32]. Dans notre configuration (figure 1.13), on peut exprimer les vecteur $\vec{\pi}$, $\vec{\sigma}$, $\vec{\pi'}$, $\vec{\sigma'}$ et $\vec{m}$ dans la base (x, y, z), et il suffit de calculer les produits scalaires et vectoriels de l'équation 1.22 avec $\vec{u} = \vec{m} = \begin{pmatrix} m_{tran} & m_{lon} & m_{pol} \end{pmatrix}$, ce qui donne $f^{res} = F_{c,r}.\vec{e'^*} \cdot \vec{e} - iF_{m,r}.\vec{m} \cdot (\vec{e'^*} \times \vec{e})$ dans cette base pour différentes combinaisons de polarisations

8. Sauf dans des conditions particulières, où l'asymétrie magnétique est mesurée pour des pics de diffractions [51].

incidente et réfléchie pour trouver la forme matricielle du facteur de diffusion $\hat{f}^{res}$ dans la base de polarisation linéaire $(\vec{\sigma}, \vec{\pi})$. Pour les détails des calculs et l'expression de ce facteur de diffusion atomique dans la base de polarisation circulaire, voir l'annexe A.5.

$$\hat{f}^{res} = F_{c,r} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \cos(2\theta) \end{pmatrix} - i\epsilon F_{m,r} \begin{pmatrix} 0 & m_{lon}\cos\theta + m_{pol}\sin\theta \\ -m_{lon}\cos\theta + m_{pol}\sin\theta & -m_{tran}\sin(2\theta) \end{pmatrix} \tag{1.32}$$

ϵ représente le signe du vecteur unitaire $\vec{m}$ et est donc égal à ± 1.

A partir de cette expression du facteur de diffusion atomique résonant on peut exprimer l'intensité réfléchie en fonction de la polarisation du faisceau incident $\vec{e}$. En effet, si on raisonne dans la base de polarisation linéaire, l'intensité réfléchie est la somme des intensités réfléchies ayant une polarisation $\vec{\sigma'}$ et une polarisation $\vec{\pi'}$. Dans ce travail, nous ne nous intéressons pas à l'amplitude de l'intensité, mais à sa forme. Nous faisons donc l'approximation de ne pas prendre en compte la somme sur les vecteurs positions (voir annexe A.5 pour plus de détail).

$$\begin{aligned} I &= I_{\sigma'} + I_{\pi'} \\ &= \left|\sum_n e^{i\vec{Q}\vec{r_n}} f^{res}_{\sigma'}\right|^2 + \left|\sum_n e^{i\vec{Q}\vec{r_n}} f^{res}_{\pi'}\right|^2 \approx \left|\sum_n e^{i\vec{Q}\vec{r_n}}\right|^2 \left(|f^{res}_{\sigma'}|^2 + |f^{res}_{\pi'}|^2\right) \\ &\propto |f^{res}_{\sigma'}|^2 + |f^{res}_{\pi'}|^2 \end{aligned} \tag{1.33}$$

Dans le cas le plus général, la polarisation incidente peut-être une combinaison des polarisations linéaires σ et π qu'on notera $\vec{e_\sigma}$ et $\vec{e_\pi}$ avec un décalage de phase pris en compte par l'apparition d'une partie complexe. On a donc un vecteur polarisation incident qu'on peut écrire $\vec{e} = \delta\vec{e_\sigma} - i\vec{e_\pi}$ où δ permet de prendre en compte une phase positive ou négative et est donc égal à ∓ 1.

En développant l'expression de l'intensité (annexe A.5) on obtient donc une formule générale dépendant des composantes de l'aimantation et de son signe (ϵ), de l'angle θ, et de la polarisation du faisceau incident.

$$\begin{aligned} I \propto\ & \left[e_\sigma^2 + e_\pi^2\cos^2(2\theta)\right]|F_{c,r}|^2 \\ & + \epsilon\left\{e_\pi^2 m_{tran}\sin(4\theta)\left[F''M' - F'M''\right] + 4\delta e_\sigma e_\pi\left(m_{lon}\cos^3\theta - m_{pol}\sin^3\theta\right)\left(F'M' + F''M''\right)\right\} \end{aligned} \tag{1.34}$$

Il suffit de remplacer ϵ, $\vec{e_\sigma}$, $\vec{e_\pi}$, et δ par leur valeur pour obtenir l'intensité I^ϵ_δ. Si on a un faisceau incident linéaire $\vec{\sigma}$ (ou $\vec{\pi}$), alors $e_\sigma = 1$ et $e_\pi = 0$ (ou inversement) et $\delta = 1$, tandis que pour un faisceau circulaire plus $e_\sigma = e_\pi = 1$ et $\delta = -1$ et pour un faisceau circulaire moins $e_\sigma = e_\pi = \delta = 1$. L'intensité I^ϵ_δ ne va donc pas être la même selon le signe de δ et ϵ, c'est à dire selon le signe de l'aimantation, ou l'hélicité de la polarisation, et on va pouvoir combiner les intensités obtenues pour différentes polarisations et aimantations afin de n'être sensible qu'à certains termes. Pour être sensible principalement au magnétisme, on utilise le rapport d'asymétrie A qui ne va pas être le même si on renverse l'aimantation ($I^\pm$) ou l'hélicité ($I_\pm$).

$$\begin{aligned} A &= \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} \text{ si on renverse le champ magnétique} \\ A &= \frac{I_+ - I_-}{I_+ + I_-} \text{ si on renverse l'hélicitié} \end{aligned} \tag{1.35}$$

Selon l'approche expérimentale utilisée cette asymétrie va dépendre différemment des trois composantes de l'aimantation. Cette sensibilité sera illustrée dans le dernier paragraphe du chapitre 3 : Analyse qualitative.

Ce raisonnement peut également être fait pour une base de polarisation circulaire [29], pour cela il suffit juste d'utiliser la matrice de passage entre la base circulaire et linéaire (Annexe A.5). Cependant les calculs sont plus complexes, plus difficile à interpréter, et les polarisations $\vec{C}^+$ et $\vec{C}^-$ s'exprimant facilement dans la base linéaire, on ne travaille que très rarement dans la base circulaire pour la théorie cinématique.

Nous venons de poser le cadre dans lequel une expression analytique des rapports d'asymétries a été développée, ce qui peut permettre une bonne approximation des courbes d'asymétries expérimentales [53, 52]. Cependant, il faut noter que certaines approximations ont été faites. Tous les termes magnétiques d'ordre égal ou supérieur à deux ont été négligés par rapport aux termes de charges et aux termes croisés, car beaucoup plus faibles. Nous supposons également que la polarisation est parfaite, c'est à dire 100%π, 100%σ, ou 100% circulaire, ce qui est très proche de la situation réelle. Enfin, la propagation d'une onde au sein du matériau ainsi que la réflectivité de celle-ci sur plusieurs interfaces ne sont pas prises en comptes dans cette théorie.

Ce chapitre nous a permis de montrer comment un champ électromagnétique peut interagir avec un matériau magnétique et de développer le cas de la réflectivité magnétique résonante, montrant que cette technique permet de sonder les caractéristiques structurales et magnétiques de l'échantillon en fonction de la profondeur. Cette technique dans le domaine des rayons X mous s'applique particulièrement bien à l'étude de l'empilement de films minces dont les longueurs caractéristiques sont de quelques Ångstroms à une dizaine de nanomères afin de voir l'influence des interfaces entre plusieurs films. Le prochain chapitre montrera en quoi l'étude de ces films minces est intéressante, quelles sont leurs propriétés, et quel est l'apport de la technique de XRMR dans leur caractérisation par rapport aux techniques déjà existantes.

Bibliographie

[1] Jean Protas. *Diffraction des rayonnements, Introduction aux concepts et méthodes*. Dunod, 1999.

[2] Jens Als-Nielsen and Des McMorrow. *Elements of Modern X-Ray Physics*. Wiley, 2001.

[3] C.J. Sparks et K. Fischer G. Materlik. *Resonant Anomalous X-ray Scattering : Theory and Applications*. Elsevier Science B. V., 1994.

[4] Albert Messiah. *Mécanique quantique, tome 2*. Dunod, 1995.

[5] Neil W. Ashcroft et N. David Mermin. *Physique des solides*. EDP Sciences, 2002.

[6] C. Kittel. *Introduction à la physique de l'état solide*. Dunod, 1972.

[7] Lumières, polarisation. http://photo.geneste.free.fr/technique/lum/lalumiere.html, Consulté en février 2013.

[8] Wikiversité, ondes électromagnétiques. http://fr.wikiversity.org/wiki/Introduction_\unhbox\voidb@x\bgroup\let\unhbox\voidb@x\setbox\@tempboxa\hbox{a\global\mathchardef\accent@spacefactor\spacefactor}\accent18a\egroup\spacefactor\accent@spacefactor_l'infographie/Notions_Fondamentales, Consulté en février 2013.

[9] L. Landau et E.lifchitz. *PHYSIQUE THEORIQUE, tome IV, Théorie quantique relativiste, première partie*. Mir, Moscou, 1972.

[10] Nicolas Jaouen. *Etude de nanostructures magnétiques par réflectivité magnétique résonante des rayons X*. PhD thesis, Université Joseph Fourier-grenoble 1, 2001.

[11] Karine Chesnel. *Diffusion magnétique résonante des Rayons X appliquée à l'étude de nanostructures magnétiques*. PhD thesis, Université Joseph Fourier-grenoble 1, 2002.

[12] 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. *Physical Review Letters*, 75(1) :152, July 1995.

[13] Michel Guymont. *Structure de la matière : Atomes, liaisons chimiques et cristallographie*. Belin, 2003.

[14] S.-H. Kim, H.-J. Sohn, Y.-C. Joo, Y.-W. Kim, T.-H. Yim, H.-Y. Lee, and T. Kang. Effect of saccharin addition on the microstructure of electrodeposited feni alloy. *Surface and Coatings Technology*, 199(1) :43 – 48, 2005.

[15] R. W. James. *The optical principles of the diffraction of X-rays*. G. Bell and sons LTD, London, 1950.

[16] John C. Parker and R. H. Pratt. Validity of common assumptions for anomalous scattering. *Physical Review A*, 29(1) :152–158, January 1984.

[17] Etienne du Trémolet de Lacheisserie *et al.* *Magnétisme : I.Fondements*. Presses Universitaires de Grenoble, 1999.

[18] Nicola A. Spaldin. *Magnetic Materials, Funcamentas and Applications.* Cambridge University press, 2011.

[19] Stephen Blundell. *Magnetism in Condensed Matter.* Oxford University press, 2001.

[20] Thomas Hauet. *Décalage d'échange et magnétorésistances dans des bicouches à base de ferrimagnétiques amorphes couplés par échange.* PhD thesis, Université Henry Poincaré, Nancy I, 2006.

[21] Michael Faraday. Experimental researches in electricity. nineteenth series. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, 136 :1–20, January 1846.

[22] John Kerr. XLIII. on rotation of the plane of polarization by reflection from the pole of a magnet. *Philosophical Magazine Series 5*, 3(19) :321–343, 1877.

[23] B. T. Thole, G. van der Laan, and G. A. Sawatzky. Strong magnetic dichroism predicted in the $M_{4,5}$ x-ray absorption spectra of magnetic rare-earth materials. *Physical Review Letters*, 55(19) :2086–2088, November 1985.

[24] C. T. Chen, F. Sette, Y. Ma, and S. Modesti. Soft-x-ray magnetic circular dichroism at the $L_{2,3}$ edges of nickel. *Physical Review B*, 42(11) :7262–7265, October 1990.

[25] H.A. Durr, T. Eimuller, H.-J. Elmers, S. Eisebitt, M. Farle, W. Kuch, F. Matthes, M. Martins, H.-C. Mertins, P.M. Oppeneer, L. Plucinski, Claus M. Schneider, H. Wende, W. Wurth, and H. Zabel. A closer look into magnetism : Opportunities with synchrotron radiation. *IEEE Transactions on Magnetics*, 45(1) :15–57, January 2009.

[26] Dieter Lott. *Magnetic X-ray reflectivity.* PhD thesis, Ludwig-Maximilians-Universität München, 2001.

[27] M. Gell-Mann and M. L. Goldberger. Scattering of low-energy photons by particles of spin Â$\frac{1}{2}$. *Physical Review*, 96(5) :1433–1438, December 1954.

[28] M. Blume. Magnetic scattering of x rays (invited). *Journal of Applied Physics*, 57 :3615–3618, April 1985.

[29] F. de Bergevin and M. Brunel. Diffraction of x-rays by magnetic materials. i. general formulae and measurements on ferro- and ferrimagnetic compounds. *Acta Crystallographica Section A*, 37(3) :314–324, May 1981.

[30] Doon Gibbs, D. R. Harshman, E. D. Isaacs, D. B. McWhan, D. Mills, and C. Vettier. Polarization and resonance properties of magnetic x-ray scattering in holmium. *Phys. Rev. Lett.*, 61(10) :1241–1244, Sep 1988.

[31] J. P. Hannon, G. T. Trammell, M. Blume, and Doon Gibbs. X-ray resonance exchange scattering. *Phys. Rev. Lett.*, 61(10) :1245–1248, Sep 1988.

[32] J. P. Hill and D. F. McMorrow. Resonant Exchange Scattering : Polarization Dependence and Correlation Function. *Acta Crystallographica Section A*, 52(2) :236–244, Mar 1996.

[33] N. Stojic, N. Binggeli, and M. Altarelli. MnL_{2,3} edge resonant x-ray scattering in manganites : Influence of the magnetic state. *Physical Review B*, 72(10) :104108, September 2005.

[34] J. B. Kortright and Sang-Koog Kim. Resonant magneto-optical properties of fe near its $2p$ levels : Measurement and applications. *Phys. Rev. B*, 62(18) :12216–12228, Nov 2000.

[35] B. T. Thole, P. Carra, F. Sette, and G. van der Laan. X-ray circular dichroism as a probe of orbital magnetization. *Physical Review Letters*, 68(12) :1943–1946, March 1992.

[36] Paolo Carra, B. T. Thole, Massimo Altarelli, and Xindong Wang. X-ray circular dichroism and local magnetic fields. *Physical Review Letters*, 70(5) :694–697, February 1993.

[37] J. Stöhr and H. König. Determination of spin- and orbital-moment anisotropies in transition metals by angle-dependent x-ray magnetic circular dichroism. *Physical Review Letters*, 75(20) :3748–3751, November 1995.

[38] M. Elzo, E. Jal, O. Bunau, S. Grenier, Y. Joly, A.Y. Ramos, H.C.N. Tolentino, J.M. Tonnerre, and N. Jaouen. X-ray resonant magnetic reflectivity of stratified magnetic structures : Eigenwave formalism and application to a W/Fe/W trilayer. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 324(2) :105–112, January 2012.

[39] L. G. Parratt. Surface studies of solids by total reflection of x-rays. *Physical Review*, 95(2) :359, July 1954.

[40] A. HERPIN. *OPTIQUE ELECTROMAGNETIQUE - CALCUL DU POUVOIR REFLECTEUR DUN SYSTEME STRATIFIE QUELCONQUE. *Comptes Rendus Hebdomadaires Des Seances De L Academie Des Sciences*, 225(3) :182–183, 1947. WOS :A1947YG26300010.

[41] F. Abeles. *la theorie generale des couches minces. *Journal De Physique Et Le Radium*, 11(7) :307–309, 1950. WOS :A1950XY40600002.

[42] Gerrit van der Laan. Studying spintronics materials with soft x-ray resonant scattering. *Current Opinion in Solid State and Materials Science*, 10(2) :120–127, April 2006.

[43] J. Zak, E. R. Moog, C. Liu, and S. D. Bader. Magneto-optics of multilayers with arbitrary magnetization directions. *Phys. Rev. B*, 43(8) :6423–6429, Mar 1991.

[44] J. Zak, E.R. Moog, C. Liu, and S.D. Bader. Universal approach to magneto-optics. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 89(12) :107–123, September 1990.

[45] Z. Q. Qiu and S. D. Bader. Surface magneto-optic kerr effect. *Review of Scientific Instruments*, 71(3) :1243, 2000.

[46] L. Névot and P. Croce. Caractérisation des surfaces par réflexion rasante de rayons x. application à l'étude du polissage de quelques verres silicates. *Revue de Physique Appliquée*, 15(3) :761–779, 1980.

[47] B. Vidal and P. Vincent. Metallic multilayers for x rays using classical thin-film theory. *Applied Optics*, 23(11) :1794–1801, June 1984.

[48] S. A. Stepanov and S. K. Sinha. X-ray resonant reflection from magnetic multilayers : Recursion matrix algorithm. *Physical Review B*, 61(22) :15302, June 2000.

[49] D. R. Lee, S. K. Sinha, D. Haskel, Y. Choi, J. C. Lang, S. A. Stepanov, and G. Srajer. X-ray resonant magnetic scattering from structurally and magnetically rough interfaces in multilayered systems. i. specular reflectivity. *Physical Review B*, 68(22) :224409, December 2003.

[50] M. W. Haverkort, N. Hollmann, I. P. Krug, and A. Tanaka. Symmetry analysis of magneto-optical effects : The case of x-ray diffraction and x-ray absorption at the transition metal $L_{2,3}$ edge. *Physical Review B*, 82(9) :094403, 2010.

[51] J. M. Tonnerre, L. Sève, D. Raoux, G. Soullié, B. Rodmacq, and P. Wolfers. Soft x-ray resonant magnetic scattering from a magnetically coupled Ag/Ni multilayer. *Physical Review Letters*, 75(4) :740–743, July 1995.

[52] F. de Bergevin, M. Brunel, R. M. Gale, C. Vettier, E. Elkai, M. Bessière, and S. Lefèbvre. X-ray resonant scattering in the ferromagnet CoPt. *Phys. Rev. B*, 46(17) :10772–10776, Nov 1992.

[53] C. Kao, J. B. Hastings, E. D. Johnson, D. P. Siddons, G. C. Smith, and G. A. Prinz. Magnetic-resonance exchange scattering at the iron L_II and L_III edges. *Physical Review Letters*, 65(3) :373, July 1990.

Chapitre 2

Films magnétiques ultra-minces

Sommaire

2.1 Introduction **40**
2.2 Propriétés **43**
2.2.1 Croissances et propriétés structurales 43
2.2.2 Propriétés magnétiques 46
2.2.3 Cas particulier du Fe 53
2.3 Caractérisation **54**
2.3.1 Laboratoire 54
2.3.2 Grands instruments 56
Bibliographie **60**

Dans le chapitre précédent nous avons détaillé les interactions entre un rayonnement de photons et la matière condensée, et plus précisément les interactions entre les rayons X et un matériau magnétique au voisinage d'un seuil d'absorption. Cependant, seules quelques notions de base du magnétisme ont été abordées. Pour comprendre les propriétés magnétiques à l'état fondamental au sein d'un échantillon, il faut minimiser l'énergie totale qui prend en compte des interactions qui agissent à des échelles différentes. La diminution de la taille de l'objet étudié va changer le rapport entre ces différentes énergies, ce qui peut changer de manière drastique les propriétés magnétiques du matériau. C'est lorsque la dimension des matériaux devient similaire aux longueurs caractéristiques du magnétisme, telle que la dimension des domaines ($0.01 - 10\mu m$) ou la distance de l'interaction d'échange ($\approx nm$) que ces changements sont les plus spectaculaires. La dimension étant de l'ordre du nanomètre on parle de nanomagnétisme [1, 2, 3]. Dans ce cadre : un des buts de la recherche en magnétisme est d'élaborer puis d'explorer, et de comprendre les propriétés magnétiques de ces nouveaux matériaux. A des échelles nanométriques, certains phénomènes magnétiques peuvent être amplifiés ou supprimés et de nouveaux peuvent apparaître. Ce chapitre montrera dans le cadre des films ultra-minces quelles sont les principales propriétés magnétiques.

Ce qui rend l'étude du magnétisme difficile, ce sont les nombreuses longueurs caractéristiques qui peuvent varier de plusieurs ordres de grandeurs. La figure 2.1 donne une vision générale des différentes longueurs caractéristiques de l'aimantation et les compare à quelques techniques de fabrication et de caractérisation des nano-objets existants aujourd'hui. Ce chapitre développera plus particulièrement ce qui se passe entre 0.1 et 100 nanomètres.

Dans un premier temps nous présenterons certains aspects de l'intérêt des études sur les films ultra-minces magnétiques, et quelles sont les utilisations de tels matériaux. Nous développerons ensuite plus précisément les caractéristiques des films minces de fer afin de donner au lecteur toutes les clés pour comprendre les études réalisées sur ces films minces dans les deux derniers chapitres. Enfin, un résumé des différentes techniques existantes pour caractériser ces échantillons sera développé dans la dernière partie.

2.1 Introduction

Les films ultraminces magnétiques sont étudiés afin de sonder les modifications de propriétés magnétiques fondamentales lorsqu'une ou plusieurs dimensions sont réduites et/ou contraintes. A l'échelle macroscopique, on peut considérer le matériau comme infini et les effets de bords sont négligeables. Mais lorsque la taille de l'échantillon est réduite, les effets de bords [1] deviennent de plus en plus importants jusqu'à être du même ordre de grandeur que les phénomènes de cœur. Il y a alors une compétition entre ces deux zones de l'échantillon qui dépendent de la structure interne et de la qualité de l'interface, et qui peuvent modifier le compor-

1. On parle de surface si le matériau est à l'air libre ou d'interface dans le cas de plusieurs couches. Dans la suite du manuscrit on utilisera toujours le terme d'interface puisqu'une surface est une interface avec le vide.

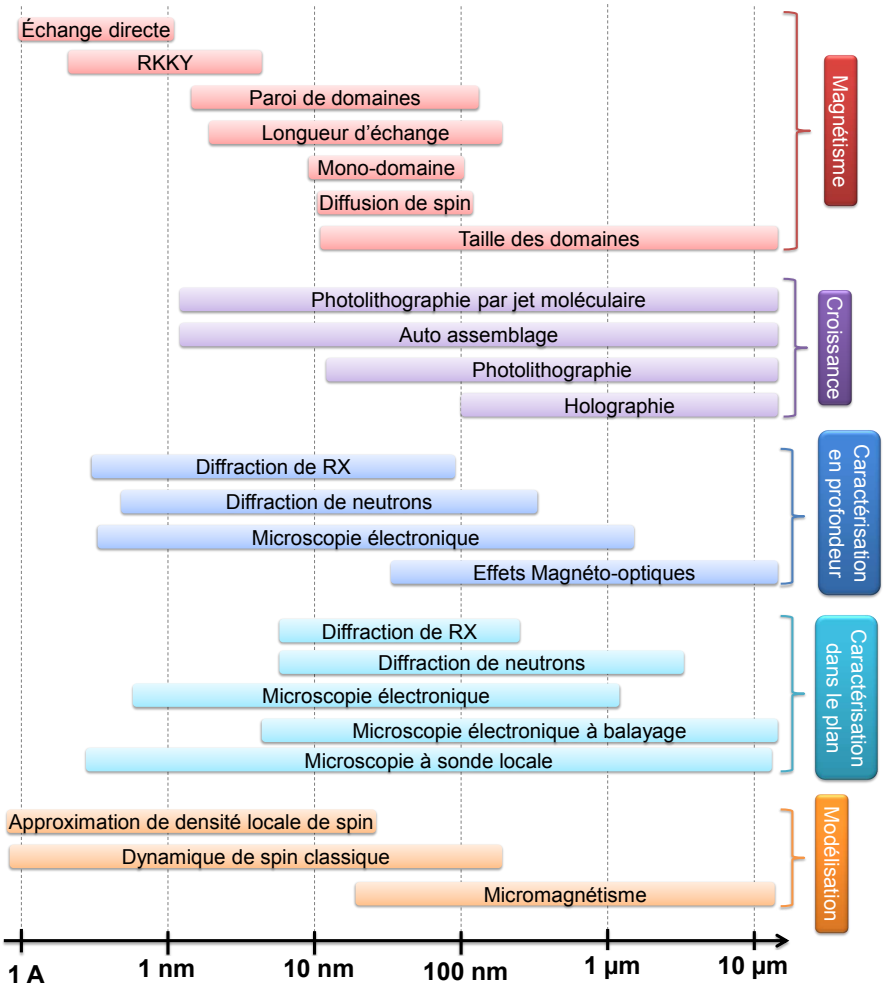


FIGURE 2.1 – Schéma des différentes longueurs caractéristiques des phénomènes magnétiques ainsi que des techniques de croissance, caractérisation dans le plan et hors du plan, et modélisation [2].

tement général de propriétés telles que le magnétisme. Les effets aux interfaces sont donc particulièrement important dans l'évolution des propriétés magnétiques. Ceci peut s'expliquer par le fait qu'à l'interface d'un matériau, la structure de bande électronique est grandement modifiée par la réduction du nombre de coordination et par la brisure de symmétrie engendrée par celle-ci. Ce changement modifie la structure électronique et donc le magnétisme. Ces structures de bandes étant modifiées par l'interface jusqu'à 5-6 monocouches [4], les propriétées magnétiques vont dépendre de l'épaisseur du film mince et ne vont pas être les mêmes en fonction de la profondeur et de la qualité de l'interface. On distinguera deux contributions : une de surface/interface et une de volume. Ces contributions sont reliées à la structure électronique, à la forme de l'interface, aux contraintes, et à la rugosité.

C'est pour comprendre les effets des différentes contributions à des échelles réduites que les études des films minces magnétiques n'ont cessé d'augmenter. L'étude des

propriétés magnétiques des films minces a commencé au début des années 60, suivant le dévelopement des techniques de dépôt qui a permis d'énormes progrès dans le contrôle de la croissance ; ainsi que la mise en place de caractérisation *in situ*. Cependant ce n'est que très récemment que l'avènement de méthodes de croissance d'échantillons et de caratérisations structurales et magnétiques a permis d'effectuer des expériences assez reproductibles pour confirmer les prédictions théoriques [4].

Dans un article, Schuller *et al* [5] regroupent les principaux évènements et découvertes scientifiques qui ont eu lieu depuis le début de l'étude des films minces. Parmi toutes ces découvertes, deux phénomènes importants découlent des études sur les films minces. Le premier est la découverte de l'existence d'une composante magnétique hors du plan dans les années 1960 [6, 7]. Lorsque l'épaisseur des films magnétiques diminue, les interfaces et les surfaces, qui deviennent dominantes par rapport cœur, contribuent à l'apparition d'une contribution magnétique perpendiculaire à l'interface et donc une anisotropie polaire (i.e. hors du plan). La deuxième découverte est le couplage charge-magnétisme qui est plus connu maintenant sous le nom de spintronique. Cette thématique est une conséquence de la découverte du phénomène de magnéto resistante géante (GMR) par Albert Fert en 1988 [8], et est considérée maintenant comme un domaine de recherche à part entière, à cheval sur le magnétisme et l'électronique. Dans ce cadre, les films minces magnétiques sont devenus des unités de construction de structures artificielles organisées en multicouches. Ces structures intègrent plusieurs films minces présentant des états magnétiques différents, et permettent d'exploiter les interactions nécessaires pour la fabrication de dispositifs appliqués. En effet, ces découvertes ont permis d'avancer dans la compréhension du lien entre magnétisme et structure, et la recherche dans le domaine des films minces contribue à une compréhension fondamentale de la physique du magnétisme ainsi qu'au développement d'applications. Au delà du phénomène de magnéto-résistance et d'effet tunnel magnétique, le développement des mémoires magnétiques à accès aléatoire découle de ces découvertes. Le but ultime de cette nouvelle branche serait de transcender la logique binaire en allant vers un ordinateur quantique qui pourrait être implémenté par la manipulation de spins électroniques ou nucléaires [2].

A l'heure actuelle, les études des films minces magnétiques peuvent se partager en cinq branches principales [9] :

- Dimensions spatiales et temporelles, qui regroupe l'anisotropie magnétique, les études de domaines magnétiques, la dynamique de spin, les transitions de phases, l'effet tunnel quantique.
- Spintronique, qui regroupe les phénomènes d'injections de spins et de transport, ainsi que les études sur les semiconducteurs quantiques.
- Structure et ordre magnétique, qui regroupe également les propriétés d'anisotropie ainsi que les phénomènes de frustrations, de désordre, d'effets de proximités, et les effets d'interfaces.
- Matériaux nouveaux tels que les matériaux hybrides, le magnétisme moléculaire et la biomagnétisation.
- Manipulation magnétique via des excitations électriques, optiques, thermiques.

Ce travail de thèse, se place dans le cadre “structure et ordre magnétque” et porte sur l’étude des films minces de fer. La partie suivante vise à expliquer les différentes énergies entrant en jeu dans le cas d’un film mince, d’un point de vue structural et magnétique. Nous verrons que ces deux aspects sont étroitement liés, et expliquerons plus précisément le cas des films ultra-minces de fer qui selon le substrat sur lequel ils sont déposés n’ont pas la même structure et donc le même ordre magnétique.

2.2 Propriétés

La compréhension des phénomènes de base au sein des films minces et à leurs interfaces est complexe car le magnétisme découle de la structure de bande d’un matériau qui elle même dépend fortement de son environnement. Il y a donc un lien très fort entre les propriétés magnétiques et les propriéts structurales. Dans cette section, nous discuterons les modifications qui peuvent intervenir au sein de couches de fer.

2.2.1 Croissances et propriétés structurales

Pour faire croître un matériau sous forme de film mince, par épitaxie, il faut un matériau support appelé substrat qui doit être cristallographiquement parfait avec un paramètre de maille le plus proche possible de celui de l’élément qu’on veut déposer afin d’assurer une bonne croissance cristalline de la couche mince. En fonction de la nature, de l’épaisseur, des conditions de dépôt, et des propriétés cristallographiques de la couche mince, ainsi que de la technique de croissance utilisée, et la qualité du substrat, l’échantillon aura un mode de croissance et des propriétés structurales différentes.

Différents modes et techniques de croissances

Il existe deux catégories de dépôt de films minces. Une catégorie regroupant les processus de dépôt par voie chimique comme l’électrodéposition qui est peu utilisée dans la construction des films minces, et une catégorie regroupant les processus physique de dépôt. Très utilisée dans le contexte des semi-conducteurs et de l’électronique, cette dernière s’effectue dans un environnement ultravide ($10^{-9} mbar$) et consiste à émettre des atomes, puis à les transporter jusqu’au substrat où ils se condensent. Les processus de pulvérisation cathodique et d’épitaxie par jet moléculaire sont les plus utilisés pour la croissance des films minces magnétiques. La méthode de dépôt utilisant l’ablation laser pulsé permet également de faire croître des couches minces mais s’avère peu pratique pour des applications industrielles. Ayant étudié des films minces élaborés par jet moléculaire ou ablation laser, je décrirai briévement uniquement ces deux techniques. Les références [10, 11] pourront être consultées pour plus de précisions.

Epitaxie par Jet Moléculaire (MBE : Molecular Beam Epitaxy) Cette technique consiste à chauffer à très haute température une source contenant le matériau à déposer afin qu’il s’évapore ou se sublime. Les particules évaporées se

propagent dans un cône d'émission et se condensent lorsqu'elles arrivent sur le substrat. Les points forts de cette technique sont : (i) le dépôt d'une grande variété de matériaux (métaux purs ou alliages, oxydes ou isolants) sur n'importe quel type de substrat, (ii) la possibilité de faire croître des échantillons sous forme de coin, (iii) la faible contamination des couches, et (iv) la bonne qualité des interfaces chimiques. Cependant le mode de croissance des films ultra-minces déposés peut entrainer une grande rugosité structurale (mode Volmer-Weber ou Stransky-Krastanov) qui peut être limitée par un faible taux de dépôt.

Epitaxie par ablation laser (PLD) Dans cette technique, au lieu de chauffer la source, on crée un plasma à sa surface en envoyant des pulses laser. Ce plasma se condense sur le substrat avec une longueur de diffusion assez faible ce qui nécessite de réduire la distance entre le substrat et la source, et peut induire, dans le cas d'une grande surface à recouvrir, une épaisseur non homogène. Cependant pour des petites surfaces, cette technique présente l'avantage d'un dépot couche par couche ayant une faible rugosité structurale (mode Frank-Van der Merve). Les défauts de cette technique de croissance sont l'interdiffusion, du fait d'une grande énergie de dépôt, qu'il peut y avoir entre le substrat et la couche déposée ainsi que la présence de particules étrangères dûes au plasma.

Changement structuraux induits par les interfaces

Lorsqu'on dépose un film mince sur un substrat par épitaxie, il y a de fortes interactions entre le substrat et le film mince. De manière idéale la phase cristalline et le paramètre de maille du substrat doivent être les mêmes que ceux du matériau qu'on veut déposer. En réalité, il existe souvent une légère différence entre le paramètre de maille du substrat et celui de la couche mince ce qui implique une contrainte de compression ou d'élongation sur la couche mince ("misfit" η en anglais) :

$$\eta = \frac{a_{couche} - a_{substrat}}{a_{couche}} \text{ où } a \text{ est le paramètre de maille} \tag{2.1}$$

Cette contrainte peut avoir une conséquence sur la distance inter-plans dans le film : le paramètre de maille dans le plan étant contracté ou dilaté, le paramètre hors du plan se trouve alors augmenté ou diminué respectivement. Ces variations, souvent décrites dans le cadre de la théorie de l'élasticité, peuvent conduire à des modifications de volume de la maille atomique et donc à des variations de propriétés magnétiques [12]. Du point de vue de la structure, il y a continuité et on parle de régime cohérent. Lorsque le film s'épaissit et dépasse une épaisseur critique t_c, la contrainte devient trop forte et il y a réarrangement cristallographique, c'est le régime incohérent. Cette contrainte épitaxiale permet de faire croître des matériaux dans une phase cristallographique différente de celle du cristal massif à température et pression ambiante comme nous le verrons dans le cas du Fe sur Cu (100).

La contrainte cristallographique peut être atténuée par le phénomène de rugosité et d'interdiffusion. La rugosité est le fait que les derniers plans cristallographiques du substrat et les premiers plans cristallographiques du film ne sont pas continus

et plats. Il y a donc des marches et des creux plus ou moins grands qui rendent les interfaces rugueuses. L'interdiffusion est liée aux atomes qui échangent leur place à l'interface entre le substrat et le film mince. La réflectivité des rayons X ne permet pas de différencier la rugosité de l'interdiffusion, toutefois dans certains cas, on peut tenir compte d'une couche intermédiaire composée d'un mélange entre le substrat et le film, en plus de la rugosité.

Une manière de contrôler la rugosité comme un paramètre intrinsèque est de créer artificiellement des marches dont on maîtrise la taille, la hauteur et la densité. La contrainte induite par cette rugosité peut alors être théoriquement quantifiée ce qui permet une meilleure maitrîse des propriétés du matériau [13]. Un substrat vicinal est donc souvent employé pour le dépôt de films minces, les marches du substrat étant créées par clivage ou polissage dans une certaine direction cristallographique.

A l'interface l'environnement atomique du film mince est donc modifié. Même si géométriquement, il y a toujours une symmétrie structurale, celle-ci est diminuée, ce qui modifie la structure électronique du matériau et donc la structure de bande. La figure 2.2 montre le cas de la bande d du Fer à l'interface comparée à celle d'un cristal massif. La différence est particulièrement grande proche du niveau de Fermi, ce qui va notablement changer les propriétés du film [13].

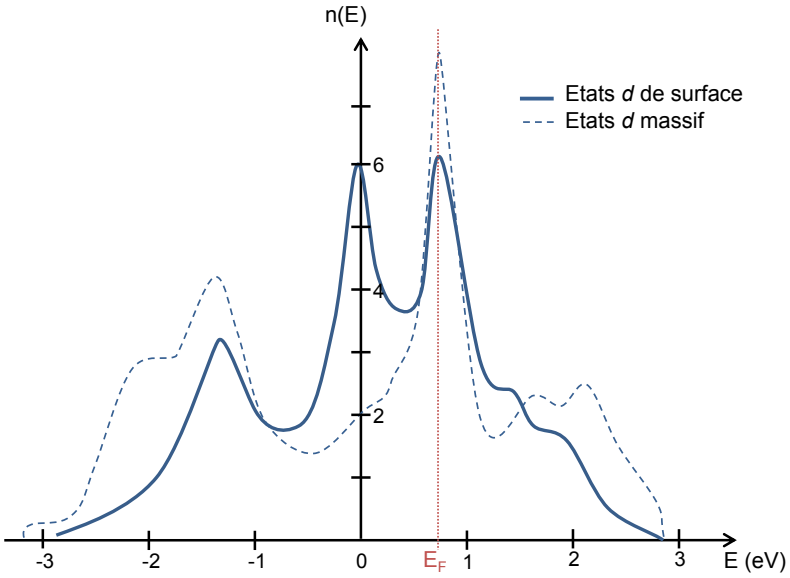


FIGURE 2.2 – Densité d'état des états d de surface en trait continu, et massif en trait pointillé, pour du Fe(100) bcc [13].

Propriétés induites par le confinement

Au delà de l'interface, le fait de déposer une faible quantité de matériau et donc de réduire les dimensions du crystal peut induire des effets quantiques. Lorsque l'épaisseur du film mince devient inférieure au libre parcours moyen des électrons de conductions $3d$ le film constitue un puit quantique. Les réflexions des électrons de

conduction $3d$ sur les surfaces extérieures donnent naissance à des ondes stationnaires dont la période dépend de la longueur d'onde de Fermi. En fonction de l'épaisseur du film la longueur d'onde de Fermi et donc le rayon de Fermi va être modifié, ce qui va modifier les propriétées électroniques et magnétiques du film mince.

2.2.2 Propriétés magnétiques

Le magnétisme est porté par le moment magnétique de chaque atome. Si on représente de manière simple le moment magnétique comme un vecteur, la longueur et la direction de ce vecteur sont les deux seules informations dont nous avons besoin pour le caractériser entièrement, et donc caractériser les propriétés magnétiques du matériau. La norme du vecteur correspond à la norme du moment magnétique tandis que la direction de ce vecteur représente son orientation, qui dépend de l'anisotropie magnétique. On peut donc partager les propriétés magnétiques en deux parties : une partie concernant la norme du moment magnétique, et une partie sur l'anisotropie magnétique. Dans les deux cas, les modifications structurales vont modifier la structure de bande ce qui va influer les propriétés aux interfaces et en profondeur du moment magnétique et de l'anisotropie magnétique [14].

Après avoir développé les paramètres qui agissent sur l'amplitude des moments magnétiques et sur l'anisotropie magnétique, nous nous intéresserons à l'effet de confinement puis à celui d'un substrat vicinal sur les propriétés magnétiques.

Moments magnétiques dans un film mince

La norme du moment magnétique peut dépendre soit de la norme du moment magnétique orbital, principalement pour les systèmes à électrons localisés tels que les terres rares ; soit de la différence du nombre d'électrons majoritaires et minoritaires pour les électrons itinérants des métaux de transition. Dans notre cas, nous nous intéressons aux métaux $3d$ où le moment orbital angulaire est très faible de part le fort champ cristallin, ce qui implique que le magnétisme vient principalement du décalage des bandes entre les spins “up” et “down”. Ce partage des bandes dépend fortement de la structure de bandes qui est modifiée dans des films minces particulièrement aux interfaces. En effet, à la surface (interface) le nombre d'atomes plus proches voisins (de même nature) diminue donc l'hybridation des électrons de la bande d est moins forte, et la structure de bande est plus étroite, ce qui augmente la densité d'état, donc l'énergie d'échange, et donc la norme du moment magnétique. En plus de cette réduction d'atomes plus proches voisins de même nature, il faut prendre en compte l'effet des contraintes induites par le substrat qui modifie le paramètre de maille et donc le magnétisme [15].

Enfin, la variation du moment magnétique en fonction de la température n'a aucune raison d'être la même près de la surface et au sein d'un cristal massif. Pour réellement connaitre l'évolution de la norme du moment magnétique en fonction de l'épaisseur du film et/ou de sa température, de manière résolue en profondeur, il faut utiliser des théories propres à chaque système étudié, qui s'appuient en général sur l'approximation de densité locale [4, 13, 16, 17]. Certains comportement généraux peuvent être soulignés.

- **Brisure de symmétrie**
  En général, la brisure de symmétrie engendre une augmentation de la valeur du moment magnétique près de l'interface par rapport à la valeur du moment magnétique du cristal massif. On a donc une augmentation aux deux interfaces du film mince. Cette augmentation est bien plus forte pour le moment orbital que pour le moment de spin, mais comme le moment orbital est très petit devant le moment de spin, sa contribution reste toujours faible dans le cas des métaux de transition $3d$.
- **Contraintes/interactions avec le substrat ou la couche de protection**
  En fonction de la contrainte du substrat ou de la couche de couverture, la distance interatomique peut augmenter, ce qui diminue l'effet de recouvrement des orbitales ainsi que l'énergie cinétique des électrons de conduction, favorisant l'énergie d'échange et augmentant la norme du moment magnétique. Inversement, si le cristal est plus compact, la structure de bande électronique va s'élargir et l'énergie cinétique augmenter, ce qui va diminuer la division des bandes de spin "up" et "down" et donc diminuer la valeur du moment magnétique [18]. On peut également noter qu'en fonction de la nature du substrat, l'hybridation ne va pas être la même à l'interface, ce qui peut changer les moments magnétiques du film mince [19].
- **Dépendance en température**
  La dépendance en température des moments magnétiques près de l'interface et au sein du film peut ne pas être la même, particulièrement si on regarde l'aimantation qui est la moyenne quadratique des moments magnétiques. Plusieurs articles [17, 20] montrent qu'en fonction de la température, l'aimantation diminue plus fortement à l'interface qu'au sein du film bien que les moments magnétiques aient une valeur toujours plus élevée à l'interface qu'au milieu du film. Ceci est dû au phénomène de fluctuations de spin qui est nul à 0K et augmente avec la température. Les spins ne sont plus tous collinéaires, et l'aimantation moyenne se trouve réduite plus rapidement à l'interface que dans le volume. Cependant ce phénomène dépend beaucoup du type d'interface et varie d'un échantillon à l'autre .

Ces trois comportements généraux seront précisés dans le cas du Fe dans la prochaine section. Maintenant que nous avons vu le comportement de la norme du moment magnétique au sein d'un film mince, nous allons regarder comment l'anisotropie magnétique et donc la direction des moments magnétiques est modifiée par la réduction de l'épaisseur des films minces et l'importance des interfaces dans de tels systèmes.

Anisotropie magnétique

Dans un cristal massif, l'anisotropie magnétique est principalement due au couplage spin-orbite et reflète la symétrie locale que le moment magnétique ressent, c'est ce qu'on appelle l'anisotropie magnétocristalline. Dans les matériaux de transition $3d$ le couplage spin-orbite des électrons $3d$ est faible et la symétrie locale très grande, ce qui implique une faible anisotropie. Cependant lorsqu'on réduit une di-

mension du cristal afin d'obtenir un film mince, l'anisotropie magnétocristalline est modifiée puisqu'à la surface la structure cristallographique change. De plus, l'anisotropie de forme (càd l'énergie dipolaire) qui est négligée dans les cristaux massifs, devient du même ordre de grandeur que l'anisotropie magnétocristalline. Enfin, les contraintes induites par le substrat et/ou la couche de protection induisent une anisotropie magnéto-élastique. Il faut donc évaluer ces trois anisotropies pour connaitre l'anisotropie globale.

Théoriquement, l'anisotropie d'un film ultra-mince peut-être partagée en deux termes : un terme de surface ou interface, et un terme massif, dit volumique. Généralement cette anisotropie est exprimée uniquement en fonction de l'angle hors du plan φ :

$$E = K_{eff} \sin^2 \varphi, \text{ avec } K_{eff} = K_v + \frac{2K_s}{t} \tag{2.2}$$

φ est l'angle entre l'aimantation et l'axe z (figure 2.3), K_{eff} la constante d'anisotropie effective, K_s la constante d'anisotropie surfacique, K_v la constante d'anisotropie volumique et t l'épaisseur du film magnétique. Si $K_{eff} > 0$ alors φ doit être égal

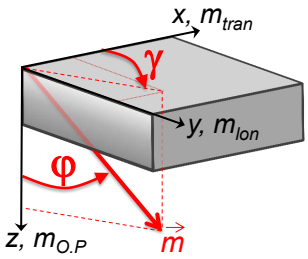


FIGURE 2.3 – Schéma d'orientation et de définition des angles φ et γ permettant d'exprimer la direction de l'aimantation hors du plan et dans le plan respectivement.

à 0 pour minimiser l'énergie, c'est à dire que l'axe de facile aimantation est polaire (i.e. hors du plan) ; tandis que si $K_{eff} < 0$ alors φ doit être égal à $\frac{\pi}{2}$ pour minimiser l'énergie, et l'axe de facile aimantation est alors dans le plan. Cette anisotropie effective K_{eff} dépend des trois termes d'anisotropie magnétocristalline, de forme et magnéto-élastique, et c'est la prise en compte de toutes ces anisotropies qui permettra de déterminer K_{eff}, c'est à dire l'axe de facile aimantation. Nous allons montrer que chaque anisotropie contribue soit au terme surfacique, soit au terme volumique, soit aux deux.

- **Anisotropie magnétocristalline**
  L'anisotropie magnétocristalline découle des intéractions entre les moments magnétiques atomiques et le réseau cristallin. Elle comprend un terme de volume, constant, et un terme de surface particulièrement important lorsque l'épaisseur du film mince est faible. Cette anisotropie de surface : K_s^{MC} a été déterminée par Louis Néel comme étant inversement proportionnelle à l'épaisseur du film mince [6]. La détermination théorique de ce terme d'anisotropie magnétocristalline de surface est compliquée. Elle découle directement du Hamiltonien représentant le couplage spin-orbit qui peut être traité comme

une perturbation dans les métaux $3d$ et est non nul près de la surface car la symétrie est brisée [13, 21]. K_s^{MC} dépend très fortement de la structure de bande près du niveau de Fermi et le signe de cette constante d'anisotropie surfacique dépend fortement du remplissage de bande à l'énergie de Fermi, c'est à dire de la densité d'état au niveau de Fermi. Or selon le signe de cette constante, l'anisotropie magnétocristalline peut favoriser un axe de facile aimantation dans le plan ($K_s^{MC} < 0$) ou hors du plan ($K_s^{MC} > 0$). Comme nous l'avons montré dans la partie précédente, la structure de bande est fortement modifiée par l'interface, et la prédiction du signe et de la valeur de K_s^{MC} est donc difficile et doit être faite pour chaque type d'échantillon.

- **Anisotropie de forme**
  L'anisotropie de forme vient de l'énergie dipolaire. Nous avons vu dans le chapitre précédent que c'était une interaction qui devenait importante pour des grandes distances et était négligeable dans les cristaux massifs puisqu'elle était minimisée par la création de domaines. Cependant dans les films minces, la réduction dans une dimension du matériau magnétique implique une forte anisotropie de forme qui ne dépend pas de l'épaisseur du film et est donc volumique : K_v^D. Cette anisotropie négative va favoriser une aimantation dans le plan. Cette approche continue n'est plus valable pour des films ultra-minces et une approche par dipôle discret permet de différencier une composante volumique et surfacique [22]. Cependant cette dernière est négligeable par rapport aux autres composantes surfaciques telle que celle provenant de l'anisotropie magnétocristalline. L'anisotropie de forme est donc principalement volumique.
- **Anisotropie magnéto-élastique**
  Cette anisotropie trouve son origine dans l'anisotropie magnétocristalline, et dépend de l'épaisseur du film mince et du régime dans lequel on est : cohérent (forte contrainte, bonne continuité cristallographique) ou incohérent (contrainte minimisée par des défauts et un réarrangement cristallographique). Dans le régime cohérent, l'anisotropie est indépendante de l'épaisseur, et est donc volumique : K_v^{ME}. En régime incohérent elle est inversement proportionnelle à l'épaisseur du film t et proportionnelle au "misfit" η et à l'épaisseur critique t_c qui est l'épaisseur du film pour laquelle on passe du régime cohérent au régime incohérent. L'anistropie magnétocristalline est alors surfacique et $K_s^{ME} \propto \eta t_c$.

Si on tient compte de ces trois principales anisotropies, les termes K_v et K_s peuvent alors s'écrire :

$$K_s = K_s^{MC} \text{ et } K_v = K_v^D + K_v^{ME} \text{ en régime cohérent} \tag{2.3}$$

et

$$K_s = K_s^{MC} + K_s^{ME} \text{ et } K_v = K_v^D \text{ en régime incohérent} \tag{2.4}$$

Chaque terme d'anisotropie surfacique ou volumique va avoir un signe positif ou négatif en fonction du film mince étudié et donc favoriser une aimantation dans le plan ou hors du plan. Il y a donc compétition entre ces différents termes pour déterminer le signe de K_{eff}.

Expérimentalement, l'expression totale de l'anisotropie K_{eff} dépend linéairement de $1/t$ (équation 2.2) ce qui permet de déterminer la valeur de K_s et K_v. Dans le cas

du Fe et du Co, K_v est toujours négatif, et c'est le signe de K_s qui va changer. Si K_s est négatif, la droite $t.K_{eff} = 2K_s + K_v.t$ est toujours négative (car t est positif), et donc l'anisotropie sera dans le plan quelle que soit l'épaisseur du film mince. Si K_s est positif, selon l'épaisseur du film la droite $t.K_{eff} = 2K_s + K_v.t$ va passer par 0 et donc K_{eff} va être positif ou négatif comme on peut le voir sur la figure 2.4. Dans ce dernier cas, l'anisotropie de forme favorise une aimantation dans le plan tandis que l'anisotropie magnétocristalline favorise une aimantation hors du plan. Pour des petites épaisseurs, $t < t_{SRT}$, l'anisotropie est hors du plan, tandis que pour des épaisseurs $t > t_{SRT}$, l'anisotropie est planaire. C'est ce qu'on appelle la transition de réorientation de spins (Spin Reorientation Transition, SRT, en anglais). Lorsque l'aimantation est dans le plan, l'axe de facile aimantation dépend alors de l'angle γ (figure 2.3) et il peut y avoir des transitions de réorientation de spins dans le plan.

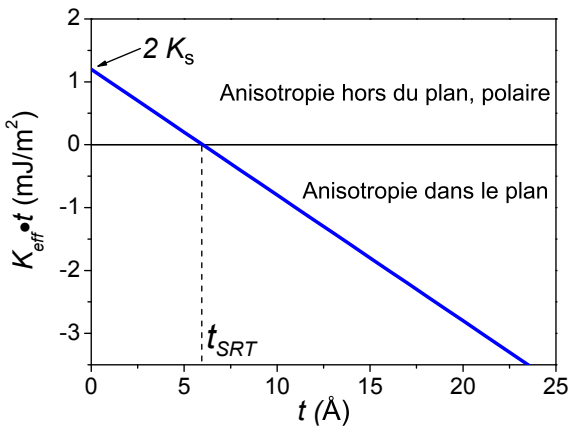


FIGURE 2.4 – Schéma de la droite $t.K_{eff} = 2K_s + K_v.t$ pour K_v négatif et K_s positif. Les ordres de grandeurs des valeurs sont bons pour des films minces de Fe et de Co [10].

Ce paragraphe donne seulement les principales énergies à prendre en compte pour calculer l'anisotropie, mais on peut aussi tenir compte de la rugosité et de l'interdiffusion [23, 24]. Même avec ce modèle le plus simple possible, la détermination de l'anisotropie magnétique d'un film mince de manière systématique reste difficile puisqu'elle dépend de l'épaisseur du film, des contraintes aux interfaces, de la structure de bande, et aussi de la température. Néanmoins ces nombreuses dépendances sont des atouts quant à la manipulation de l'anisotropie, processus très utilisé pour les applications industrielles. La compréhension et le contrôle de l'anisotropie doivent donc être recherchés en préparant des échantillons où il est possible de moduler séparément les différents paramètres intervenant.

Effet du confinement sur les propriétés magnétiques

Comme nous l'avons expliqué dans le paragraphe sur la structure des films minces, le confinement dans une dimension donne lieu à l'apparition de puits quan-

tiques. En fonction de l'épaisseur du film, ce phénomène va donner lieu à une oscillation de la densité d'état au niveau de Fermi [25, 26]. Etant donné que l'anisotropie dépend fortement de la densité d'état au niveau de Fermi de par l'anisotropie magnétocristalline, il va y avoir des phénomènes d'oscillations de celle ci et des propriétés magnétiques en découlant.

Les premiers phénomènes d'oscillations de l'anisotropie magnétique ont été observés pour des couches magnétiques de Fe ou de Co d'épaisseurs fixes déposées sur des couches minces non magnétiques (Au, Ag, Cu) [27, 28, 29]. Ces oscillations de l'anisotropie sont dues aux puits quantiques présents dans la couche non magnétique [26, 29]. Le couplage entre les états de puits quantiques d'une couche non magnétique et les propriétés d'une couche magnétique étant assez faible, il serait plus intéressant d'avoir un phénomène d'états de puits quantiques dans la couche magnétique. Bien que la présence de puits quantiques dans des couches magnétiques fut détectée à la même période [25], c'est en 2007 qu'il a été montré que la présence de ces puits quantiques affectait uniquement la densité d'états des spins majoritaires pour une couche de Fe/W(110) [30]. Ce n'est toutefois qu'en 2009 que l'oscillation de l'anisotropie magnétique due à la présence de puits quantiques dans la couche magnétique fut observée dans un échantillon de Fe sur un substrat vicinal d'Ag [31] à basse température (5K). Le Fe ayant une anisotropie quadratique, c'est la présence des marches du substrat, en levant la dégénérescence sur les deux directions, qui permet d'observer aisément un changement de l'anisotropie magnétique, et permet donc de mettre en évidence l'oscillation de celle-ci. L'étude de ce type d'échantillon pourrait permettre de manipuler la force et l'orientation de l'anisotropie en modifiant seulement l'épaisseur et les conditions aux interfaces de la couche de Fe. C'est pourquoi nous nous sommes intéressés à des échantillons de Fe sur un substrat vicinal d'Ag(116) dont l'étude sera détaillée dans le chapitre 4.

Un substrat vicinal dont on peut faire varier la densité de marches permet de mieux contrôler la rugosité et de voir l'oscillation de l'anisotropie, mais implique d'autres énergies à prendre en compte par rapport à un substrat plat pour comprendre cette anisotropie.

Effet d'un substrat vicinal sur l'anisotropie magnétique

Les films minces de métaux de transition magnétiques tels que le Co/Cu(100) et le Fe/Ag(100) ont une anisotropie quadratique dans le plan selon les directions [110], [1$\bar{1}$0], [$\bar{1}\bar{1}$0], et [$\bar{1}$10]. Lorque les marches sont alignées à l'une des directions d'anisotropie, elles diminuent la symmétrie ce qui induit un axe de facile aimantation et un axe intermédiaire d'aimantation. Pour simplifier on prendra la dénomination d'axe facile d'aimantation et d'axe difficile d'aimantation, même si ce n'est pas exactement la bonne définition. Il a été montré expérimentalement que cet axe de facile aimantation était soit perpendiculaire soit parallèle aux marches en fonction de l'épaisseur du film, de la densité des marches, de la température, et de la couche de protection [32]. Pour ces échantillons de Co (Fe) sur un substrat vicinal, on a donc deux transitions possibles de réorientation de l'axe de facile aimantation : de hors du plan à dans le plan, et de parallèle à perpendiculaire aux marches dans le plan.

Théoriquement la détermination de l'axe de facile aimantation est plus complexe. Les principales études [33, 34] ont été faites pour un film mince de Co déposé sur un substrat vicinal de Cu(11n), et ont ensuite été appliquées pour des échantillons de Fe sur Ag(11n) [32, 35]. Comme nous l'avons vu précédemment l'anisotropie magnétocristalline est particulièrement sensible à la structure atomique locale et donc à la présence de marches. Près des marches, la symmétrie est encore réduite par rapport à une interface plane, ce qui implique une augmentation de l'anisotropie magnétocristalline. Si on considère le cas où l'anisotropie peut être hors du plan ou dans le plan, parallèle ou perpendiculaire aux marches, Chuang *et al*[33] ont montré qu'il suffisait d'ajouter un terme énergétique à la constante d'énerge effective E_{eff} pour modéliser la brisure de symétrie induite par les marches :

$$E_{film} = E_v + 2\frac{E_s}{t} - 2\frac{E_{marches}}{td} = E - 2\frac{E_{marche}}{td} \tag{2.5}$$

où d est la largeur moyenne des marches et E_{marche} représente l'énergie nécessaire pour casser des liens atomiques au bord des marches. D'après l'équation 2.2, E est uniquement fonction de l'angle hors du plan φ, et c'est $E_{marches}$ qui va dépendre de manière complexe de l'angle dans le plan γ ainsi que de l'angle φ. Plus récemment, Elsen *et al* [36] ont montré que pour comprendre les différentes transitions de réorientations de l'aimantation, il fallait ajouter à l'équation 2.5 un terme d'énergie permettant de prendre en compte la rugosité due au substrat vicinal. Cette énergie $E_{vicinal}$ dépend également des angles γ et φ.

Si on considère maintenant le cas où l'épaisseur du film est suffisante pour que l'anisotropie soit uniquement dans le plan, parallèle ou perpendiculaire aux marches, Cinal *et al*[34] ont développé une théorie utilisant : le modèle des liaisons fortes, le phénomène d'hybridization combiné avec le phénomène de relaxation locale de la structure atomique près des marches, ainsi qu'un effet de dédoublement du champ cristallin dû aux marches. Ce modèle permet de donner l'énergie en fonction de l'angle dans le plan γ entre l'axe des marches et l'aimantation.

$$E(\gamma) = \frac{K_c}{4}\sin^2(2\gamma) + K_u \sin^2(\gamma) - MH\cos(\gamma - \gamma_H) \tag{2.6}$$

Le dernier terme correspond à l'interaction entre l'aimantation et le champ magnétique appliqué H. Le premier terme correspond à l'anisotropie quadratique du Co ou du Fe. Le deuxième terme prend en compte les marches, en prenant en compte la relaxation locale de la structure, le dédoublement du champ cristallin et le transfert de charges. Ce modèle compliqué montre que l'anisotropie uniaxiale magnétocristalline oscille à cause de la présence de puits quantiques dans le film mince magnétique [34].

Un substrat vicinal implique donc des termes d'anisotropies suplémentaires qui induisent une réorientation de transition de l'anisotropie dans le plan, en plus de celle existant hors du plan. Le mélange de ces deux phénomènes implique une théorie assez compliquée qui montre que l'anisotropie magnétique peut être contrôlée si on contrôle suffisamment la structure aux interfaces.

2.2.3 Cas particulier du Fe

Nous venons de discuter la croissance des films et quels changements la structure cristallographique et électronique ainsi que les propriétés magnétiques subissaient du fait de la réduction d'une dimension et de l'importance des interfaces. Ce paragraphe est consacré au cas particulier des films minces dans le cas du Fe. On présentera d'abord les propriétés du cristal massif, puis celles d'un film mince bcc, et enfin celles d'un film mince fcc.

Cristal massif

Un cristal massif de Fe a une structure cubique centré (bcc, α-Fe) à température et pression ambiante avec un paramètre de maille de 2.8665Å. Ce matériau est alors ferromagnétique avec un moment magnétique par atome de $2.2\pm0.5\mu_B$. Lorsque le Fe est chauffé, au delà de 1183K il devient cubique face centré (fcc) avec un paramètre de maille de 3.59Å. Ce changement de volume ainsi que du nombre de premiers voisins induit un ordre antiferromagnétique, et un moment magnétique de $1.8\pm0.02\mu_B$, c'est la phase γ-Fe. Enfin pour des températures supérieures à 1663K, le fer redevient bcc mais n'est plus magnétique [37]. Dans le cadre de l'étude de films minces, le fer est particulièrement intéressant puisque dans le tableau périodique, il est placé entre les éléments antiferromagnétiques (Cr, Mn), et les éléments ferromagnétiques (Co, Ni). Il est d'ailleurs bien connu que les films minces de Fe épitaxiés peuvent présenter une grande variétée de structures magnétiques [4].

Films minces bcc

Lorsqu'on dépose un film mince de Fe sur un substrat bcc ayant un paramètre de maille proche de 2.87Å, ou sur un substrat fcc ayant un paramètre de maille proche de $2.87\sqrt{2} = 4.059$Å, celui ci croit sans contraintes dans une phase bcc. Suivant l'épaisseur, son moment magnétique peut-être modifié : en fonction du nombre de premiers voisins, une amplitude du moment entre $2.2\mu_B$ (massif) et $4\mu_B$ (atome isolé) peut-être trouvée.Les études théoriques à 0K montrent effectivement que le moment magnétique pour une surface (100) de Fe est supérieur à $2.2\mu_B$ avec une valeur comprise entre 2.87 et $3.12\mu_B$ [4]. Plusieurs remarques importantes peuvent être faites concernant ces valeurs. Premièrement, la variation de l'aimantation, qui est une moyenne des moments magnétiques, au sein de la couche et aux interfaces n'est pas la même en fonction de la température et dépend fortement du type d'interface [38, 17]. Deuxièmement, la valeur du moment magnétique est principalement dû au moment de spin ($2.18\mu_B$) dans le cas du bulk contre un moment orbital de $0.05\mu_B$, ce qui vérifie l'approximation consistant à négliger le moment magnétique orbital et donc le couplage spin-orbite des électrons $3d$. De plus aux interfaces, une augmentation du moment orbital de 240% a été observée et est supérieure à celle du moment de spin (132%), comme annoncé dans la partie précédente [4].

Concernant l'anisotropie, il y a une transition de réorientation de spin de hors du plan à dans le plan lorsque l'épaisseur et la température augmente pour des épaisseurs de quelques monocouches atomiques. Sur un substrat plan, il y a une anisotropie quadratique dans le plan dans les directions [110], [$1\bar{1}0$], [$\bar{1}\bar{1}0$], et [$\bar{1}10$].

Si on fait croître un tel film sur un substrat vicinal avec l'orientation des marches parallèle à une de ces directions, l'anisotropie planaire devient alors uniaxiale comme nous l'avons discuté dans la section précédente.

Films minces fcc

Si le film mince de Fe est déposé sur un substrat de Cu(100) fcc, le paramètre du Cuivre (3.6149Å) est du même ordre de grandeur que celui du paramètre de la phase fcc du fer. Quelle que soit la température, le fer peut donc être contraint dans une phase fcc pour des épaisseurs inférieures à 10 monocouches. Cependant les contraintes sont très fortes, et la qualité des interfaces du film dépend beaucoup des conditions de croissance (PLD ou MBE). La très grande corrélation entre la structure et le magnétisme ne permet pas de donner un modèle homogène dans toute la couche. L'étude du γ-Fe sur Cu(100) est un archétype de la complexité de la structure magnétique dans un film mince. C'est pour cela que nous avons exploré l'apport de la SXRMR pour un tel système, et ses propriétés seront plus largement décrites dans le chapitre 5.

2.3 Caractérisation

Le lien étroit entre structure et propriétés magnétiques impose une caractérisation fine des films et de leurs interfaces. Il est notamment important de caractériser toutes les étapes de la croissance, ainsi que l'évolution des propriétés magnétiques. Pour cela, il est nécessaire d'avoir accès à des sondes permettant de faire la carte de l'aimantation à des échelles nanométriques, d'étudier les propriétés structurales aux interfaces, d'avoir une sélectivité chimique.

Dans cette section on listera les principales techniques existantes de caractérisation de films minces magnétiques. La première partie appelée "De laboratoire" regroupera les expériences qu'on peut trouver autour d'un bâti de croissance, et/ou au sein d'un laboratoire. La seconde partie appelée "Grands instruments" regroupera les expériences qu'on peut effectuer dans les grands instruments, c'est-à-dire dans les synchrotrons et les réacteurs de neutrons [2].

2.3.1 Laboratoire

Caractérisation structurale

Il est important lors de la croissance d'un film ultra-mince de contrôler la composition ainsi que le nombre de couches, la qualité cristallographique et la qualité des interfaces. Pour cela plusieurs techniques de diffraction d'électrons, de spectroscopie et de microscopie sont utilisées. En général ces expériences sont couplées avec le bâti de croissance permettant une caractérisation in-situ. Celles couramment mises en œuvres au Max Planck Institut à Halle où les films minces étudiés dans ce travail ont été préparés, sont :

2. Il existe aussi des sources de muons, mais nous n'en parlerons pas ici.

- La diffraction d'électrons à basse énergie : LEED (Low Energy Electron Diffraction) qui permet de caractériser la structure.
- La diffraction d'électrons haute énergie en réflexion : RHEED (Reflection High-Energy Electron Diffraction) qui permet de contrôler la structure et le nombre de couches atomiques déposées.
- La spectroscopie d'électrons Auger : AES (Auger Electron Spectroscopie) qui permet de contrôler la stoechiométrie et la composition chimique.
- La microscopie à effet tunnel : STM (Scanning Tunneling Microscope) qui donne une image de la surface.

Il est ensuite possible de caractériser la structure des films minces avec des expériences qui ne sont en général non couplées à un bâti de croissance. Les plus courantes en laboratoire sont :

- La microscopie à force atomique : AFM (Atomic Force Microscopy) qui permet de caractériser la topographie de la surface.
- la microscopie électronique en transmission : TEM (Transmission Electron Microscopy) qui permet d'effectuer une image de la surface ou d'une coupe de l'échantillon.
- La diffraction de rayon X : XRD (X-Ray Diffraction) qui permet de déterminer la structure cristallographique.
- La réflectivité des rayons X : XRR (X-Ray Reflectivity) qui permet de caractériser les épaisseurs et les rugosités d'un empilement de films minces.

Caractérisation magnétique

Tout comme les techniques de caractérisation structurale, certaines techniques magnétiques peuvent se trouver couplées à un bâti de croissance, ou bien séparées. De part la complexité d'un bâti de croissance et des expériences de caractérisations magnétiques, il est moins courant de voir ces techniques couplées.

- L'effet Kerr magnéto-optique : MOKE (Magneto-optique Kerr Effect) qui permet d'effectuer des cycles d'hystérésis.
- La microscopie Kerr qui permet d'imager des domaines magnétiques.
- La microscopie d'électrons de basse énergie polarisés en spin : SPLEEM (Spin Polarized Low Energy Electron Microscopy) qui donne une image de la structure en cours d'élaboration et des domaines magnétiques dans le même temps.
- Les magnétomètres VSM (Vibrating Sample Magnetometer), torsion oscillatory magnetometer (TOM) et SQUID [3] (Superconducting Quantum Interference Device) qui permettent d'effectuer des cycles d'hystérésis et de déterminer l'amplitude de l'aimantation moyenne.

Ces techniques de "laboratoires" offrent une bonne caractérisation mais peuvent avoir une précision et une résolution limitée. L'utilisation des rayonnements de neutrons ou synchrotron permet d'aller au delà de ces limites et d'aller plus loin dans la caractérisation structurale et magnétique.

3. C'est aussi le nom d'un animal marin !

2.3.2 Grands instruments

La diversité des interactions responsables des phénomènes magnétiques requiert des sondes sensibles à l'échelle atomique aux structures électroniques ainsi qu'à la géométrie structurale et ceci pour différentes dimensions temporelles et spatiales latéralement ou verticalement. Pour sonder des hétérostructures multiéléments, la résolution chimique et orbitale est particulièrement importante. L'utilisation du rayonnement synchrotron ou de neutrons permet de telles caractérisations.

Durant les 20 dernières années, l'utilisation des propriétés du rayonnement synchrotron dans des techniques comme la photoémission résolue en spin, le dichroïsme magnétique circulaire, ou bien la diffusion magnétique résonante a montré des capacités uniques pour sonder les phénomènes magnétiques [9]. De plus le développement de la diffusion de neutrons, et de la réflectivité de neutrons polarisés a également contribué à la compréhension des phénomènes magnétiques dans les films minces [39]. Tout d'abord nous mentionnerons des méthodes permettant de donner une information plus précise sur la structure, notamment l'environnement local, et la qualité des interfaces. Ensuite nous listerons les techniques permettant de sonder directement les moments magnétiques et la structure de bande. Enfin, nous détaillereons les techniques résolues en profondeur comme la XRMR.

Structure

Les caractéristiques liées au rayonnement synchrotron comme le flux de photons intense, le contrôle de la polarisation des photons, et le choix de l'énergie des photons permettent de sonder des propriétés inaccessibles dans les expériences de laboratoire.

- La spectroscopie d'absorption près des seuils d'absorptions :XANES (X-ray Absorption Near Edge structure), et loin de seuils : EXAFS (Extended X-ray Absorption Fine Structure).
- La techniques de diffraction à incidence rasante : GIXRD (Grazing Incidence X-Ray Diffraction).
- La réflectivité des rayons X au voisinage d'un seuil.

Structure de bande et moments magnétiques

Le rayonnement synchrotron donne aussi accès aux structures de bandes et à la valeur des moments magnétiques grâce à différentes techniques.

- La photoémission résolue en spin.
- Le dichroïsme magnétique circulaire par rayons X durs et mous : XMCD (X-ray Magnetic Circular Dichroism)
- La diffusion magnétique résonante de rayons X : XRMS (X-ray Resonant Magnetic Scattering).

Les techniques listées ci dessus permettent par une approche de spectroscopie de sonder l'amplitude de l'aimantation, et de spécifier quels éléments et/ou quelles orbitales présentent une polarisation en spin. Les approches de microscopie permettent une résolution spatiale latérale et les approches de diffraction sont sensibles à la périodcitée dans les trois dimensions. Néanmoins elles donnent en général une moyenne de l'aimantation sur toute l'épaisseur du film et ne sont pas résolues en

profondeur. Or comme nous l'avons vu, l'interface peut modifier grandement les propriétés magnétiques d'un échantillon par rapport au centre. Durant ce travail de thèse nous nous sommes intéressés à deux systèmes de films minces de Fe déjà étudiés par les méthodes citées ci-dessus, mais très peu étudiés avec des méthodes résolues en profondeur.

Profil magnétique résolu en profondeur

Il existe principalement trois méthodes qui permettent de dériver un profil d'aimantation en fonction de la profondeur du film mince. Ces méthodes sont résolues en profondeur, ce qui signifie qu'on peut partager un film magnétique en plusieurs couches magnétiques ayant chacune une épaisseur propre. La limite d'épaisseur de ces couches magnétiques pour comprendre le signal permet de définir la limite de résolution.

- **Diffusion nucléaire résonante et spectroscopie Mössbauer, RNS**
  La diffusion nucléaire résonante basée sur l'effet Mössbauer permet de sonder la norme et la direction de l'aimantation au sein de l'échantillon de manière résolue verticalement grâce à l'insertion d'isotopes à des positions différentes au sein du film. La résolution de cette technique est très bonne (inférieure au nanomètre), mais seuls certains matériaux (principalement le Fe, et le Co) peuvent être sondés, et cette technique est peu sensible au magnétisme induit.
- **Réflectivité de Neutrons Polarisés, PNR**
  Les neutrons polarisés portent un spin intrinsèque et interagissent directement avec le moment magnétique du noyau. La réflectivité de neutrons polarisés est donc une approche bien établie et puissante pour examiner les profils magnétiques en fonction de la profondeur. On peut distinguer deux approches pour des mesures de réfléctivité : la réflectivité spéculaire où l'angle d'incidence est égal à l'angle réfléchi, et la réfléctivité non spéculaire. Alors que la réflectivité spéculaire permet de déterminer la structure magnétique en profondeur, la réflectivité non spéculaire permet d'étudier la distribution latérale. Cette technique est également très sensible aux liens entre strucure et magnétisme, et aux différents domaines d'aimantation qu'il peut y avoir. Cependant, elle n'est sensible qu'à la projection de l'aimantation dans le plan parallèle à la surface de l'échantillon [4], ne bénéficie pas d'une sélectivité chimique, et a une résolution de l'ordre du nanomètre.
- **Réflectivité Magnétique Résonante de rayons X, XRMR**
  Cette technique largement expliquée dans le premier chapitre permet de sonder un profil d'aimantation résolu en profondeur avec une résolution de 2-3 couches monoatomiques et pour des films minces d'épaisseurs inférieures à la centaine de nanomètres pour les rayons X mous dans le cadre du Fe. La force de cette technique, malgré une analyse délicate, est le fait d'être sensible aux trois composantes d'aimantations, dont la composante hors du plan, ainsi que d'être chimiquement sélective.

4. Il existe des techniques expérimentales pour augmenter la sensibilité à la composante hors du plan [40, 41]

Le tableau 2.1 permet de récapituler les points forts et les points faibles des techniques de PNR et de soft XRMR qui sont des approches complémentaires [42].

	Neutrons	**RX**
Taille échantillon, épaisseur du film mince	grande, épaisseur $> 2 - 3nm$	petite ou grande, épaisseur pouvant aller jusqu'à la monocouche atomique
Partie de l'échantillon sondée (taille du faisceau)	échantillon complet, il faut donc un échantillon par épaisseurs sondées	par région, possibilité d'étudier des échantillons coins.
Sélectivité chimique	indirecte	oui
Profondeur sondée	grande, échantillon en entier, jusqu'à plusieurs centimètres	Petite pour les RX mous environ $100nm$ maximum, moyenne pour les RX durs jusqu'à quelques μm.
Résolution	Bonne : $2 - 3nm$	Très bonne : $0.5 - 1nm$
Sensibilité aux directions d'aimantation	Dans le plan de la surface de l'échantillon	toutes directions
Type d'interaction	directe entre le spin du neutron et de l'électrons	indirecte, dépend de la structure de bande.

Table 2.1 – Comparaison de la réflectivité de Neutrons, et RX

Un dernier aspect que nous n'aborderons pas ici est la caractérisation résolue temporellement, qui permet de mettre en avant les phénomènes dynamiques de l'aimantation tels que les excitations collectives des phonons, magnons, polarons ou excitons. Ces techniques sont en plein essor avec l'avènement du laser à électrons libres (X-FEL) et des dispositifs pompe/sonde dans les synchrotrons.

Dans ce chapitre, nous avons montré à quel point les interfaces pouvaient changer les propriétés structurales et magnétiques des films minces et résumé qu'elles étaient les principales techniques qui permettaient de sonder ce changement. Cependant, nous n'avons abordé que certains aspects des propriétés des films minces, laissant de côté tous les aspects de transport et de couplage qui sont largement étudiés dans les multicouches. Ce chapitre nous a également permis de montrer en quoi l'étude des films minces était importante et compliquée, et nous avons pu introduire l'intérêt d'étudier des films minces de Fe bcc sur un substrat vicinal d'Ag et des films minces de Fer fcc sur un substrat de

Cu(001). Ces études seront développées plus largement dans les chapitre 4 et 5 respectivement. Enfin, nous avons mis en évidence les avantages et inconvénients de la réflectivité magnétique résonante de rayons X (XRMR) par rapport aux autres techniques moyennant les propriétés magnétiques sur toute l'épaisseur du film, et par rapport aux autre techniques résolues en profondeur. Avant d'entamer l'étude plus poussée de nos deux échantillons de Fe/Ag(116) et Fe/Cu(100), nous allons expliciter les détails expérimentaux dans le prochain chapitre.

Bibliographie

[1] S. D. Bader. Colloquium : Opportunities in nanomagnetism. *Rev. Mod. Phys.*, 78(1) :1–15, Jan 2006.

[2] M.R. Fitzsimmons, S.D. Bader, J.A. Borchers, G.P. Felcher, J.K. Furdyna, A. Hoffmann, J.B. Kortright, Ivan K. Schuller, T.C. Schulthess, S.K. Sinha, M.F. Toney, D. Weller, and S. Wolf. Neutron scattering studies of nanomagnetism and artificially structured materials. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 271(1) :103–146, April 2004.

[3] G. Srajer, L.H. Lewis, S.D. Bader, A.J. Epstein, C.S. Fadley, E.E. Fullerton, A. Hoffmann, J.B. Kortright, Kannan M. Krishnan, S.A. Majetich, T.S. Rahman, C.A. Ross, M.B. Salamon, I.K. Schuller, T.C. Schulthess, and J.Z. Sun. Advances in nanomagnetism via x-ray techniques. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 307(1) :1–31, December 2006.

[4] C A F Vaz, J A C Bland, and G Lauhoff. Magnetism in ultrathin film structures. *Reports on Progress in Physics*, 71(5) :056501, 2008.

[5] Ivan K Schuller, S Kim, and C Leighton. Magnetic superlattices and multilayers. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 200 :571–582, October 1999.

[6] Louis Néel. Anisotropie magnétique superficielle et surstructures d'orientation. *Journal de Physique et le Radium*, 15(4) :225–239, 1954.

[7] U. Gradmann and J. Müller. *Physica Status Solidi*, 27(24) :313, 1968.

[8] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas. Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices. *Physical Review Letters*, 61(21) :2472–2475, November 1988.

[9] J.B. Kortright, D.D. Awschalom, J. Stöhr, S.D. Bader, Y.U. Idzerda, S.S.P. Parkin, Ivan K. Schuller, and H.-C. Siegmann. Research frontiers in magnetic materials at soft x-ray synchrotron radiation facilities. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 207(103) :7–44, December 1999.

[10] M. T. Johnson, P. J. H. Bloemen, F. J. A. den Broeder, and J. J. de Vries. Magnetic anisotropy in metallic multilayers. *Reports on Progress in Physics*, 59(11) :1409–1458, 1996.

[11] Etienne du Trémolet de Lacheisserie *et al.* *Magnétisme : II.Matériaux et applications.* Presses Universitaires de Grenoble, 1999.

[12] V. L. Moruzzi, P. M. Marcus, and J. Kübler. Magnetovolume instabilities and ferromagnetism versus antiferromagnetism in bulk fcc iron and manganese. *Phys. Rev. B*, 39 :6957–6961, Apr 1989.

[13] F.Gautier. *Metallic Multilayers, Materials Science Forum Volumes 59 et 60.* Trans Tech Publications, 1990.

[14] R. Zdyb, T. O. Mentes, A. Locatelli, M. A. Niño, and E. Bauer. Magnetization and structure of ultrathin fe films. *Physical Review B*, 80(18) :184425, November 2009.

[15] Song Lu, Qing-Miao Hu, Marko P. J. Punkkinen, Börje Johansson, and Levente Vitos. First-principles study of fcc-Ag/bcc-Fe interfaces. *Physical Review B*, 87(22) :224104, June 2013.

[16] H. Krakauer, A. J. Freeman, and E. Wimmer. Magnetism of the ni(110) and ni(100) surfaces : Local-spin-density-functional calculations using the thin-slab linearized augmented-plane-wave method. *Physical Review B*, 28(2) :610–623, July 1983.

[17] H Hasegawa and Japan .Inst. for Solid State Phys., Tokyo Univ. Finite-temperature surface magnetism of fe(100). *Journal of Physics F : Metal Physics (1971-1988)*, 17(1) :165–183, 1987.

[18] C. S. Wang, B. M. Klein, and H. Krakauer. Theory of magnetic and structural ordering in iron. *Physical Review Letters*, 54(16) :1852–1855, April 1985.

[19] Soon C. Hong, A. J. Freeman, and C. L. Fu. Structural, electronic, and magnetic properties of clean and Ag-covered Fe monolayers on W(110). *Physical Review B*, 38(17) :12156–12163, December 1988.

[20] Pui-Wai Ma, C.H. Woo, and S.L. Dudarev. High-temperature dynamics of surface magnetism in iron thin films. *Philosophical Magazine*, 89(32) :2921–2933, 2009.

[21] G. H. O. Daalderop, P. J. Kelly, and M. F. H. Schuurmans. Magnetic anisotropy of a free-standing co monolayer and of multilayers which contain co monolayers. *Physical Review B*, 50(14) :9989–10003, October 1994.

[22] H. J. G. Draaisma and W. J. M. de Jonge. Surface and volume anisotropy from dipole-dipole interactions in ultrathin ferromagnetic films. *Journal of Applied Physics*, 64(7) :3610–3613, October 1988.

[23] Patrick Bruno. Dipolar magnetic surface anisotropy in ferromagnetic thin films with interfacial roughness. *Journal of Applied Physics*, 64(6) :3153–3156, September 1988.

[24] D. M. Schaller, D. E. Bürgler, C. M. Schmidt, F. Meisinger, and H.-J. Güntherodt. Spin reorientations induced by morphology changes in Fe/Ag(001). *Physical Review B*, 59(22) :14516–14519, June 1999.

[25] F. J. Himpsel. Fe on Au(100) : Quantum-well states down to a monolayer. *Physical Review B*, 44(11) :5966, 1991.

[26] J. E. Ortega, F. J. Himpsel, G. J. Mankey, and R. F. Willis. Quantum-well states and magnetic coupling between ferromagnets through a noble-metal layer. *Physical Review B*, 47(3) :1540, January 1993.

[27] J. Unguris, R. J. Celotta, and D. T. Pierce. Observation of two different oscillation periods in the exchange coupling of Fe/Cr/Fe(100). *Physical Review Letters*, 67(1) :140, July 1991.

[28] S. S. P. Parkin. Systematic variation of the strength and oscillation period of indirect magnetic exchange coupling through the 3d, 4d, and 5d transition metals. *Physical Review Letters*, 67(25) :3598, December 1991.

[29] Z Q Qiu and N V Smith. Quantum well states and oscillatory magnetic interlayer coupling. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 14(8) :R169, 2002.

[30] J. Schäfer, M. Hoinkis, Eli Rotenberg, P. Blaha, and R. Claessen. Spin-polarized standing waves at an electronically matched interface detected by fermi-surface photoemission. *Physical Review B*, 75(9) :092401, March 2007.

[31] J. Li, M. Przybylski, F. Yildiz, X. D. Ma, and Y. Z. Wu. Oscillatory magnetic anisotropy originating from quantum well states in fe films. *Phys. Rev. Lett.*, 102(20) :207206, May 2009.

[32] R. K. Kawakami, Ernesto J. Escorcia-Aparicio, and Z. Q. Qiu. Symmetry-Induced magnetic anisotropy in fe films grown on stepped ag(001). *Physical Review Letters*, 77(12) :2570, 1996.

[33] D. S. Chuang, C. A. Ballentine, and R. C. O'Handley. Surface and step magnetic anisotropy. *Physical Review B*, 49(21) :15084–15095, June 1994.

[34] M. Cinal and A. Umerski. Magnetic anisotropy of vicinal (001) fcc Co films : Role of crystal splitting and structure relaxation in the step-decoration effect. *Physical Review B*, 73(18) :184423, May 2006.

[35] F. Bisio, R. Moroni, F. Buatier de Mongeot, M. Canepa, and L. Mattera. Isolating the step contribution to the uniaxial magnetic anisotropy in nanostructured Fe/Ag(001) films. *Physical Review Letters*, 96(5) :057204, February 2006.

[36] M. Elsen, J. H. Gao, V. Repain, C. Chacon, Y. Girard, J. Lagoute, G. Rodary, J. Ferré, and S. Rousset. Discontinuous vs. continuous spin reorientation transition of magnetic films on vicinal surfaces. *EPL (Europhysics Letters)*, 88(2) :27006, October 2009.

[37] Wohlfarth. *Ferromagnetic Materials, Volume 1.* North-Holland Publishing Company, 1980.

[38] H Hasegawa and Japan .Inst. for Solid State Phys., Tokyo Univ. Finite-temperature surface properties of itinerant-electron ferromagnets. *Journal of Physics F : Metal Physics (1971-1988)*, 16(3) :347–364, 1986.

[39] Frédéric Ott. *Etude de couches minces magnétiques par réflectivité de neutrons polarisés. Diffusion hors spéculaire sur des structures périodiques.* PhD thesis, Université Paris XI Orsay, 1998.

[40] Nian Ji, M. S. Osofsky, Valeria Lauter, Lawrence F. Allard, Xuan Li, Kevin L. Jensen, Hailemariam Ambaye, Edgar Lara-Curzio, and Jian-Ping Wang. Perpendicular magnetic anisotropy and high spin-polarization ratio in epitaxial fe-n thin films. *Physical Review B*, 84(24) :245310, December 2011.

[41] S. M. Watson, T. Hauet, J. A. Borchers, S. Mangin, and Eric E. Fullerton. Interfacial magnetic domain wall formation in perpendicular-anisotropy, exchange-spring films. *Applied Physics Letters*, 92(20) :202507–202507–3, May 2008.

[42] E. Kravtsov, D. Haskel, S. G. E. te Velthuis, J. S. Jiang, and B. J. Kirby. Complementary polarized neutron and resonant x-ray magnetic reflectometry measurements in Fe/Gd heterostructures : Case of inhomogeneous intralayer magnetic structure. *Physical Review B*, 79(13) :134438, April 2009.

Chapitre 3

Dispositifs expérimentaux et Programmes d'analyse

Sommaire

3.1 Préparation des films ultraminces 64
3.1.1 Bâtis de croissance 64
3.1.2 Calibration des sources 66
3.1.3 Préparation du substrat 66
3.1.4 Fabrication de l'échantillon 67
3.1.5 Caractérisation magnétique in situ : MOKE 68
3.2 Production des Rayons X, cas particulier du synchrotron 70
3.2.1 Production et propriétés du rayonnement synchrotron . . 70
3.2.2 SEXTANTS : une ligne de lumière de rayons X mous . . 71
3.3 Dispositifs de SXRMR 72
3.3.1 Caractéristiques générales 73
3.3.2 RESOXS 75
3.3.3 Configurations Expérimentales 81
3.4 Analyse 83
3.4.1 Analyse qualitative 84
3.4.2 Analyse quantitative : DYNA 88
Bibliographie 98

Le premier chapitre a permis de présenter les bases de l'interaction du rayonnement avec un matériau magnétique ainsi que la théorie de la réflectivité magnétique. Le deuxième chapitre a exposé en quoi l'étude de films minces était intéressante. Ce troisième chapitre donne les détails sur l'élaboration des systèmes étudiés, sur les dispositifs expérimentaux utilisés et sur l'analyse des données. Il permet d'expliquer comment les résultats présentés dans les chapitres 4 et 5 ont été trouvés.

3.1 Préparation des films ultraminces

Dans le cadre de cette thèse, les échantillons ont été fabriqués au Max Planck Institut for Microstructure Physics dans le département dirigé par Jürgen Kirshner au sein de l'équipe du professeur Marek Przybylski. Avec Carlos Viol Barbosa nous nous sommes intéressés à la dépendance en température de l'aimantation au sein du système Fe/Cu(100). Avec Maciek Dabrowski et Piotr Kuswik nous avons étudié des systèmes Fe/Ag(116).

L'équipe du professeur Marek Przybylski, *Metal and oxides nanostructures* possède un système de multi-chambres sous ultravide. Leur recherche est axée sur la préparation et la caractérisation magnétique de systèmes à basses dimensions comme des multicouches ou films ultra minces. L'épitaxie des films se fait par jet moléculaire (MBE), ou bien par ablation laser (PLD). Les modes de croissances et les structures cristallographiques sont contrôlés par réflection d'électrons hautes énergies (RHEED) et par diffraction d'électrons basses énergies (LEED). La qualité des échantillons peut être vérifiée par spectroscopie d'électrons Auger (AES), spectroscopie de photoémission de rayons X (X-ray Photoemission Spectroscopy, XPS), et microscope à effet tunnel (STM). Enfin, de l'effet Kerr magnéto-optique (MOKE) peut être effectué in situ pour mesurer les cycles d'hystérésis polaire et longitudinal de l'échantillon magnétique.

3.1.1 Bâtis de croissance

La figure 3.1 représente le schéma d'interconnexion des bâtis de croissance avec les différentes chambres d'analyse, et de caractérisation. Le transfert des échantillons d'une enceinte sous vide à l'autre est assuré par différentes cannes de transfert, et le vide est de l'ordre de 10^{-9}mbar dans tout le bâti. En effet, la fabrication de films minces exige un très bon vide afin d'éviter la contamination chimique des élements déposés, et de conserver leurs propriétés propres. La figure 3.2 est une photographie montrant les différents éléments du bâti.

L'élaboration de l'échantillon se fait en plusieurs étapes. La longueur et la complexité de chaque étape dépend du type d'échantillon, et il est nécessaire d'effectuer des analyses structurales, chimiques et/ou magnétiques durant ces étapes. Dans les sous parties suivantes, nous décrirons ces différentes étapes : calibration des sources, nettoyage du substrat, dépot des couches, et caractérisation in-situ.

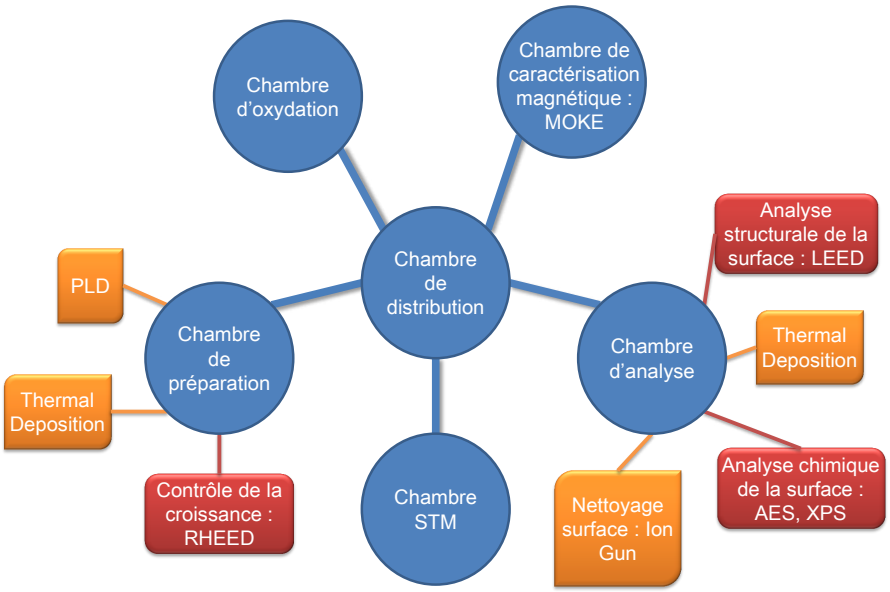


FIGURE 3.1 – Schéma du système de multi-chambres sous ultra vide. En bleu sont représentées les différentes chambres ; en rouge, les appareils de contrôles de croissance ; et en orange les appareils de croissance

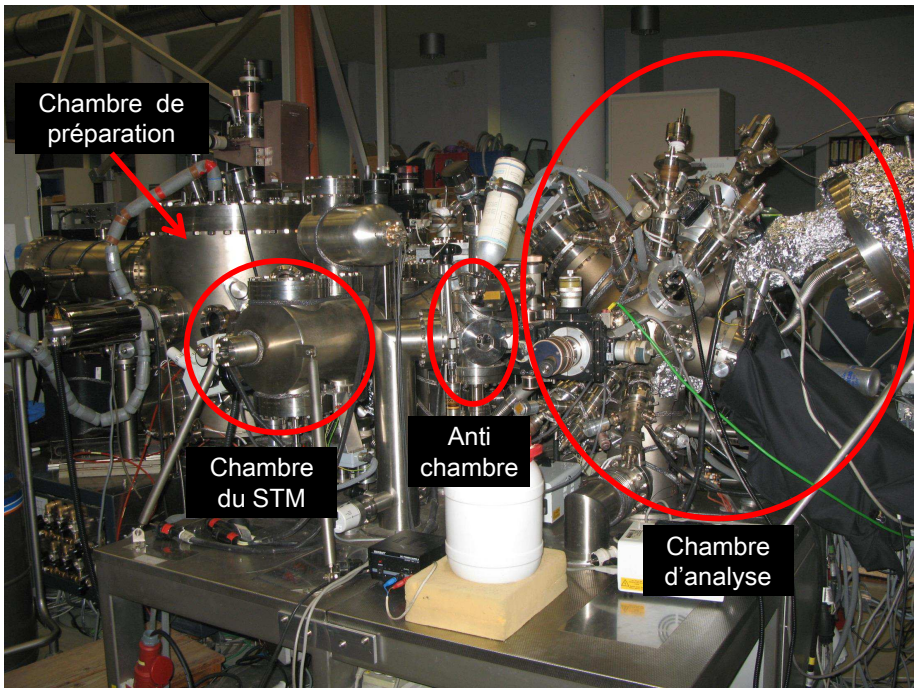


FIGURE 3.2 – Photographie du bâti, avec indication des différentes chambres

3.1.2 Calibration des sources

La première étape consiste à calibrer la ou les sources qui vont servir à la fabrication de l'échantillon. Prenons l'exemple d'une source de fer. On sait que le fer croît de manière cubique centré sur du Cu(111). C'est une croissance usuelle sur un substrat classique, qui va nous permettre de calculer la vitesse de dépôt du Fe sur ce type de substrat. Après avoir nettoyé la surface du substrat de cuivre (voir la section Préparation du substrat) dans la chambre d'analyse, on transfère celui-ci dans la chambre de préparation.

La source de Fe est chauffée à une température stable de 1307°C, et on ouvre le cache pour que les particules de Fe puissent aller se déposer sur le subsrtat. Le contrôle de la croissance s'effectue via un cliché de diffraction RHEED dont le nombre et l'espacement des tâches de diffraction permet de déterminer le type de croissance. Les variations d'intensité oscillante de ces pics ce diffraction (oscillation RHEED) permettent de compter le nombre de couches déposées et de déterminer la vitesse de dépôt qui est ici de 148s par monocouche.

3.1.3 Préparation du substrat

Pour assurer une bonne croissance, il faut un substrat parfaitement nettoyé, de composition chimique et de structure cristallographique connues. Pour cela on prépare le substrat dans la chambre d'analyse. On nettoie la surface en l'exposant à un gaz inerte d'argon grâce à un pistolet à ions. Le temps d'exposition et la température à laquelle on effectue ce procédé dépendent de la nature du substrat. Les ions d'argon viennent frapper la surface et arracher les atomes surfaciques, afin de ne laisser que les atomes du Cu. Une analyse chimique de la surface est effectuée par AES, et le spectre obtenu est comparé au spectre du Cu tabulé afin de vérifier qu'il ne reste que du Cu à la surface du substrat. On fait particulièrement attention à ce qu'il ne reste pas d'oxygène ou de carbone. Si l'analyse est bonne, on se retrouve alors avec un substrat propre, mais de grande rugosité due à la pulvérisation d'Ar^+. Or pour avoir une bonne épitaxie, il faut avoir une surface la plus plane possible, dans l'idéal un plan atomique parfait, et un recuit de l'échantillon est donc réalisé afin qu'il réorganise sa surface. A haute température, les atomes en surface sont très agités, et se repositionnent cristallographiquement lors de l'abaissement de la température, laissant ainsi une surface plane. On contrôle la structure cristallographique de la surface grâce au LEED, qui pour un substrat plat bcc, par exemple, doit nous donner un cliché de diffraction simple sans dédoublement des points (figure 3.3). Si le cliché est bon, on peut refaire une AES pour vérifier la composition chimique de la surface. Sinon, il faut recommencer les étapes. Lorsqu'on estime que les résultats d'analyse sont satisfaisants, le substrat est alors prêt pour la croissance d'une couche ultramince. Pour des substrats souvent utilisés, le protocole expérimental donnant les températures de recuit et les temps d'exposition est bien connu, mais dépend fortement du bâti utilisé. Pour de nouveaux substrats, le temps de préparation est bien plus long puiqu'il faut faire des tests essais-erreur.

Une fois que la surface du substrat correspond aux attentes en terme de structure et de pureté, il est transféré dans la chambre de préparation pour effectuer la croissance par PLD ou MBE.

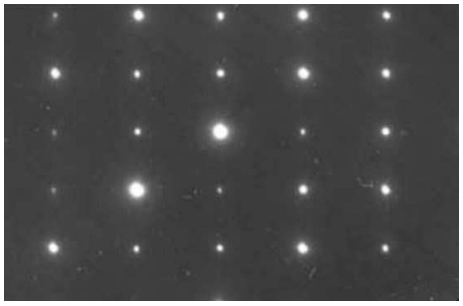


FIGURE 3.3 – Cliché de diffraction d'un cristal bcc (001) [1]

3.1.4 Fabrication de l'échantillon

Grâce à la chambre de préparation qui permet de faire de la PLD et de la MBE, et à la chambre d'oxydation, on peut fabriquer différents types d'échantillons. Des échantillons métalliques, des dépots d'oxydes, ou des multiferoïques en couche mince ou multi couches peuvent être fabriqués. En général on préferera la PLD pour les oxydes et les multiférroïques, et on n'aura pas besoin de la chambre d'oxydation pour les échantillons purement métalliques, ce qui est notre cas. Il existe plusieurs façons de créer un jet moléculaire. Dans notre cas, pour la MBE, une cible (cellule d'effusion, dite de Knudsen) est chauffée, en faisant passer un fort courant dans un fil résistif entourant cette cible. Lorsque la température d'évaporation du matériau (1307°C pour le Fe) est atteinte, un jet moléculaire se cré, et les atomes vont se déposer sur le substrat. Pour la PLD, un faisceau laser basse énergie de KrF de longueur d'onde 648nm est projeté sur une cible de fer pure à $99,99\%$ afin de créer un plasma.

Avant de commencer la croissance à proprement parler, il faut d'abord calculer le temps de dépôt qui va dépendre du nombre de monocouches que l'on veut déposer. Si on veut déposer plusieurs épaisseurs sur un même substrat, ou bien effectuer un coin (c'est-à-dire un film présentant une variation linéaire d'épaisseur), on peut utiliser un cache que l'on déplace manuellement (figure 3.4). Pour un coin il faut calculer le temps à attendre entre chaque déplacement du cache. Ce temps dépend du nombre de pas qu'on veut effectuer. Pour un échantillon avec différentes épaisseurs, on commence à déposer sur tout l'échantillon l'épaisseur la plus fine, puis on met un cache et on dépose le nombre de couches qu'il faut pour atteindre les épaisseurs plus grandes.

Le dépôt peut être contrôlé par une microbalance à Quartz (pas utilisé dans cette manip) ou bien par RHEED. Cependant si on fait un dépôt sur un substrat à marche, il est difficile d'avoir un cliché de diffraction RHEED exploitable, et on doit donc faire confiance à la calibration et au temps de dépôt calculé. Une fois le dépôt terminé, on peut vérifier la composition chimique et la structure cristallographique de la surface par AES, LEED, STM, et caractériser le magnétisme de l'échantillon par MOKE.

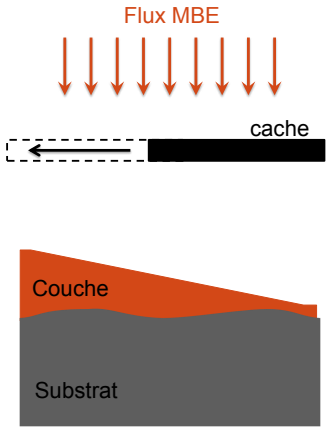


FIGURE 3.4 – Système permettant de déposer des échantillons coin en déplaçant un cache entre la source et l'échantillon.

3.1.5 Caractérisation magnétique in situ : MOKE

L'échantillon est transféré dans la chambre de caractérisation magnétique qui permet de faire des expériences de MOKE longitudinal et polaire, grâce à un laser orientable qui forme un angle de 21° avec la surface de l'échantillon dans la géométrie longitudinale et de 69° dans la géométrie polaire. Deux bobines extérieures permettent de contrôler le champ magnétique appliqué dans le plan jusqu'à 5.5kOe. La détection du faisceau réfléchi se fait par une photo-diode ainsi qu'un système optique permettant de mesurer le changement d'ellipticité (figure 3.5). Ce dispositif permet également de descendre jusqu'à une température de 5K et de tourner l'échantillon de manière azymuthale.

Cette expérience permet de tracer des cyles d'hystérésis pour différentes orientations du champ appliqué par rapport aux axes cristallographiques du cristal, et donc aux axes de facile et difficile aimantation. A partir de ces courbes on peut déduire 3 valeurs importantes : l'aimantation à saturation M_s, l'aimantation à rémanence M_r, et le champ cohercitif H_c (figure 3.6). Cette étude de la dépendance de l'aimantation moyenne au sein de l'échantillon peut être faite en fonction de la température et du nombre de couches déposées.

Après ces caractérisations in situ, on peut recouvrir l'échantillon d'une couche protectrice comme l'Au afin d'éviter la contamination de l'échantillon à l'air lorsqu'on sort l'échantillon du bâti pour faire d'autres analyses (synchrotron, neutron). L'influence de cette couche de protection sur le magnétisme de l'échantillon peut être controlée en effectuant de nouvelles mesures MOKE et en les comparant à celles faites auparavant, sans la couche protectrice [2].

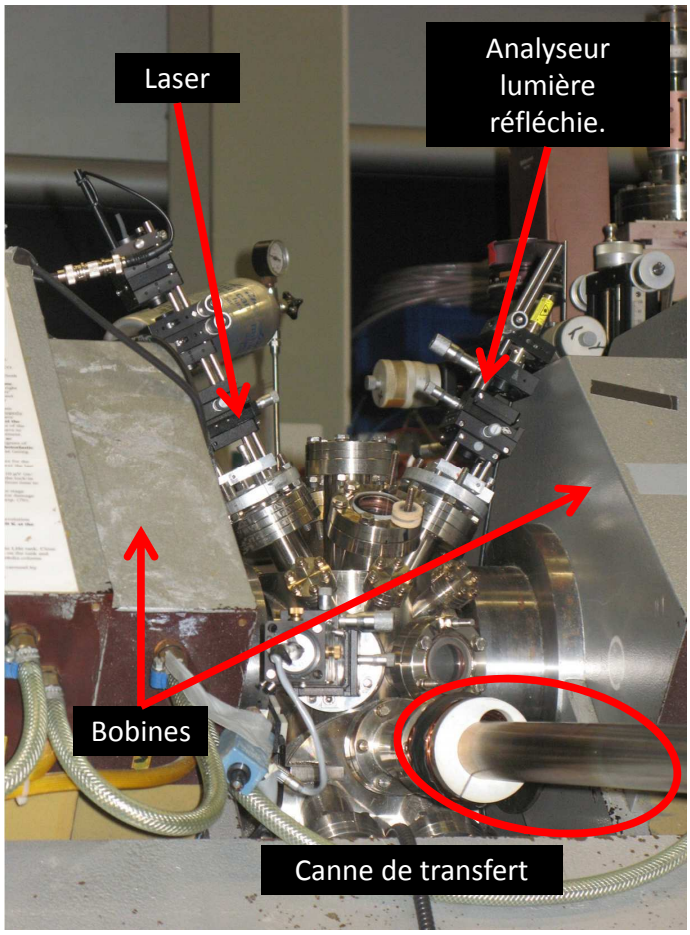


FIGURE 3.5 – Photographie de la chambre de MOKE

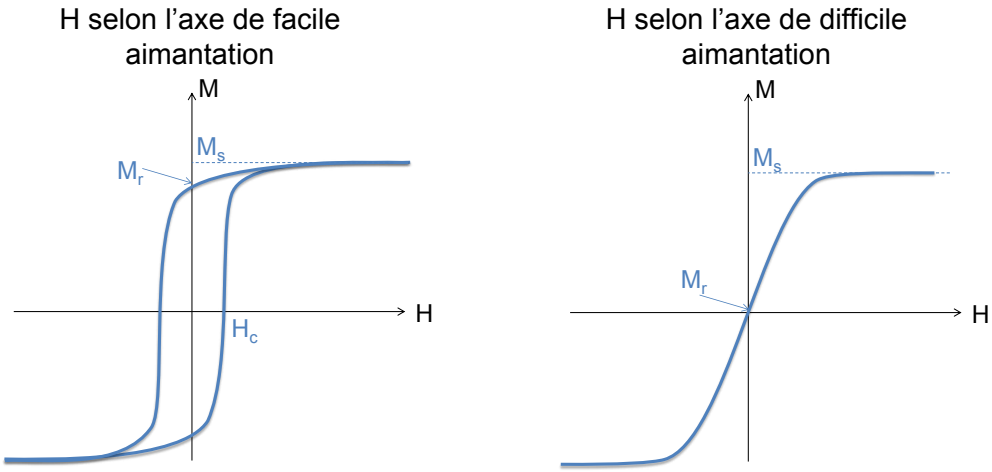


FIGURE 3.6 – Explication des différentes valeurs de la courbe d'hystéresis dans le cas où le champ est appliqué parallèlement à l'axe de facile aimantation (à gauche) ou parallèlement à l'axe de difficile aimantation (à droite)

3.2 Production des Rayons X, cas particulier du synchrotron

Il existe plusieurs manières de produire des rayons X : soit grâce à des tubes à rayons X, soit par rayonnement synchrotron. Les rayons X produits par des tubes (scellés ou à anode tournante) sont non polarisés, ont une énergie fixe avec une résolution spectrale fixe assez large et ne sont pas très intenses. Les rayons X produits par un rayonnement synchrotron de troisième génération ont une énergie et une polarisation ajustable ainsi qu'un rayonnement très intense, ce qui les rend très performant pour sonder la matière. La réflectivité magnétique résonante n'étant possible que pour des rayons X provenant d'un rayonnement synchrotron on ne développera que ce type de production des rayons X.

3.2.1 Production et propriétés du rayonnement synchrotron

Le rayonnement synchrotron a été découvert en 1947 par Elder *et al* dans un accélerateur de particules : "General Electric synchrotron" à Schenectady dans l'état de New York aux Etats Unis. Pour les physiciens des hautes énergies, c'est à dire en physique des particules, ce rayonnement est considéré comme parasite, mais sa très grande intensité et son accordabilité en ont fait une sonde extrêmement puissante pour les physiciens de la matière condensée. C'est à partir de 1970 que les premières sources synchrotrons ont été construites dans le seul but de produire un rayonnement synchrotron utilisable pour l'exploration de la matière.

La figure 3.7 illustre les différents éléments qui interviennent dant la production et l'utilisation du rayonnement synchrotron. Les électrons sont accélérés au sein d'un accélérateur linéaire (LINAC) puis pour les synchrotrons de 3ème génération comme SOLEIL et l'ESRF, les électrons sont introduits dans un accélérateur circulaire (booster). Ils sont ensuite insérés sous forme de paquets dans l'anneau de stockage. Ce dernier anneau est dit "de stockage" car le nombre et la vitesse des paquets au sein de cet anneau doivent être gardés constants pour garantir la production des faisceaux de rayons X intenses et stables. Dans cet anneau, les paquets d'électrons parcourent des sections droites et sont déviés d'une section à l'autre par des aimants de courbures. Cette déviation d'électrons relativistes (ayant une vitesse proche de celle de la lumière) émet un rayonnement électromagnétique intense dans un cône étroit tangentiellement à l'anneau. Ce rayonnement est appelé rayonnement synchrotron et a une énergie qui dépend de la vitesse des électrons et de la valeur du champ magnétique de l'aimant de courbure. Cette énergie étant comprise entre 0.1 et 15keV, ce sont des rayons X qui sont produits, mais par abus de langage on parle de lumière synchrotron. Les rayons X créés tangentiellement à l'anneau sont ensuite guidés, conditionnés, et utilisés pour plusieurs types d'expériences dans ce qu'on appelle les lignes de lumières.

Pour "avoir du faisceau" sur son expérience sur de longues périodes, le nombre et l'énergie des paquets électrons dans l'anneau de stockage doivent rester constants. Pour cela il faut injecter de manière régulière de nouveaux électrons (il existe plusieurs modes d'injection selon les synchrotrons), et compenser la dispersion des électrons dues aux aimants de courbures par des quadrupoles et des sextupoles

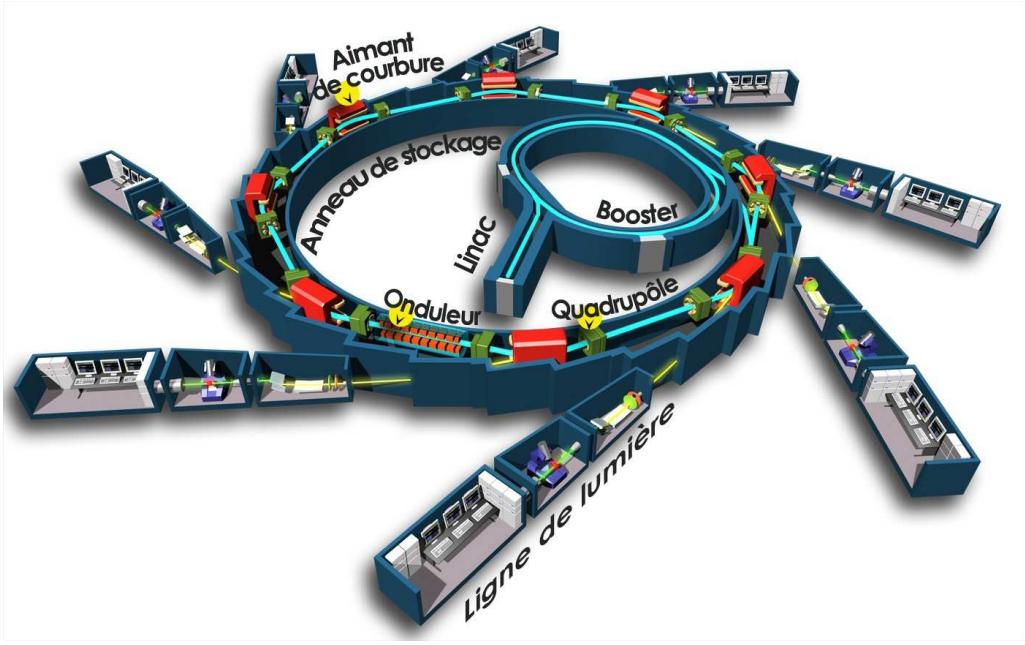


FIGURE 3.7 – Vue d'ensemble schématique d'une source de rayonnement synchrotron. Image provenant du site internet de SOLEIL.

magnétiques qui sont interposés entre chaque aimant de courbure.

Afin d'augmenter l'intensité du faisceau synchrotron, sa résolution en énergie, et le contrôle de sa polarisation, on utilise des éléments d'insertions tel que les onduleurs. Ces éléments sont des structures magnétiques périodiques dans lesquelles les électrons ont une trajectoire oscillante forcée dans le plan (figure 3.8). Les émissions d'un rayonnement à chaque changement de direction se superposent de manière cohérente, ce qui donne un très grand flux de photons. Le spectre en énergie des onduleurs donne des pics quasiment monochromatiques (figure 3.8). L'espacement et la position l'une par rapport à l'autre des deux séries d'aimants permet de moduler l'énergie de ces pics ainsi que de polariser les rayons X produits [3]. Grâce aux onduleurs il est alors possible de passer d'une polarisation à l'autre : π,σ, C^+, et C^-. Ces éléments d'insertions sont placés entre deux aimants de courbures (figure 3.7).

Pour étudier les propriétés magnétiques, nous avons vu dans le premier chapitre que la polarisation des rayons X était essentielle. Les lignes de lumières permettant d'étudier les propriétés magnétiques d'un matériau utilisent donc des onduleurs comme source de rayons X .

3.2.2 SEXTANTS : une ligne de lumière de rayons X mous

Toutes les lignes de lumières sont différentes l'une de l'autre car elles sont dédiées à des expériences différentes, mais elles font toutes appel à des éléments qui ont pour fonction de conditionner et orienter le faisceau sur les dispositifs expérimentaux. Afin de diriger le faisceau synchrotron sur les expériences de la ligne, et de le définir en taille et énergie, la première partie de la ligne est composée de différentes en-

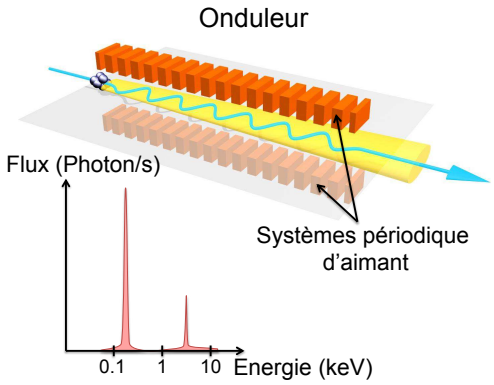


FIGURE 3.8 – Schéma d'un onduleur, avec son spectre énergétique.

ceintes sous vide accueillant des éléments d'optiques. Ces "optiques" sont principalement constituées de miroirs plan ou courbe, et de monochromateurs. Des systèmes de caches ou occulteurs ainsi que des fentes complètent l'ensemble de conditionement du faisceau. Le but de ces derniers est d'éliminer des diffusions parasites et de définir la taille du faisceau ainsi que sa résolution en énergie selon la position des fentes. Le rayonnement synchrotron issu d'un onduleur étant très intense, ces éléments d'optiques nécessitent d'être refroidis par une circulation d'eau pour garder une température constante afin d'assurer une meilleure stabilité du faisceau. Selon l'énergie des rayons X, durs ou mous, l'expérience se fait à l'air libre, dans une cabane de plomb ou bien dans une enceinte ultravide (respectivement), ce qui est le cas sur la ligne de lumière SEXTANTS.

SEXTANTS est une ligne de rayons X mous qui accueille le dispositif expérimental de l'Institut Néel, appelé RESOXS pour REsonant SOft X-ray Scattering dédié à des expériences de diffusion de rayons X mous. Pour l'expérience RESOXS on utilise un onduleur permettant de travailler dans une gamme d'énergie comprise entre 50 et 1700eV avec une lumière polarisée linéairement ou circulairement de haute qualité [4]. Le monochromateur à l'entrée de la ligne est composé de 5 réseaux (G1-5) que l'on peut déplacer pour sélectionner le réseau approprié en fonction de la gamme d'énergie, de la résolution et du flux désirés. Le choix de la longueur d'onde est réalisé ensuite par rotation du réseau. Avant RESOXS le faisceau est refocalisé par des miroirs courbes qui sont dans une configuration Kirkpatrick-Baez appelé plus communément KB. En général, les caractéristiques du faisceau utilisées sont :

- Flux supérieur à 5.10^{12} photons par seconde sur l'échantillon
- Résolution $\frac{\Delta E}{E} \geq 10000$
- Polarisation linéaire ou circulaire proche de 100%
- Taille du faisceau sur l'échantillon $\approx 200\mu m^2$

3.3 Dispositifs de SXRMR

Il existe plusieurs dispositifs expérimentaux permettant d'effectuer des expériences de réflectivité magnétique résonnante de rayons X mous (SXRMR) dans différents centres de rayonnements synchrotrons. Durant cette thèse nous avons principalement

utilisé l'appareil de la ligne SEXTANTS à SOLEIL, mais aussi l'appareil de la ligne SIM au synchrotron suisse "Swiss Light Source" (SLS) de l'institut Paul Scherrer (PSI), ainsi que celui de la ligne ID08 du synchrotron européen ESRF. Chaque appareil à ses spécificités avec ses avantages et ses inconvénients. Idéalement, pour pouvoir étudier le plus grand nombre de phénomènes, ces appareils doivent pouvoir couvrir un large domaine en température, ainsi qu'en amplitude et orientation du champ magnétique[5], tout en maintenant un très bon vide puisqu'on utilise des rayons X mous. Il est difficile de faire un inventaire des expériences existantes car on peut adapter des goniomètres quatre cercles pour effectuer des mesures de réflectivité. Dans cette partie on décrira donc quelles sont les caractéristiques nécessaires pour effectuer de la réflectivité magnétique résonante de rayons X mous, et on donnera les particularités des trois réflectomètres utilisés. Les caractéristiques du réflectomètre RESOXS de la ligne SEXTANTS seront exposées plus en détail dans une section à part entière.

3.3.1 Caractéristiques générales

Les expériences de réflectivité spéculaire sont réalisées en dirigeant le faisceau incident avec un certain angle sur la surface de l'échantillon et en mesurant l'intensité du faisceau réfléchi avec la même valeur d'angle (figure 3.9). La direction du faisceau étant fixe, c'est l'échantillon et le détecteur qui sont installés sur des platines de rotation coaxiales. Un spectre de réflectivité correspond à l'acquisition de l'intensité sur une grande gamme angulaire. Dans le cas de la réflectivité magnétique résonante, cette collecte d'intensité se fait pour une énergie et une polarisation données avec la possibilité d'appliquer un champ magnétique. L'énergie et la polarisation peuvent être controlées grâce aux onduleurs, et à l'optique de la ligne. Afin que le faisceau arrive au centre de l'échantillon qui est lui-même sur l'axe de rotation du goniomètre, il faut pouvoir aligner les différents axes ainsi que l'échantillon. L'annexe B donne l'exemple d'une procédure qu'on peut suivre pour aligner le diffractomètre et l'échantillon lors de mesures de réflectivité.

Les paramètres que doit prendre en compte une expérience SXRMR sont donc : la rotation et la translation de l'échantillon dans plusieurs directions, l'application d'un champ magnétique, le contrôle de la température, et la manière dont les rayons X réfléchis sont détectés.

Ultra vide. L'environnement ultra vide est nécessaire pour deux raisons. La première raison vient du fait que les rayons X mous sont absorbés par l'air, et qu'il faut un vide de l'ordre de $10^{-6} mbar$ pour réduire l'effet de ce phénomène sur l'intensité des rayons X. La deuxième est la contamination des échantillons à basse température. En effet lors de la descente en température l'échantillon agit comme l'élément froid d'une pompe cryogénique et piège des molécules (eau, carbone) à sa surface. Cette contamination peut produire une couche continue d'éléments légers qui peut engendrer des oscillations supplémentaires dans la réflectivité. Pour limiter ce phénomène lorsqu'on travaille à des temératures inférieures à 50K, il faut avoir un vide plus poussé de l'ordre de $10^{-8/9} mbar$. Cette contrainte de vide poussé est d'autant plus difficile à réaliser que pour pouvoir effectuer les rotations, translations et appliquer

un champ, l'enceinte ultra-vide est assez grande. De plus cette enceinte possède de nombreuses surfaces difficiles à dégazer lors de l'étuvage qui se fait à des températures inférieures à 100K pour éviter d'endomager les détecteurs.

Diffractomètre. Pour effectuer des mesures de réflectivité, il faut une rotation de l'échantillon sur lui même (par rapport à l'axe perpendiculaire au plan de diffraction) et une rotation du détecteur par rapport à l'échantillon, nommée respectivement θ et 2θ. Cependant pour effectuer des mesures hors-spéculaire ainsi que pour faciliter l'aligment de l'échantillon sur le faisceau, il est important que les moteurs θ et 2θ soient découplés, que l'échantillon puisse tourner autour de l'axe z (angle χ) et que le détecteur puisse sortir du plan de diffraction par une rotation δ autour de l'axe x (figure 3.9). Enfin, pour aligner des directions cristallographiques par rapport au plan de diffraction il peut être nécessaire de contrôler la rotation azimuthale (angle ϕ). Les différentes rotations sont montrées sur la figure 3.9, et permettent d'effectuer au delà des simples mesures de réflectivité spéculaire, des mesures de diffraction spéculaire et hors spéculaire.

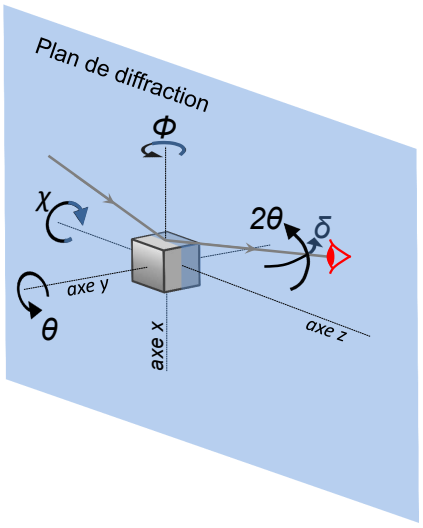


FIGURE 3.9 – Définition des différents angles de rotation.

Champ magnétique. Pour effectuer des mesures de réflectivité magnétique résonante, il faut être capable d'orienter l'aimantation de l'échantillon par un champ magnétique extérieur en fonction de la polarisation des photons. Idéalement, il faudrait pouvoir appliquer un champ dans les trois directions transverses, longitudinales et polaires (i.e. hors du plan). Cependant la contrainte de l'ultra-vide et la nécessité pour la mesure d'accéder au plus grand domaine angulaire possible rendent difficile la mise en place d'un tel système. Selon les expériences, le champ magnétique est appliqué avec un aimant permanent permettant d'effectuer des mesures à rémanence (H=0), ou bien créé grâce à des bobines permettant de faire des mesures sous champ appliqué (jusqu'à 0.2T).

Température. L'étude des propriétés magnétiques dépend fortement de la température. De plus, les nombreuses théories permettant d'expliquer les comportements magnétiques ont été développées pour des températures nulles, pour comprendre l'état fondamental. Il est donc souvent nécessaire de pouvoir descendre à basse température et de pouvoir contrôler la température pour se placer dans différentes phases magnétiques et observer des propriétés magnétiques inexistantes à température ambiante.

Détection. Enfin, le dernier point important des expériences utilisant les rayons X est la détection de ceux-ci. Il existe plusieurs types de détecteurs selon les expériences réalisées, et la dynamique de comptage nécessaire. Typiquement dans une mesure de reflectivité sur SEXTANTS, l'intensité peut varier sur 7 ou 8 ordres de grandeur. Pour les expériences de diffusion, les détecteurs les plus souvent utilisés sont des photodiodes (0D), des "barreau" de photodiodes (1D), ou des caméras CCD (2D) [1]. A ces détecteurs est associée toute une chaine de détection qui consiste à transmettre correctement le signal à un dispositif électronique final permettant de compter soit des photons sur le détecteur, soit un courant généré par les photons. Il est très important que la chaîne de détection soit capable de mesurer 7 à 8 ordres de grandeur de variation tout en restant linéaire. La gestion de différentes gammes de mesures dans l'électronique est un aspect important de la qualité de la détection. Enfin, un analyseur de polarisation [8] avant la photodiode peut être utilisé mais affaiblit l'intensité d'un ou deux ordres de grandeurs, rendant plus difficile les mesures à très grands angles où l'intensité est déjà très faible.

Durant ce travail de thèse, trois appareils de réflectivité ont été utilisés. Un appareil se situant à la SLS sur la ligne de lumière SIM sous la responsabilité de Urs Staub [8], un appareil sur la ligne ID08 de l'ESRF, avec l'aide de Flora Yakhou, et l'appareil RESOXS de la ligne SEXTANTS à SOLEIL [9]. Le tableau 3.1 regroupe les caractéristiques de ces trois appareils, tandis que la partie suivante sera dédiée à un descriptif plus complet de RESOXS, ainsi qu'aux développements instrumentaux auxquels j'ai participé durant la thèse.

3.3.2 RESOXS

Un des tout premiers appareils dédié pour la diffusion de rayons X mous est apparu en 1988 [10]. Depuis, le développement de ces appareils et l'amélioration de leurs capacités : domaine angulaire, géométrie d'acquisition, environnement échantillon (température, champ magnétique, courant appliqué...) etc, n'ont cessé d'augmenter. L'appareil dévelopé par Nicolas Jaouen et Jean-Marc Tonnerre RESOXS [9], a tout d'abord été utilisé au LURE, puis en Suisse à SLS sur la ligne SIM qui développa ensuite son propre appareil [8], et enfin à SOLEIL sur la ligne SEXTANTS. Depuis son transfert à SOLEIL en 2010, de nombreuses améliorations par rapport au dispositif initial ont été réalisées.

Cet appareil est constitué d'une enceinte et d'un support. L'enceinte ultra-vide est toujours la même et se compose d'une cuve de 210L et d'une bride de 90cm

1. Pour plus de renseignements sur les différents types de détecteurs on peut se réferrer à [6, 7].

	SLS, SIM	**ESRF, ID08**	**SOLEIL, SEXTANTS : RESOXS**
Amplitude angulaire scan $\theta/2\theta$ (θ (°))	0-80	0-80	0-85
valeur moyenne du vide ($mbar$)	10^{-9}	10^{-9}	10^{-8}
Gamme de température (K)	10-300	5-300	10-300
Champ magnétique extérieur	aimant permanent, rémanence	2 bobines donc une seule direction dans le plan de l'échantillon, 0.1T	quatre bobines, aimantation dans le plan de l'échantillon 0.2T ou a rémanence grâce à un aimant permanent pour une aimantation polaire.
Détection	photodiode ou analyseur de polarisation avec CCD	Photodiode, et chaine de détection sans auto-range	photodiode ou CCD
caractéristiques supplémentaires	angle ϕ et χ ($\pm 10°$)		possibilité de faire passer ou lire un courant, angle ϕ et χ (-10°, +2°)

TABLE 3.1 – Comparaison des différentes caractéristiques des trois réflectomètres utilisés pendant la thèse.

de diamètre pour la fermer. Le support de l'enceinte a été modifié pendant cette thèse pour faciliter l'alignement sur des microfaisceaux. La figure 3.10 montre les différentes parties de l'expérience.

Cuve inférieure

La cuve permet une rotation des éléments de détection grâce à une couronne entrainée par un cercle à pompage différentiel ayant des connections air/vide. Deux brides de 160 mm sont utilisées pour l'entrée du faisceau et la visualisation de celui-ci dans la bride diamétralement opposée. Une troisième bride est utilisée pour connecter la chambre à une petite chambre de changement d'échantillon appelée antichambre. Une quatrième bride sert depuis peu à la manipulation d'un "wobble-stick" : tournevis sous ultravide permettant de manipuler des objets accrochés à la couronne. Les autres brides servent à la visualisation de ce qui se passe au sein de la gamelle

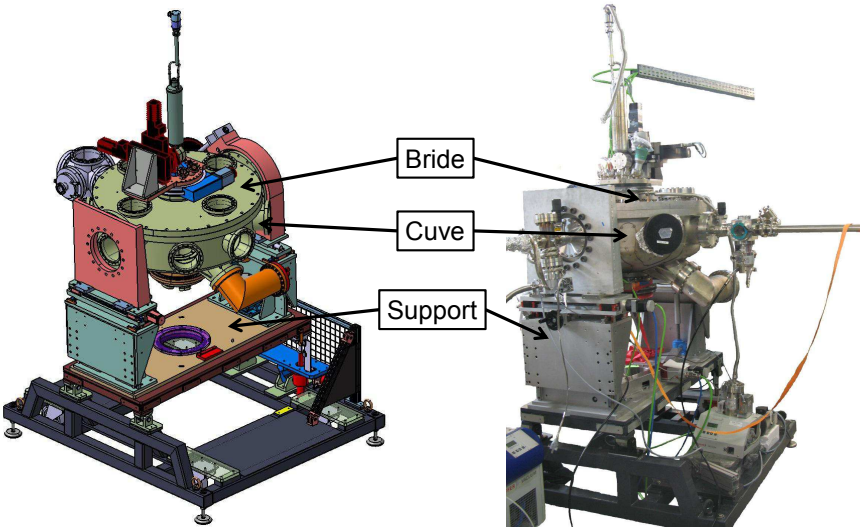


FIGURE 3.10 – Vue d'ensemble de RESOXS : schéma à gauche et photographie à droite

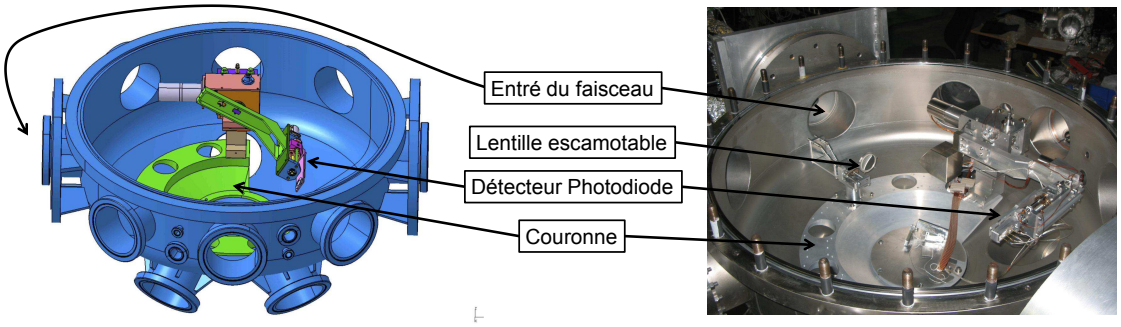


FIGURE 3.11 – Vue d'ensemble de la cuve de RESOXS : schéma à gauche et photographie à droite

lorsque la cuve est fermée. La figure 3.11 montre une vue d'ensemble de la cuve avec les différents éléments dont je viens de parler.

Le principal avantage de cette cuve est le fait que la couronne puisse supporter plusieurs éléments de détection, pouvant tourner de -180° à +180°. Pour les mesures de XRMR, nous avons utilisé une photodiode qui a été positionnée durant ma thèse sur un bras permettant une rotation δ de ce détecteur en dehors du plan de diffusion (plan horizontal, figure 3.11 et 3.12). Cette photodiode se trouve sur un support pouvant contenir trois photodiodes devant lesquelles se trouvent des fentes fixes et des fentes mobiles, ce qui permet de changer de fentes sans avoir à "casser" le vide. Cette rotation δ supplémentaire ainsi que l'utilisation de fentes horizontales permet d'effectuer des scans verticaux pour l'alignement de l'échantillon et pour sonder l'espace réciproque dans une géométrie hors spéculaire (GISAS : Grazing Incident Small Angle Scattering).

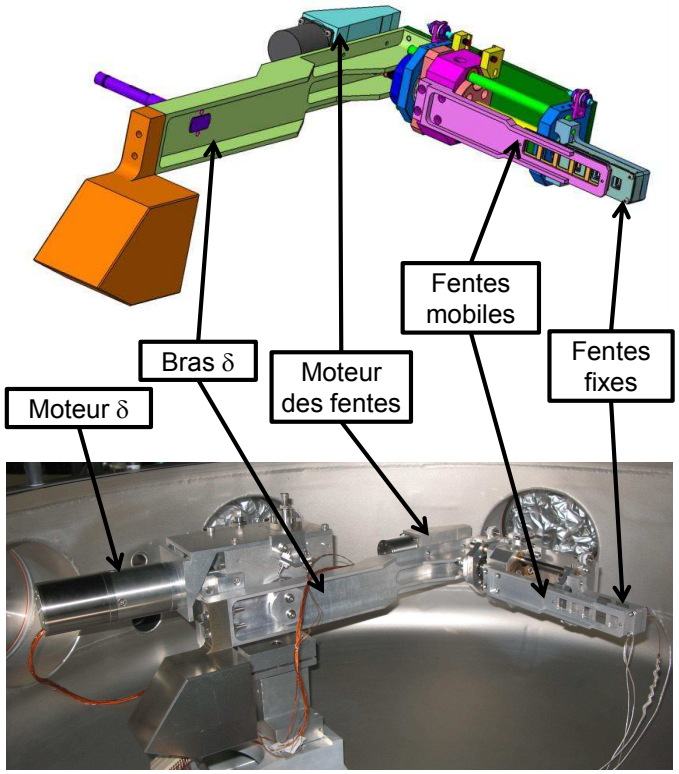


FIGURE 3.12 – Vue du système de détection par photodiode : schéma en haut et photographie en bas

Récemment l'ajout d'une caméra CCD sur cette bride a été effectué et permet d'effectuer des mesures sur des structures organisées. Enfin, afin de visionner le faisceau à l'aide d'une caméra pour affiner les réglages de focalisation de celui-ci, une lentille escamotable par le "woble-stick" a été positionée sur la couronne (figure 3.11).

Bride supérieure

La bride supérieure supporte tout le bloc échantillon qui se compose du cryostat, du doigt froid, et du porte échantillon ; ainsi que le bloc d'aimantation (figure 3.13). Ce couvercle est constitué d'une grande ouverture de 250 mm de diamètre, qui assure la transimission entre la partie échantillon, et les moteurs de translations et de rotations grâce à un soufflet et un cercle à pompage différentiel qui permettent la rotation de l'angle θ de $\pm 180^{\circ}$.

Le bloc échantillon, figure 3.14 est constitué du cryostat, qui se termine en doigt froid et sur lequel vient s'adapter un système permettant le contrôle de la température, la rotation de l'échantillon sur lui même (angle ϕ), ainsi que la connection de contacts électriques pour relever ou faire passer un courant dans l'échantillon. C'est ce système qui assure le joint entre la partie cryostat et vide, ce qui rend difficile le remplacement de cette pièce contenant deux circuits importants permettant le

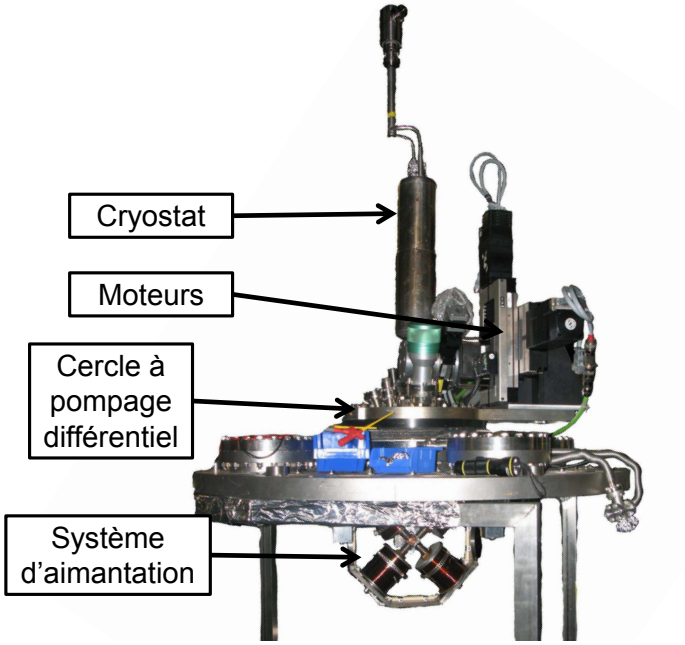


FIGURE 3.13 – Vue d'ensemble de la bride supérieure

contrôle de la température et du courant électrique qu'on veut appliquer ou relever sur l'échantillon. Sur ce doigt froid amélioré, vient se fixer le porte échantillon qui a des pinoches permettant la connection entre le doigt froid et les contacts effectués sur l'échantillon. La connection de contacts électriques ainsi que la rotation ϕ sont des améliorations qui ont été effectuées entre 2008 et 2010.

Le bloc échantillon est maintenu par une attache qui se situe en dehors de la gamelle, et qui est connecté aux moteurs permettant la rotation χ, la translation verticale ty, la translation horizontale le long du faisceau tz et la translation horizontale perpendiculairement au faisceau tx. Ces moteurs sont montés sur le cercle à pompage différentiel ce qui permet de faire tourner tout l'ensemble et donc l'échantillon d'un angle θ (figure 3.15).

En dessous de cette bride, le système d'aimantation vient se fixer sur le cercle à pompage différentiel, permettant de le maintenir dans le référentiel échantillon (figure 3.16). Ce système d'aimantation est composé de quatre bobines qui sont combinées deux à deux et alimentées comme montré sur la figure 3.16 ce qui permet d'appliquer un champ magnétique dans n'importe quelle direction dans le plan de l'échantillon selon l'intensité qu'on fait passer dans chaque circuit. Le système d'aimantation peut-être relevé pour insérer l'échantillon et effectuer des mesures non magnétiques. Un nouveau système d'aimantation est à l'étude pour pouvoir appliquer un champ magnétique dans les trois directions de l'espace.

Support de la gamelle

La gamelle est maintenue par un support permettant d'aligner celle-ci par rapport au faisceau. Ce support a été fabriqué par SOLEIL et permet de bouger la gamelle

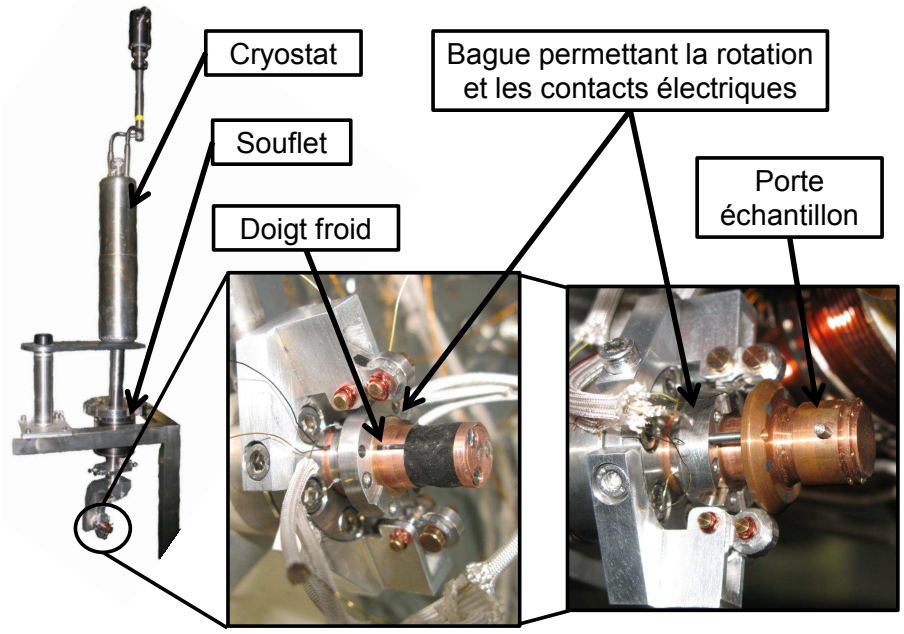


FIGURE 3.14 – Vue du bloc échantillon, du doigt froid, de l'encapsulage de ce doigt froid et du porte échantillon

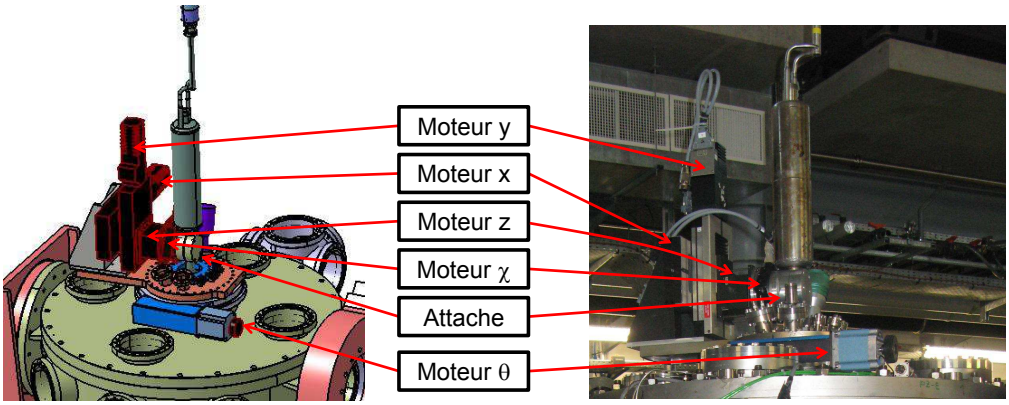


FIGURE 3.15 – Vue des différents moteurs et de l'attache permettant de bouger et de tenir le bloc échantillon.

de manière motorisée dans la direction perpendiculaire au faisceau dans le plan de diffusion Tx, et pour la rotation Rx afin d'orienter la gamelle de 2° par rapport à l'horizontal puisque le faisceau a un angle de 2° par rapport à l'horizontal "terrestre". Cette angle de 2° implique que les axes y et z ont tourné de 2° et sont devenus les axes s et n respectivement. En plus de ces mouvements motorisés on peut manuellement faire monter ou descendre la gamelle via la translation Tz, puis Tn, la faire tourner de quelques degrés par rapport à n, c'est la rotation Rn, et enfin la faire tourner par rapport au faisceau grâce à la rotation Rs. Ces rotations et translations sont données dans la figure 3.17.

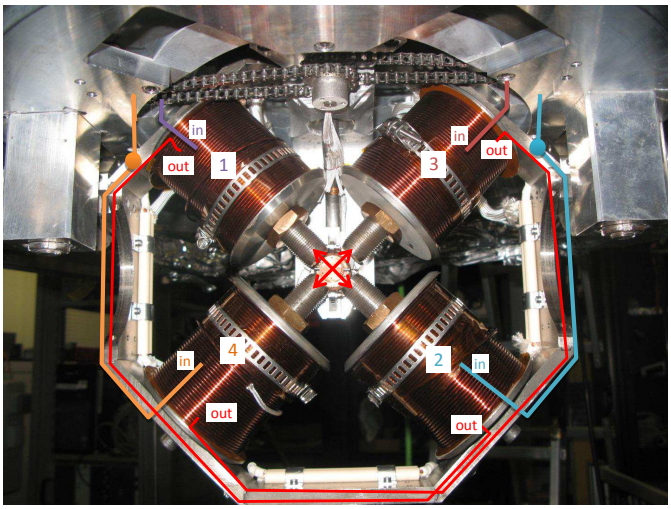


FIGURE 3.16 – Système d'aimantation

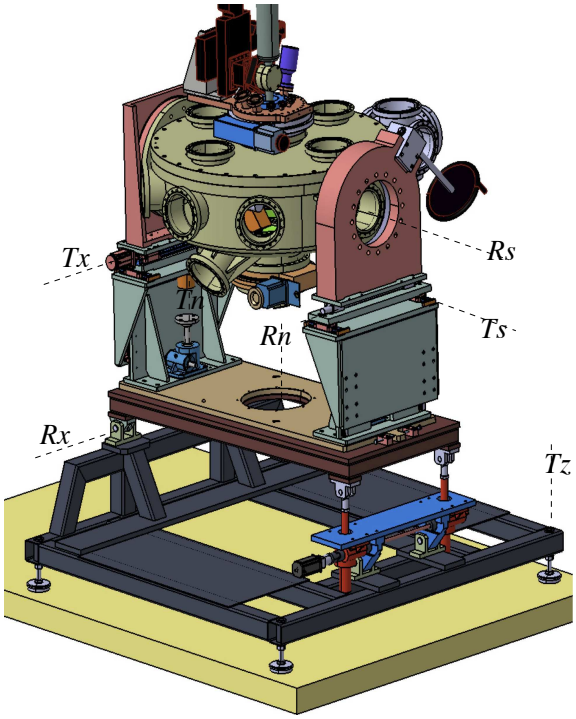


FIGURE 3.17 – Vue du support dans le repère x,y,z, et x,s,n avec tous les déplacements possible

3.3.3 Configurations Expérimentales

Lors d'une expérience de SXRMR, la polarisation du faisceau réfléchi est modifiée par rapport à celle du faisceau incident du fait de l'interaction magnéto-optique. Ce changement d'état de polarisation dû à la configuration magnétique de l'échantiillon induit une variation de l'intensité qui s'ajoute ou se soustrait au signal de réflectivité

lié à la variation de densité atomique au sein du matériau. La différence entre deux signaux de réflectivité obtenus en angle ou en énergie est réalisée en inversant le champ appliqué ou la polarisation dans le cas d'un faisceau polarisé circulairement. Comme la ligne SEXTANTS et le réflectomètre RESOXS permettent de choisir respectivement plusieurs polarisations et orientations de champ magnétique appliqué, plusieurs configurations d'acquisitions sont possibles. Dans ce paragraphe nous introduirons les différentes configurations possibles et les nommerons pour plus de clarté dans la suite du manuscrit.

Polarisation linéaire Il n'y a qu'une manière de mesurer des asymétries magnétiques en polarisation linéaire : on peut seulement inverser le champ magnétique appliqué. De manière générale on appellera la configuration utilisant la polarisation π, Π ;et celle utilisant la polarisation σ, Σ. Sur RESOXS, on peut appliquer le champ magnétique longitudinalement ou transversalement et faire des mesures sous champ appliqué ou à rémanence. Pour un champ magnétique extérieur hors du plan, on peut seulement travailler à rémanence. Le tableau 3.2 résume l'appellation des différentes configurations si on prend en compte la polarisation du faisceau, la direction du champ appliqué, et son amplitude.

	Sous champ appliqué		A rémanence	
	Π	Σ	Π	Σ
H_{lon}	Πlon	Σlon	$\Pi lonrem$	$\Sigma lonrem$
H_{tran}	$\Pi tran$	$\Sigma tran$	$\Pi tranrem$	$\Sigma tranrem$
H_{pol}	impossible	impossible	$\Pi polrem$	$\Sigma polrem$

Table 3.2 – Tableau récapitulatif des différentes appellations utilisées pour des configurations expérimentales utilisant une polarisation linéaire

En terme de schéma on modélisera, par exemple, les configurations $\Pi tran$ et $\Pi tranrem$ comme sur la figure 3.18

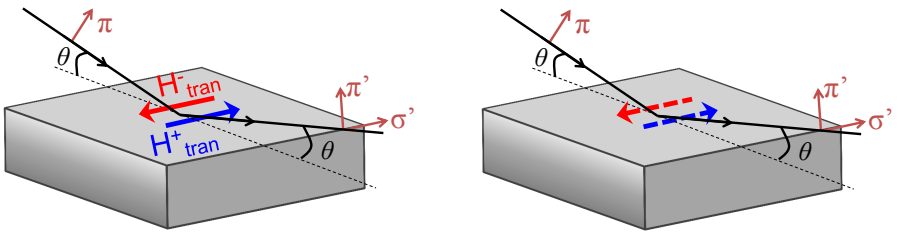


Figure 3.18 – Configurations $\Pi tran$ à gauche et $\Pi tranrem$ à droite.

Polarisation circulaire En polarisation circulaire, on peut soit inverser le champ magnétique appliqué, la configuration sera appelée Hpm (pour plus/moins) quel que soit le sens de rotation de la polarisation circulaire, soit renverser la polarisation,

c'est à dire l'hélicité du faisceau (le signe de la polarisation circulaire plus ou moins), et la configuration est nommée *Cpm*. De plus, le champ peut être appliqué longitudinalement ou transversalement et aussi hors du plan à rémanence. Les différentes configurations possibles seront appelées :

	Sous champ appliqué		A rémanence	
	Cpm	*Hpm*	*Cpm*	*Hpm*
H_{lon}	*Cpmlon*	*Hpmlon*	*Cpmlonrem*	*Hpmlonrem*
H_{tran}	*Cpmtran*	*Hpmtran*	*Cpmtranrem*	*Hpmtranrem*
H_{pol}	impossible	impossible	*Cpmpolrem*	*Hpmpolrem*

TABLE 3.3 – Tableau récapitulatif des différentes appellations utilisées pour des configurations expérimentales utilisant une polarisation circulaire, en renversant l'hélicité : *Cpm* ou le champ appliqué : *Hpm*

En terme de schéma on modélisera les configurations *Cpmlon* et *Hpmlon*, par exemple, comme sur la figure 3.19

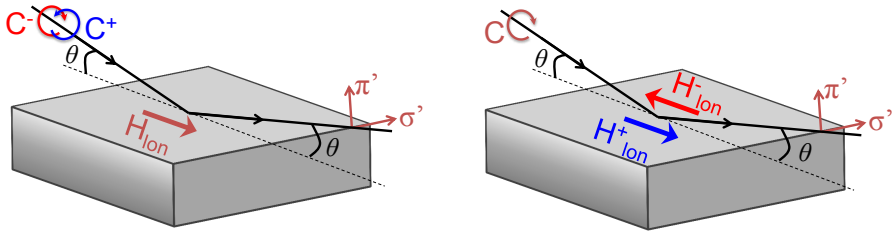


FIGURE 3.19 – Configurations *Cpmlon* à gauche et *Hpmlon* à droite.

Maintenant que nous avons décrit les caractéristiques d'une expérience de SXRMR, nous allons développer la méthodologie de l'analyse. En particulier, nous montrerons la sensibilité des différentes géométries d'acquisition aux différentes composantes de l'aimantation et comment on peut déterminer un profil d'aimantation en profondeur, l'amplitude de l'aimantation à chaque position z considérée correspondant à une aimantation intégrée latéralement.

3.4 Analyse

Nous avons expliqué dans le premier chapitre que deux approches théoriques permettent d'analyser les résultats : une théorie cinématique qui conduit à une expression analytique de l'asymérie magnétique, et une théorie dynamique qui demande un développement matriciel important. La première permet de visualiser comment les différents termes géométriques et d'amplitudes interviennent, c'est une analyse qualitative. La deuxième permet d'ajuster les courbes expérimentales à un modèle théorique via le programme DYNA, c'est l'analyse quantitative.

Pour ces deux théories, le point de départ est le facteur de diffusion atomique résonant qui dépend de l'angle θ et des facteurs f_0, F', F'', M', et M''. Ces facteurs dépendent de l'énergie et sont donc différents pour chaque scans $\theta/2\theta$ effectués à des énergies différentes. Ils sont connus loin et au voisinage des seuils grâce à la mise à l'échelle en unité d'électrons des mesures d'absorptions et de XMCD en utilisant les tables théoriques de Chantler. On connait donc θ, f_0 [2], F', F'', M', et M'' et on peut en déduire l'intensité réfléchie en fonction de la norme et de la direction de l'aimantation au sein de l'échantillon.

3.4.1 Analyse qualitative

Cette analyse est fondée sur la théorie cinématique développée au chapitre 1 et permet de dire à partir de la forme des asymétries magnétiques si l'échantillon présente une aimantation nette et quelles sont les composantes de l'aimantation : longitudinale, transverse, ou polaire (O.P). En effet, d'après l'équation 1.35 dérivée au premier chapitre, l'intensité réfléchie peut être exprimée en fonction de la polarisation du faisceau incident, de θ et des trois composantes de l'aimantation : m_{tran}, m_{lon}, et m_{pol}. Cette intensité réfléchie I_δ^ϵ dépend également de δ et ϵ qui sont égaux à ± 1 et modélisent le renversement de l'hélicité ou du champ magnétique respectivement. La sensibilité au magnétisme est observable via la séparation des courbes de réflectivité qu'on exhalte par le rapport d'asymétrie. Selon chaque configuration Σ, Π, Hpm et Cpm les asymétries magnétiques ne vont pas être les mêmes et sont données ci-dessous. Les calculs sont effectués dans l'annexe A.5.3, et nous ne donnons ici que les résultats finaux pour chaque configuration expérimentale.

- **configuration Σ**
  On a $e_\sigma = 1$, $e_\pi = 0$, $\epsilon = \pm 1$, et $\delta = 1$ ce qui donne une asymétrie nulle même si l'aimantation existe :
  $$A^\Sigma = 0 \tag{3.1}$$
  Cette configuration ne sert donc pas à sonder le magnétisme de l'échantillon, mais peut être utilisée pour déterminer la structure, puisque l'intensité est uniquement fonction de $F_{c,r}$. Toutefois, une contribution magnétique faible peut être observée car la polarisation du faisceau n'est précisément σ qu'à l'extérieur du matériau magnétique. Au sein du matériau, la polarisation du faisceau incident est modifiée à chaque réflexion/transmission du faisceau aux interfaces.
- **configuration Π**
  On a $e_\sigma = 0$, $e_\pi = 1$, $\epsilon = \pm 1$, et $\delta = 1$ ce qui donne une asymétrie :
  $$A^\Pi \propto \frac{m_{tran} \sin(4\theta) \left[F''M' - F'M''\right]}{\cos^2(2\theta) \left|F_c\right|^2} \tag{3.2}$$
  Cette configuration permet d'être sensible uniquement à la composante transverse de l'aimantation. Cela signifie que si expérimentalement l'asymétrie obtenue en polarisation π est non nulle alors il y a une composante d'aimantation transverse. Si le signal est nul, cela ne signifie pas qu'il n'y a pas d'aimantation,

2. avec $f_0 \approx Z$ le nombre d'électrons par atomes.

mais que celle-ci est en première approximation uniquement dans le plan de diffraction.

- **configuration** Hpm
  On a $e_\sigma = 1$, $e_\pi = 1$, $\epsilon = \pm 1$, et $\delta = 1$ ce qui donne une asymétrie :

$$A^{Hpm} \propto \frac{m_{tran} \sin(4\theta) \left[F''M' - F'M''\right] + 4\left(m_{pol} \sin^3\theta - m_{lon} \cos^3\theta\right)\left[F'M' + F''M''\right]}{\left[1 + \cos^2(2\theta)\right] |F_c|^2} \tag{3.3}$$

  Cette configuration est sensible aux trois composantes de l'aimantation qui sont pondérées par des sinus ou des cosinus. Ainsi si on a un signal à petits angles ($< 60^\circ$) alors il y a une composante de l'aimantation longitudinale puisque m_{lon} est pondéré par $\cos^3\theta$. Si on a un signal à grands angles ($> 60^\circ$) alors il y une composante de l'aimantation hors du plan puisque m_{pol} est pondéré par $\sin^3\theta$. Enfin m_{tran} étant pondéré par $\sin(4\theta)$, si une composante transverse de l'aimantation existe on a un signal d'asymétrie quel que soit θ. Quoi qu'il arrive, si l'asymétrie est nulle pour cette configuration, cela signifie que l'échantillon a une aimantation moyenne nulle. En revanche, s'il y a une asymétrie, sa forme nous indique si l'aimantation a une composante hors du plan et/ou dans le plan.

- **configuration** Cpm
  On a $e_\sigma = 1$, $e_\pi = 1$, $\epsilon = 1$, et $\delta = \pm 1$ ce qui donne une asymétrie :

$$A^{Cpm} \propto \frac{4\left(m_{pol} \sin^3\theta - m_{lon} \cos^3\theta\right)\left[F'M' + F''M''\right]}{\left[1 + \cos^2(2\theta)\right] |F_c|^2 + m_{tran} \sin(4\theta)\left[F''M' - F'M''\right]} \tag{3.4}$$

  En considérant que le terme magnétique au dénominateur est faible par rapport au terme de charge, cette configuration permet de n'être sensible qu'aux composantes de l'aimantation longitudinale et hors du plan et est donc le complémentaire de la configuration Π. De plus, si l'aimantation est purement transverse, le numérateur s'annule ce qui annule complètement l'asymétrie. Comme pour la configuration Hpm, si le signal d'asymétrie se situe plutôt à petits angles alors l'aimantation est longitudinale, tandis que si le signal d'asymétrie est fort à grands angles, l'aimantation a une composante hors du plan. Si l'asymétrie est nulle, cela ne signifie pas que l'échantillon n'est pas magnétique, mais seulement qu'il n'y a pas de composante magnétique dans le plan de diffraction.

L'expression des asymétries selon les configurations utilisées, permet donc de montrer qu'on est plus ou moins sensible à différentes composantes magnétiques. Le tableau 3.4 résume le comportement des asymétries selon la configuration et les composantes de l'aimantation.

Ces résultats ont été vérifiés expérimentalement. Les mesures pour les configurations longitudinales et transverses ont été faites sur un échantillon de 8 monocouches de Fe sur un substrat vicinal d'Ag(116) recouvert par 15 monocouches d'Au. Les mesures pour les configurations polaires ont été réalisées sur un échantillon de FeCo contraint sur Rh(001) pour lequel l'axe de facile aimantation est hors du plan [11],

	m_{lon}	m_{tran}	m_{pol}
configuration Π		asymétrie non nulle quel que soit θ	
configuration Hpm	asymétrie non nulle pour $\theta < 60^\circ$	asymétrie non nulle quel que soit θ	asymétrie non nulle pour $\theta > 60^\circ$
configuration Cpm	asymétrie non nulle pour $\theta < 60^\circ$		asymétrie non nulle pour $\theta > 60^\circ$

Table 3.4 – Résumé de la sensibilité magnétique des asymétries en fonction de la configuration

et le cycle d'hystérésis carré, ce qui permet des mesures à rémanence. La figure 3.20 illustre le tableau 3.4 par des observations expérimentales.

Pour sonder complètement l'aimantation, c'est à dire avoir accès aux trois composantes m_{lon}, m_{tran}, et m_{pol}, il est donc essentiel d'utiliser au moins deux configurations Π et Cpm, ce qui est facilement possible avec les synchrotrons de troisième génération. La configuration Hpm permet quant à elle, dans un premier temps de s'assurer que l'échantillon est magnétique, et dans un deuxième temps de mixer les deux autres configurations. D'après la figure 3.20, on remarque que si il y a uniquement une composante longitudinale de l'aimantation, $A^{Hpm} = A^{Cpm}$. De plus, on peut établir des liens entre les différentes configurations et montrer que A^{Hpm} est fonction de A^{Π}, et A^{Cpm} (voir annexe A.5.3).

Exemple d'aimantation dans le plan

Afin de montrer que l'analyse qualitative permet bien d'être sensible à la présence de composantes longitudinale et transverse de l'aimantation, nous avons effectué des mesures de SXRMR à rémanence pour un axe de facile aimantation orienté à 45° du plan de diffraction. Pour cela, la réflectivité magnétique résonante de rayons X mous a été appliquée à un échantillon de 8 monocouches de Fe sur un substrat vicinal d'Ag(116) recouvert par 15 monocouches d'Au pour lequel l'axe de facile aimantation est perpendiculaire aux marches. Ces marches ont été placées à 45° du plan de diffraction (voir figure 3.21 à droite), ce qui met l'axe de facile aimantation entre les directions longitudinale et transverse. A rémanence, on s'attend donc à avoir des composantes de l'aimantation longitudinale et transverse. Les courbes d'asymétries obtenues au seuil L_3 du Fe à 706.8eV dans les trois configurations Π, Cpm and Hpm sont données dans la figure 3.21.

Pour les trois configurations l'asymétrie est non nulle et différente à chaque fois. D'après le paragraphe précédent, le fait d'avoir une asymétrie en configuration Π

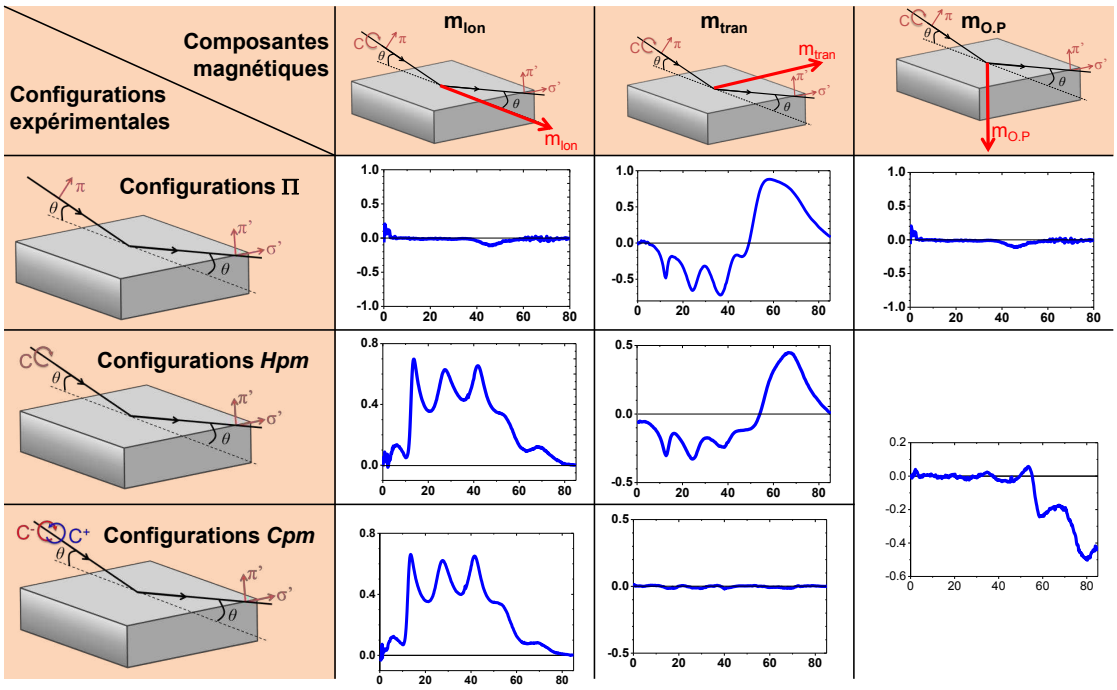


FIGURE 3.20 – Forme de l'asymétrie en fonction des configurations et des composantes magnétiques. Les mesures dans le plan sont faites à saturations afin d'être sûr que toute l'aimantation est bien longitudinale et transverse. Elles ont été effectuées sur un échantillon de 8 monocouches de Fe déposées sur un substrat vicinal Ag(116) et recouvert par 15 monocouches d'Au. Les mesures pour une composante magnétique strictement hors du plan ont été faites à rémanence pour une échantillon de FeCo dont l'axe de facile aimantation est hors du plan.

nous permet d'affirmer qu'il y a une composante transverse, tandis que l'asymétrie obtenue en configuration Cpm nous permet de dire qu'il y a une composante longitudinale. L'asymétrie obtenue en configuration Hpm a une forme similaire à A^{Cpm} pour $\theta < 60^{\circ}$ tandis que pour des angles supérieurs, la forme de l'asymétrie est entre A^{Π} et A^{Cpm}, ce qui montre bien que A^{Hpm} est fonction de A^{Π}, et A^{Cpm}.

Les données expérimentales des figures 3.20 et 3.21 permettent de montrer qu'il est facile par XRMR de distinguer les différentes composantes de l'aimantation présentes au sein d'un échantillon, et valident l'expression des asymétries dérivées de la théorie cinématique. Cette approche cinématique avait déjà été utilisée pour ajuster des asymétries expérimentales obtenues au seuil K du Co pour une géométrie transverse [12], et pour analyser la dépendance en énergie de la diffusion magnétique résonante des pics de Bragg d'une multicouche [13]. Cette approche permet d'avoir des informations qualitatives sur l'orientation de l'aimantation juste en regardant la forme des asymétries. Ceci est un élément de diagnostic important lors des mesures synchrotrons, où une analyse plus poussée n'a pas le temps d'être faite, pour éviter de passer à côté de mesures expérimentales importantes. De plus, nous allons

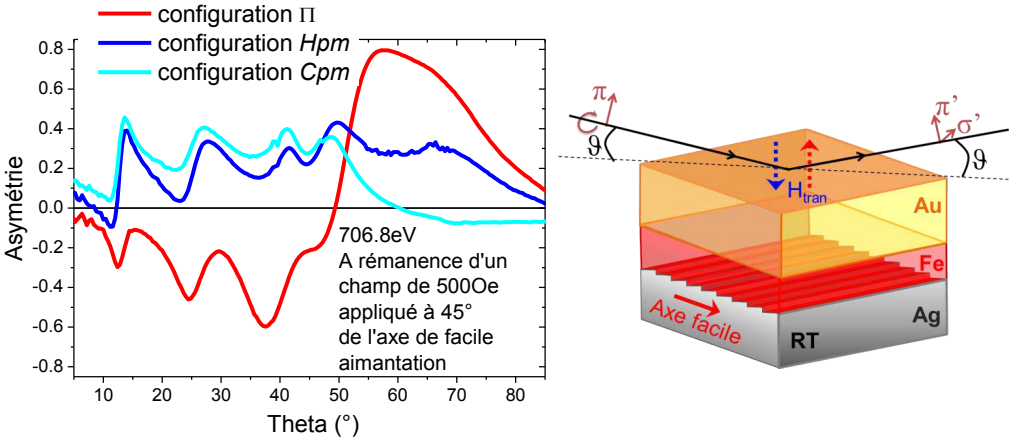


FIGURE 3.21 – A gauche, asymétries expérimentales obtenues à rémanence d'un champ appliqué transversalement de 500Oe pour un échantillon de 8 monocouches de Fe sur un substrat vicinal d'Ag(116) recouvert par 15 monocouches d'Au pour lequel l'axe de facile aimantation est perpendiculaire aux marches, c'est à dire à 45° des directions transverses et longitudinales (schéma à droite). En rouge la configuration Π. En bleu la configuration Hpm. Et en bleu cyan la configuration Cpm. Les asymétries ont été obtenues à température ambiante au seuil L_3 du fer à 706.8eV.

voir que pour l'analyse quantitative qui utilise la théorie dynamique il est important d'avoir une idée préalable du modèle magnétique afin de minimiser le nombre de paramètres à déterminer.

3.4.2 Analyse quantitative : DYNA

L'analyse quantitative (forme et amplitude) des asymétries magnétiques est fondée sur la théorie dynamique développée dans le chapitre 1 et permet de déterminer un profil résolu en profondeur de l'aimantation. Le formalisme matriciel utilisé a été codé en langage Matlab et ce code est nommé DYNA. Il permet d'analyser les données expérimentales en les comparant à une courbe théorique obtenue à partir d'un modèle qui dépend de un ou plusieurs paramètres. L'ajustement de l'asymétrie calculée à l'asymétrie expérimentale (appelé "fit" en anglais[3]) permet de déterminer les paramètres pertinents du problème. Ce paragraphe donne la procédure d'utilisation de DYNA, avec les différentes étapes à effectuer pour que le nombre de paramètres ajustables soit le plus petit possible, et pour que ces paramètres ajustables aient une valeur physique. Pour cela, il faut s'assurer de l'unicité du modèle obtenu et du sens physique, et il est important d'avoir un panel de données expérimentales récoltées dans plusieurs configurations et à plusieurs énergies.

Le programme DYNA est composé de 5 cadrans (figure 3.22). Le premier cadran en haut à gauche, appelé panneau de configuration, permet de déterminer la confi-

3. Ce mot n'ayant pas d'équivalent en français, il est souvent utilisé dans le langage français et sera utilisé comme tel dans ce manuscrit.

guration expérimentale de la courbe expérimentale qu'on veut analyser, ainsi que le type de formalisme utilisé : "Parratt" pour déterminer la structure ; "magnétique" pour déterminer l'aimantation. Le deuxième cadran, en dessous du premier, nommé panneau optimisation, permet de déterminer les paramètres ajustables, et de définir quelles sont les contraintes existantes ou non entre ces différents paramètres. La méthode d'optimisation est une méthode développée pour Matlab qui peut être améliorée. Par ailleurs, une approche d'analyse permet d'effectuer depuis peu des ajustements multiples ("multi-fit"). Le cadran de droite, appelé panneau affichage, permet de visualiser les courbes théoriques et expérimentales. Le quatrième cadrant, dénomé panneau caractéristiques échantillon, permet de décrire l'empilement de l'échantillon couche par couche suivant l'axe de croissance. Les informations importantes sont la composition de la couche qui permettra de faire appel aux tables expérimentales des paramètres f_0, F', F'', M', et M'', la densité volumique, l'épaisseur, la rugosité, la norme de l'aimantation, et la valeur des angles γ et φ. Tous ces paramètres peuvent être ajustés dans le deuxième cadran. Enfin le dernier cadran qui est le panneau correction permet de prendre en compte un bruit de fond expérimental, un facteur d'échelle entre la courbe calculée et l'expérience, et un décalage en angle ou en énergie pour faire correspondre la courbe théorique et la courbe expérimentale.

Nous avons vu au chapitre 2 que les propriétés magnétiques dépendaient fortement de la structure et des interfaces. Il est donc essentiel dans un premier temps de déterminer les paramètres structuraux, puis ensuite de ne plus les modifier quand on détermine les paramètres magnétiques. L'analyse se fait donc en deux temps. Un temps pour déterminer les paramètres structuraux en utilisant le formalisme de Paratt, et un temps pour déterminer les paramètres magnétiques en utilisant le formalisme magnétique.

La suite de cette section donne un exemple d'analyse type pour les courbes expérimentales que nous avons utilisés dans la partie analyse qualitative, c'est à dire obtenues par SXRMR pour un échantillon de 8 monocouches de fer sur un substrat vicinal d'Ag(116) et recouvert par 15 monocouches d'or.

Analyse structurale : Parratt

La première étape dans l'analyse quantitative est de définir les conditions dans lesquelles les mesures ont été réalisées : scan en angle (énergie fixe), ou scan en énergie (angle fixe), et état de la polarisation du faisceau. On peut aussi donner la dimension du faisceau et de l'échantillon dans le plan de diffraction, ainsi que la résolution angulaire du goniomètre. Les dimensions du faisceau et de l'échantillon permettent d'évaluer l'effet d'empreinte du faisceau à la surface de l'échantillon. Tous ces paramètres se règlent dans le panneau configuration (figure 3.22, numéro 1). Pour déterminer la structure il est préférable d'utiliser une courbe de réflectivité expérimentale mesurée loin sous le seuil d'absorption du Fe pour s'affranchir des effets de résonance. Au cours de ces travaux, nous avons choisi une énergie de 680eV qui est assez loin du seuil L_3 pour éviter un effet dû à l'absorption du Fe. Cette énergie est suffisament grande pour sonder l'espace réciproque dans des conditions similaires aux mesures qui seront réalisées à résonance. Elle impose toutefois de ne

pas négliger la partie réelle de la résonance puisque la dépendance en énergie de la partie réelle s'étend relativement loin sous le seuil (figure 1.7).

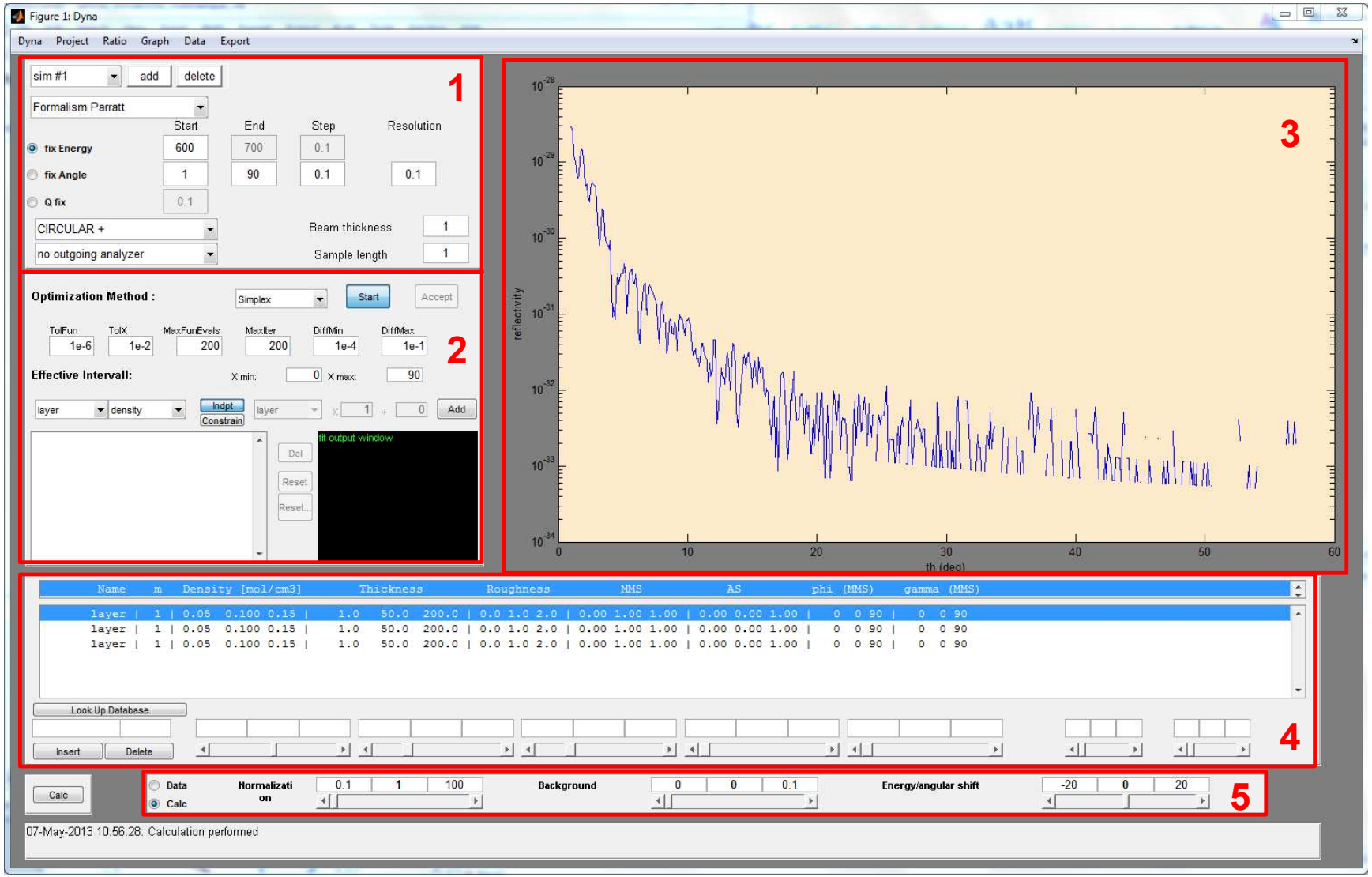


FIGURE 3.22 – Vue du logiciel à son ouverture avec les différents panneaux. 1-Panneau configuration. 2-Panneau optimisation. 3-Panneau affichage. 4-Panneau caractéristiques échantillon. 5-Panneau corrections.

Afin de pouvoir calculer la première courbe théorique, on entre les épaisseurs nominales qui sont dans notre cas : 30.6Å d'Au, et 11.4Å de Fe. Le substrat à une épaisseur infinie qu'on rentre égale à 1000Å, et les rugosités sont mises à 2Å.Une courbe de réflectivité apparait à l'écran lorsqu'on clique sur calculer, et on peut la comparer aux données expérimentales en important celles-ci à partir du menu data. Les deux courbes sont assez semblables mais complètement décalées (figure 3.23 a). Ceci est dû au fait que nos données expérimentales ne sont pas renormalisées à 1 car on mesure difficilement la réflectivité au voisinage de $\theta = 0^\circ$ (effet de dimension échantillon). Cet effet est accentué par le fait qu'au voisinage d'un seuil, il est rare de mesurer un plateau de réflexion totale et la courbe présente souvent une forme arrondie. En outre, il est très fréquemment nécessaire de considérer un bruit de fond expérimental. Il faut donc régler le bruit de fond et la normalisation. On peut décider de le régler sur les données expérimentales ou les données calculées.

Durant mon travail de thèse, j'ai toujours ajusté la théorie à l'expérience, c'est à dire ajouté un bruit de fond et normalisé le calcul. Il faut régler ces paramètres dans le panneau corrections, ainsi que la résolution dans le panneau configurations afin de faire correspondre les deux courbes à petits angles ($\theta < 5^\circ$), comme sur la figure 3.23 b.

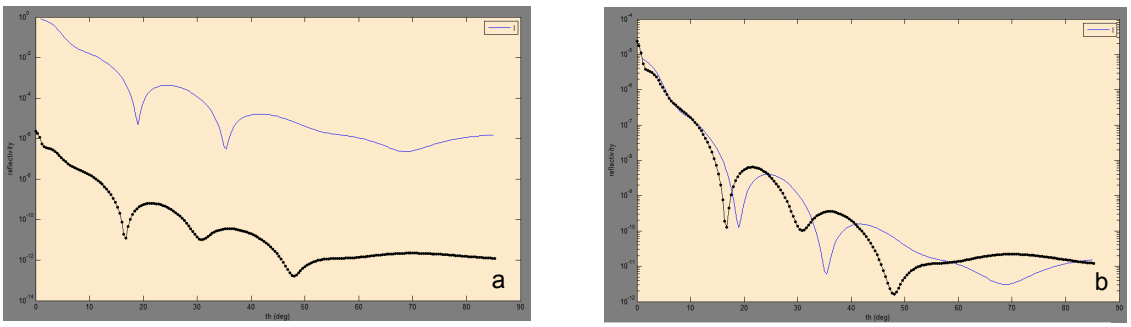


FIGURE 3.23 – Comparaison entre la courbe expérimentale et la courbe théorique sans renormalisation a, et avec renormalisation b.

Les courbes ne se superposent pas, ce qui indique que les paramètres nominaux ne sont pas corrects. Si les écarts sont trop important, on peut faire varier manuellement chacun des paramètres. L'ajustement final des épaisseurs de la couche d'or et de fer ainsi que des rugosités de l'Au, du Fe, et de l'Ag se fait de manière automatisée. Pour cela on utilise le panneau optimisation (figure 3.22), et on définit comme paramètres variables l'épaisseur de l'Au et l'épaisseur du Fe. L'optimisation avec ces paramètres améliore nettement l'accord entre la courbe expérimentale et la courbe théorique comme on peut le voir sur la figure 3.24 a. On effectue ensuite une optimisation en utilisant comme paramètres variables les rugosités, et le fit obtenu montré sur la figure 3.24 b est encore meilleur. Une fois que l'accord est presque parfait on peut effectuer une optimisation avec comme paramètres variables les épaisseurs et les rugosités, afin de peaufiner l'accord entre la courbe théorique et expérimentale. Les paramètres structuraux sont alors les paramètres donnés par le fit.

Les densités peuvent également être optimisées, si on dispose de données de très bonne qualité pour des valeure de $\theta < 5^\circ$. En effet, l'ajustement est très délicat et il

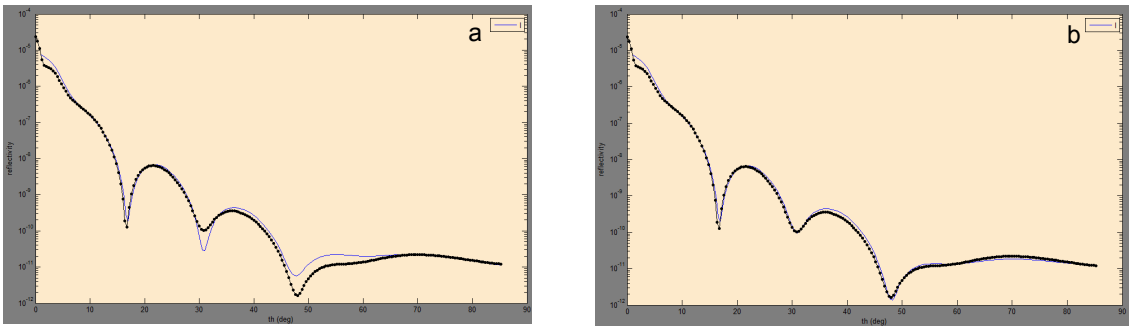


FIGURE 3.24 – Accord entre la courbe expérimentale et théorique après optimisation des épaisseures de l'Au et du Fe (a) et optimisation des rugosités de l'Au, du Fe, et de l'Ag (b)

est facile d'obtenir des réductions de densité supérieure à 15% qui ont peu de sens physique. Durant cette analyse, il faut être attentif au meilleur compromis entre la constante de normalisation et le fit de la succession de "bosses" et de "creux". Les paramètres sont optimisés dans l'intervalle défini par l'utilisateur dans le panneau caractéristiques échantillon.

Lorsqu'un ensemble de paramètres structuraux semble décrire raisonablement bien la structure, on peut passer à l'analyse des mesures magnétiques. Cependant, près du seuil, un petit écart d'énergie peut drastiquement changer la forme de l'asymétrie. Il faut donc s'assurer que la calibration de la ligne de lumière est bonne. Il est rare de trouver le seuil d'absorption L_3 du Fe à sa valeur théorique (706.8eV) et il est donc impératif de déterminer l'écart en énergie entre la position du seuil du Fe mesuré sur la ligne et la valeur théorique. Pour cela, on mesure la dépendance en énergie à une position angulaire où les effets liés à des erreurs sur les paramètres structuraux sont le moins pénalisant (en général juste après l'angle critique). On compare ensuite cette courbe expérimentale donnant l'intensité en fonction de l'énergie, obtenue pour un angle d'incidence $\theta = 20^\circ$, à une courbe théorique obtenue en utilisant le modèle structural qu'on vient de déterminer. On ajuste le "shift en énergie" pour que les deux "pics" dus à la résonance L_3 coïncident (figure 3.25). Dans ce cas il n'y a pas de décalage, mais si un décalage existe, il faudra corriger l'énergie expérimentale pour obtenir l'énergie à laquelle les calculs seront réalisés. On notera que ce décalage en énergie n'affecte pas les résultats obtenus à 680eV puisqu'on est loin de la résonance dans une zone où une erreur sur l'énergie n'affecte pas l'amplitude de F' puisque sa variation est très douce (figure 1.7).

Lorsqu'on passe à une énergie proche de la résonance, les facteurs F' et F'' du Fe sont complètement différents et varient fortement avec l'énergie, ce qui modifie légèrement l'épaisseur du Fe et d'Au. L'analyse devient extrêmement sensible aux détails des paramètres de la couche de Fe, et au delà des ajustements des valeurs de normalisation et de bruit de fond, il est nécessaire de réajuster les paramètres car l'accord entre la courbe théorique et la courbe expérimentale n'est pas bon (figure 3.26 a). Après ajustement on trouve des rugosités différentes et une épaisseurs de Fe plus petite d'environ 1.4Å. Afin d'être au plus près des réflectivités expérimentales, les paramètres sont donc ajustés pour chaque énergie, ce qui permet de donner

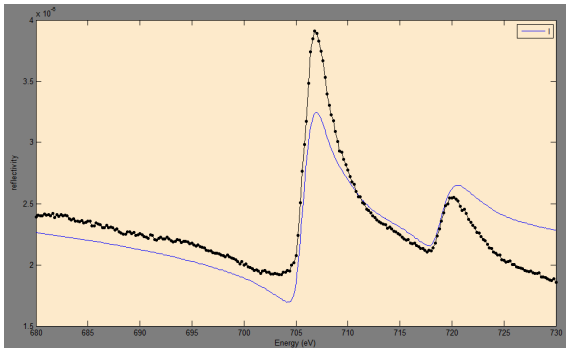


FIGURE 3.25 – Accord entre la courbe expérimentale et théorique pour un scan en énergie à partir du modèle structural déterminé précédemment

une barre d'erreur sur les paramètres structuraux qui est au maximum de 2Å. Il faut noter ici qu'à la résonance, les réflectivités dépendent de l'aimantation au sein de l'échantillon et que pour s'affranchir du magnétisme on compare la réflectivité théorique de Parratt à la réfléctivité moyenne expérimentale : $I_{moy} = \frac{I^{+}+I^{-}}{2} = \frac{I_{+}+I_{-}}{2}$.

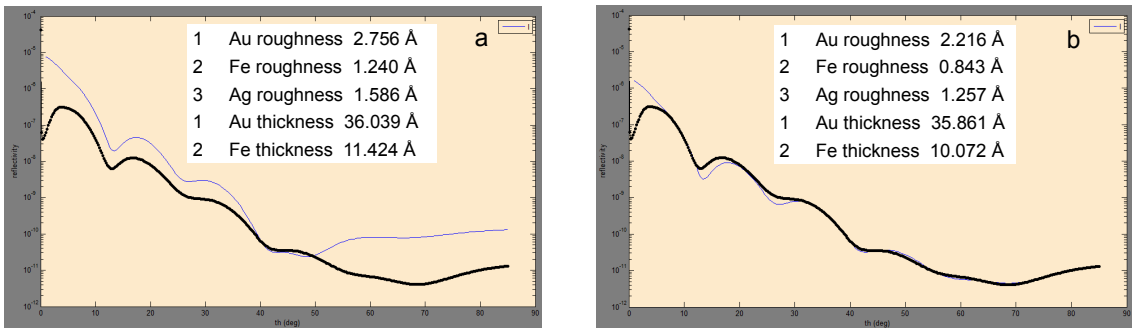


FIGURE 3.26 – Accord entre la courbe expérimentale et théorique à 706.8eV avec les paramètres obtenu à 680eV (a), et après optimisation des épaisseurs et des rugosités simultanément (b)

A partir du modèle structural trouvé pour chaque énergie, on fit les asymétries magnétiques. Les épaisseurs et les rugosités ne sont plus optimisées, et il faut passer au formalisme magnétique pour affiner les asymétries en déterminant le profil d'aimantation au sein de la couche de Fe.

Analyse magnétique

Dans le formalisme magnétique, le vecteur représentant l'aimantation moyenne d'une couche continue est décrit par une amplitude appelée *mms* et deux angles γ et φ afin de modéliser sa direction en coordonnées polaires(figure 3.27).

Dans cette partie, les trois paramètres magnétiques seront dérivés pour une configuration *Hpmlon*. Cette configuration où les mesures ont été effectuées à saturation nous permet de fixer la direction de l'aimantation et donc la valeur des angles

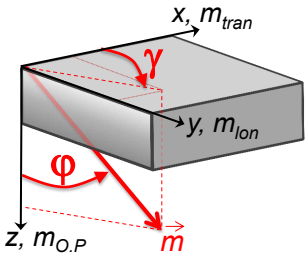


FIGURE 3.27 – Schéma d'orientation et de définition des angles φ et γ permettant d'exprimer la direction de l'aimantation hors du plan et dans le plan respectivement.

$\gamma = \varphi = 90^{\circ}$. On n'optimisera donc seulement les mms. Ces mms sont normalisés par la valeur du moment magnétique de $2.1\mu_B$ des électrons $3d$. Cette valeur est issue des règles de sommes appliquées au signal XMCD mesuré au seuil $L_{2,3}$ du Fe dans une couche épaisse [14]. Si on considère que la couche de Fe est uniformément aimantée en profondeur avec une aimantation égale à celle du Fe bcc, $mms_{Fe} = 1$. L'accord entre la courbe expérimentale et la courbe théorique (figure 3.28 a) n'est pas bon même si la forme de l'asymétrie est correcte. On peut alors optimiser ce paramètre, pour obtenir un meilleur accord (figure 3.28 b). La valeur de mms trouvée est élevée et permet d'améliorer le fit en moyenne sur l'ensemble du domaine angulaire, ce qui n'est pas satisfaisant.

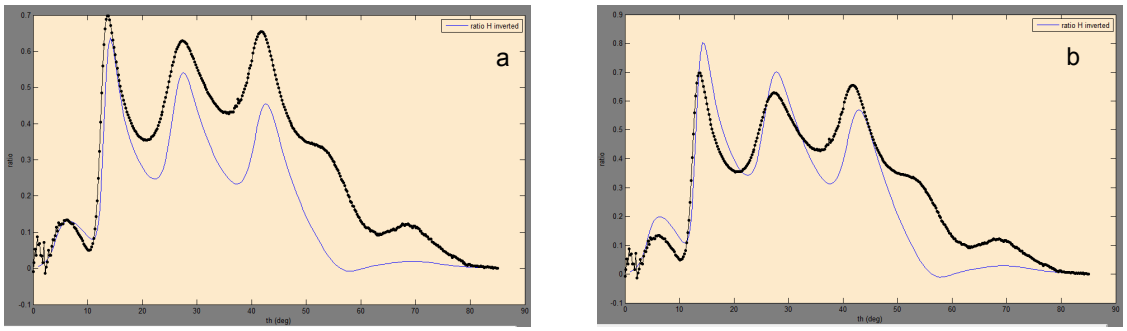


FIGURE 3.28 – Accord entre l'asymétrie expérimentale et théorique à 706.8eV avec $mms = 1$ (a), et après optimisation $mms = 1.5$ (b)

Pour améliorer l'accord entre la courbe théorique et la courbe expérimentale, on peut diviser le film de fer en plusieurs couches magnétiques, ce qui augmente le nombre de paramètres à optimiser, jusqu'à ce que l'ajout d'une couche magnétique ne permette pas d'améliorer le fit. Dans notre cas, lorsqu'on divise la couche en deux l'accord est meilleur, mais insuffisant. En divisant la couche en trois (deux couches d'interfaces et une couche de cœur), l'optimisation des trois mms améliore significativement l'accord expérience-calcul. (figure 3.29). Lorsqu'on divise la couche en 4 ou 5 sous-couches magnétiques, l'accord entre l'asymétrie expérimentale et théorique n'est pas amélioré. Pour minimiser le nombre de paramètres, on gardera donc le modèle à 3 sous-couches magnétiques. Notons que des accords presque parfaits ont été obtenus au cours de ce travail mais que cet exemple illustre un accord

expérience-théorie présentant de faibles écarts (autour de 70°). Ces petites différences sont souvent dues à de faibles désaccord dans le fit des réflectivités qui engendrent des différences dans l'asymétrie puisque celle-ci correspond à un terme croisé où structure magnétique et structure atomique sont très liées.

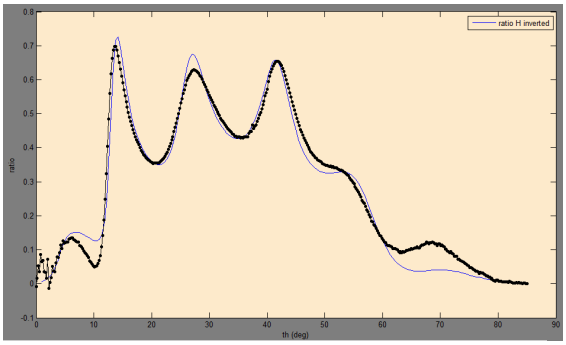


FIGURE 3.29 – Accord entre l'asymétrie expérimentale et théorique à 706.8eV pour trois sous-couches magnétiques de 3.4Å

Dans ce modèle l'aimantation n'est pas homogène en fonction de la profondeur de la couche de fer. L'unicité de ce modèle doit, autant que possible, être vérifée en utilisant soit d'autres configurations, soit d'autres énergies. Si on arrive à obtenir de bons accords entre la théorie et l'expérience pour plusieurs configurations et/ou énergies avec le même modèle, alors, celui-ci est validé. Les valeurs trouvées pour chaque configurations et/ou énergies peuvent être différentes si les variations relatives sont similaires. Les différentes mesures permettent alors d'établir une barre d'erreur sur les paramètres magnétiques.

Pour trouver un modèle lorsque l'orientation de l'aimantation n'est pas alignée selon l'une des trois directions, par exemple à rémanence, il faut déterminer quelles sont les composantes magnétiques d'après l'analyse qualitative, puis après avoir optimisé les mms, optimiser les angles γ et ou φ. Nous verrons que la possibilité d'accéder à plusieurs configurations expérimentales est alors un avantage important. L'analyse quantitative permet donc de décrire un profil de l'aimantation résolu en profondeur. La résolution spatiale correspond à l'épaisseur optimale d'une sous couche magnétique pour décrire l'essentiel des caractéristiques de l'asymétrie mesurée. On verra dans le dernier chapitre jusqu'à quelle résolution on peut aller pour des mesures au voisinage du seuil $L_{2,3}$ du Fe, et à quel point on est sensible ou non à de faibles variations de l'aimantation.

Ce chapitre nous a permis de décrire tous les aspects expérimentaux qui ont été abordés durant ce travail de thèse. Le travail expérimental a été principalement effectué grâce à des mesures synchrotron. Ces instruments étant de "grands instruments", il faut que la qualité des échantillons, le fonctionnement parfait du synchrotron, et de l'expérience de réflectivité soient réunis au même endroit et au même moment, pour avoir de bons

résultats, ce qui rend chaque expérience unique. La dernière partie de ce chapitre a permis de donner les grandes lignes du raisonnement effectué pour analyser les résultats expérimentaux obtenus lors de ces trois dernières années. Maintenant que les notions de bases, l'intérêt d'étudier des films minces magnétiques, et les détails expérimentaux ont été expliqués, nous allons nous intéresser dans les deux derniers chapitres aux résultats et à la physique qui découle des expériences effectuées sur plusieurs échantillons de Fe/Ag(116), et sur un échantillon de Fe/Cu(100).

Bibliographie

[1] S.-H. Kim, H.-J. Sohn, Y.-C. Joo, Y.-W. Kim, T.-H. Yim, H.-Y. Lee, and T. Kang. Effect of saccharin addition on the microstructure of electrodeposited feni alloy. *Surface and Coatings Technology*, 199(1) :43 – 48, 2005.

[2] U. Bauer and M. Przybylski. Large amplitude oscillation of magnetic anisotropy engineered by substrate step density. *Phys. Rev. B*, 81(13) :134428, Apr 2010.

[3] H.A. Durr, T. Eimuller, H.-J. Elmers, S. Eisebitt, M. Farle, W. Kuch, F. Matthes, M. Martins, H.-C. Mertins, P.M. Oppeneer, L. Plucinski, Claus M. Schneider, H. Wende, W. Wurth, and H. Zabel. A closer look into magnetism : Opportunities with synchrotron radiation. *IEEE Transactions on Magnetics*, 45(1) :15–57, January 2009.

[4] M. Sacchi, N. Jaouen, H. Popescu, R. Gaudemer, J. M. Tonnerre, S. G. Chiuzbaian, C. F. Hague, A. Delmotte, J. M. Dubuisson, G. Cauchon, B. Lagarde, and F. Polack. The SEXTANTS beamline at SOLEIL : a new facility for elastic, inelastic and coherent scattering of soft x-rays. *Journal of Physics : Conference Series*, 425(7) :072018, March 2013.

[5] G. Srajer, L.H. Lewis, S.D. Bader, A.J. Epstein, C.S. Fadley, E.E. Fullerton, A. Hoffmann, J.B. Kortright, Kannan M. Krishnan, S.A. Majetich, T.S. Rahman, C.A. Ross, M.B. Salamon, I.K. Schuller, T.C. Schulthess, and J.Z. Sun. Advances in nanomagnetism via x-ray techniques. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 307(1) :1–31, December 2006.

[6] Jean Protas. *Diffraction des rayonnements, Introduction aux concepts et méthodes*. Dunod, 1999.

[7] M. S. Lehmann J. R. Regnard C. Schlenker J. Baruchel, J. L. Hodeau. *Neutron and synchrotron radiation for condensed matter studies, Volume 1 : Theory, instruments, and methods*. EDP Sciences - Springer-Verlag, 1993.

[8] U. Staub, V. Scagnoli, Y. Bodenthin, M. Garcia-Fernandez, R. Wetter, A. M Mulders, H. Grimmer, and M. Horisberger. Polarization analysis in soft x-ray diffraction to study magnetic and orbital ordering. *Journal of Synchrotron Radiation*, 15(5) :469–476, September 2008.

[9] Nicolas Jaouen, Jean-Marc Tonnerre, Grigor Kapoujian, Pierre Taunier, Jean-Paul Roux, Denis Raoux, and Fausto Sirotti. An apparatus for temperature-dependent soft x-ray resonant magnetic scattering. *Journal of Synchrotron Radiation*, 11(4) :353–357, July 2004.

[10] Werner Jark and Joachim Stöhr. A high-vacuum triple-axis-diffractometer for soft x-ray scattering experiments. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 266(1-3) :654–658, April 1988.

[11] J.-M. Tonnerre, M. Przybylski, M. Ragheb, F. Yildiz, H. C. N. Tolentino, L. Ortega, and J. Kirschner. Direct in-depth determination of a complex magnetic configuration in an exchange-coupled bilayer with perpendicular and in-plane anisotropy. *Physical Review B*, 84(10) :100407, September 2011.

[12] F. de Bergevin, M. Brunel, R. M. Gale, C. Vettier, E. Elkai, M. Bessière, and S. Lefèbvre. X-ray resonant scattering in the ferromagnet CoPt. *Phys. Rev. B*, 46(17) :10772–10776, Nov 1992.

[13] J. M. Tonnerre, L. Sève, D. Raoux, G. Soullié, B. Rodmacq, and P. Wolfers. Soft x-ray resonant magnetic scattering from a magnetically coupled Ag/Ni multilayer. *Phys. Rev. Lett.*, 75(4) :740–743, Jul 1995.

[14] 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. *Physical Review Letters*, 75(1) :152, July 1995.

Chapitre 4

Détermination du profil magnétique de films minces de Au/Fe/Ag(116) par SXRMR

Sommaire

4.1 Motivations 102
4.1.1 Anisotropie et états de puits quantiques 102
4.1.2 Résultats MOKE 103
4.2 Expérience de XRMR 106
4.2.1 Echantillons et configurations 106
4.2.2 Analyse qualitative 110
4.2.3 Conclusions 118
4.3 Analyse quantitative 119
4.3.1 Structure 120
4.3.2 Magnétisme des échantillons à saturation magnétique . . 123
4.3.3 Magnétisme des échantillons à rémanence 135
4.3.4 Conclusions, synthèse 142
4.4 Discussions 147
4.4.1 Augmentation de l'aimantation aux interfaces 147
4.4.2 Composante magnétique hors du plan 149
4.4.3 Composante magnétique dans le plan : domaines 151
Bibliographie 154

4.1 Motivations

L'anisotropie magnétique, introduite au chapitre 2 est l'une des propriétés magnétiques les plus importantes car elle gouverne l'orientation de l'aimantation dans l'espace. Si on veut contrôler l'aimantation (GMR, mémoire magnétique), il faut pouvoir manipuler l'anisotropie magnétique en amplitude et en direction. Dans les films minces, nous avons vu que cette anisotropie dépend beaucoup de la structure cristallographique, et qu'elle peut être modifiée par des états de puits quantiques. Dans cette partie on expliquera tout d'abord la relation entre les états de puits quantiques et l'oscillation de l'amplitude et/ou de la direction de l'aimantation, qui ont été observés dans des films minces de Fe sur un substrat vicinal d'Ag. Puis on présentera les résultats MOKE qui ont permis l'étude d'un tel phénomène. Ces résultats montreront que l'aimantation moyennée dans toute la couche de Fe a des propriétés très intéressantes qui pourraient être inhomogènes en épaisseur, et nécessitent donc une étude XRMR.

4.1.1 Anisotropie et états de puits quantiques

L'observation d'états de puits quantiques près du niveau de Fermi dans un film mince de Fe a été faite par Schäfer *et al* [1] en 2007 par spectroscopie de photoémission résolue en angle (ARPES).

Le fer bcc ayant une anisotropie quadratique, pour étudier les changements que pourraient induire les états de puits quantiques sur l'anisotropie magnétique, il faut favoriser une direction d'aimantation afin d'avoir une unique anisotropie. Pour cela on fait croitre le Fe sur un substrat vicinal d'Ag avec la direction des marches selon l'axe [110] (figure 4.1). De plus, pour pouvoir étudier la présence ou non d'états de puits quantiques il faut pouvoir faire varier l'épaisseur de la couche de Fe. Or comme les propriétés magnétiques sont très sensibles et peuvent légèrement changer d'un échantillon à l'autre, il est préférable d'avoir plusieurs épaisseurs possibles pour un même échantillon. Le Fe est donc déposé sous forme de coin (figure 4.1).

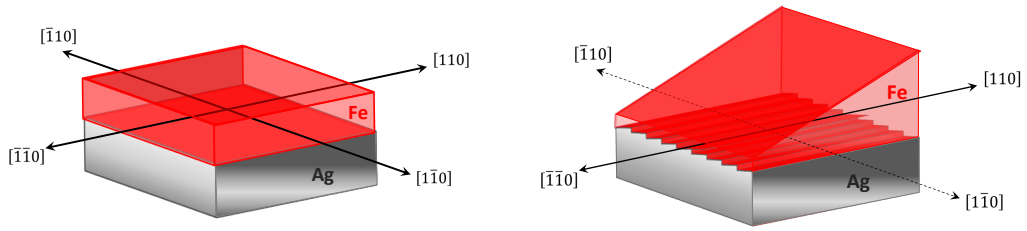


FIGURE 4.1 – Schéma des axes de facile aimantation pour un échantillon de Fe/Ag(100) à gauche, et schéma de l'orientation des marches par rapport à ces axes de facile aimantation et au coin à droite.

En 2009, Li *et al* [2] mesurent une oscillation de l'anisotropie magnétique pour un échantillon de Fe déposé sur un substrat vicinal d'Ag (1,1,10). Sur un tel échantillon, cette oscillation de l'anisotropie apparaît pour des températures en dessous de 200K et est en fait une oscillation de l'amplitude de celle-ci. L'axe de facile aimantation est

alors parallèle aux marches. L'ajout d'une surcouche d'Au change la force de cette anisotropie et permet même de changer sa direction de parallèle à perpendiculaire aux marches. Selon l'épaisseur de Fe l'anisotropie est donc plus ou moins forte et elle est soit parallèle aux marches, soit perpendiculaire à celles-ci, avec une période d'oscillation de 5.7±0.2 monocouches [2] (figure 4.4). Or le rayon de Fermi du Fe bcc dans la direction hors du plan pour une symmétrie $\Delta_{2'}$ est de 5 monocouches, ce qui induit une oscillation dûe aux états de puits quantiques de 5 monocouches. De plus, les autres bandes d'électrons ont des périodes d'oscillations très différentes, ce qui permet d'affirmer qu'il y a une relation entre les états de puits quantiques qui influencent les électrons minoritaires de la bande d et les propriétés de l'anisotropie magnétique mises en évidence dans cet échantillon. L'oscillation de l'anisotropie magnétique est donc attribuée à la présence d'états de puits quantiques dans la couche de Fe. Cette hypothèse est confirmée grâce à une expérience de spectroscopie par photoémission résolue en angle (ARPES) effectuée par Li *et al* [3] en 2011, qui a permis de voir l'oscillation de la densité d'états près du niveaux de Fermi (figure 4.4) pour un échantillon de Fe/Ag(1,1,10) avec une période de ≈ 5.7Å.

L'équipe de Marek Przybylski, en collaboration avec Li *et al* a ensuite montré que cette oscillation, en plus de dépendre de la température, de l'épaisseur de Fe, et de la présence ou non d'une surcouche d'Au, dépendait également de la densité des marches du substrat [4, 5]. Un autre phénomène intéressant relié à cette oscillation de l'anisotropie, est l'observation d'une oscillation de même période d'une composante magnétique hors du plan [6]. Cette composante hors du plan vient du fait que l'anisotropie de forme préfère que l'aimantation soit dans le plan des marches, plutôt que dans le plan de l'échantillon. Il existe donc un faible angle hors du plan qu'on appelera φ qui oscille de part la présence d'états de puits quantiques. Pour des films très minces, ayant une épaisseur inférieure à 5 monocouches, la composante hors du plan augmente à cause de la transition de réorientation de spin.

Tous ces résultats magnétiques ont été obtenus grâce à des mesures MOKE longitudinal et polaire effectuées in-situ à l'institut Max Planck à Halle, en Allemagne dans l'équipe du professeur Marek Przybyliski.

4.1.2 Résultats MOKE

Les mesures d'effets Kerr Magnéto-Optiques (MOKE) permettent d'obtenir des cycles d'hystérésis. Lorsque le champ est appliqué selon l'axe de facile aimantation, on obtient un cycle carré (figure 3.6), tandis que lorsqu'il est appliqué selon l'axe de difficile aimantation, il n'y a pas d'ouverture du cycle et on observe une variation continue du signal MOKE lors du renversement, jusqu'à saturation (figure 3.6). Dans le cadre d'un échantillon de Fe sur un substrat d'Ag vicinal, il y a un axe de facile aimantation, et un axe de moins facile aimantation (appelé à tort axe de difficile aimantation) perpendiculaire à l'axe de facile aimantation qui vient de l'anisotropie quadratique du Fe massif. Lorsque le champ magnétique est appliqué selon cet axe de moins facile aimantation, le cycle d'hystérésis est composé de deux cycles carrés décalés de manière symétriques par rapport au point (0,0) d'un champ appelé champ de décalage : H_s (figure 4.2).

Si l'axe de facile aimantation est perpendiculaire aux marches, le cycle d'hystérésis sera carré lorsque le champ magnétique extérieur est appliqué perpendiculairement aux marches (figure 4.2 a), tandis que pour un champ parallèle aux marches, le cycle d'hystérésis sera double (figure 4.2 b). La valeur du champ de décalage H_s est directement proportionnelle à la constante d'anisotropie effective K_{eff}. On considèrera par convention que H_s a un signe négatif lorsque le dédoublement apparait pour un champ magnétique appliqué parallèle aux marches.

Lorsque l'axe de facile aimantation est parallèle aux marches, H_s n'existe que pour un champ magnétique appliqué perpendiculaire aux marches. Il sera alors considéré comme positif (figure 4.2 c).

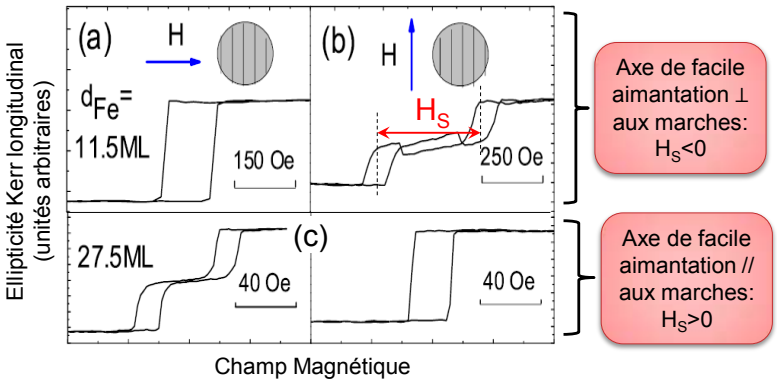


FIGURE 4.2 – Courbes d'hystérésis obtenues par mesure MOKE en appliquant le champ parallèlement aux marches et perpendiculairement à celle-ci pour deux épaisseurs de Fe. Une où l'axe de facile aimantaiton est perpendiculaire aux marches (a et b) et une où l'axe de facile aimantation est parallèle aux marches (c). La valeur de H_s est déterminée arbitrairement comme étant négative dans le premier cas (a et b) et positive dans le deuxième cas (c)

La figure 4.3 montre la dépendance de H_s en fonction de l'épaisseur du Fe pour deux températures. La couche de Fe est ici recouverte d'une couche d'Au. A température ambiante, on observe un changement de signe de H_s pour $t = 7.3$ monocouches. Ce changement de signe est lié à un changement d'axe de facile aimantation. L'anisotropie dans une direction se renforce lorsqu'on s'éloigne de l'épaisseur de transition. A très basse température (5K), les valeurs de H_s présentent une variation d'amplitude oscillante avec une période de 5.9±0.4monocouches. Non seulement la force de l'anisotropie oscille, mais aussi la direction de l'axe de facile aimantation.

En utilisant la géométrie polaire des expériences MOKE, on peut également être sensible à la composante hors du plan et tracer l'angle φ en fonction de l'épaisseur de Fe. Etant donné que par ARPES on peut également mesurer la densité d'états (DOS) en fonction de l'épaisseur de Fe, si on met les courbes DOS, H_s, et φ en fonction de la même abscisse, on observe bien que la période d'oscillation est la même (figure 4.4 [3])

Ces mesures MOKE ont donc permis de détecter la présence d'oscillation de l'anisotropie magnétique d'un échantillon et de les mettre en relation avec l'oscilla-

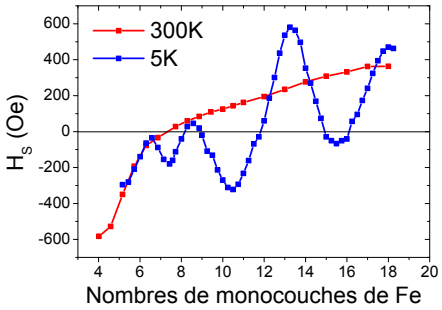


FIGURE 4.3 – H_s en fonction de l'épaisseur de Fe mesurée sur un échantillon Au/-Fe/Ag(116)

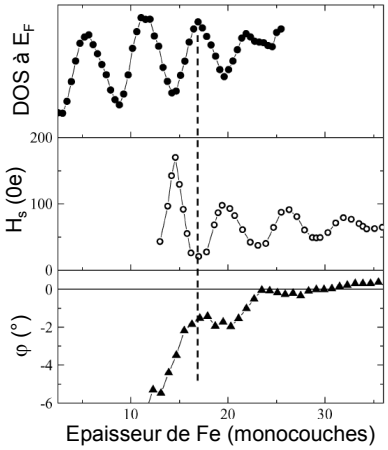


FIGURE 4.4 – Densité d'états, H_s, et φ en fonction de l'épaisseur de Fe mesurée sur un échantillon Fe/Ag(1,1,10) [3]

tion des états de puits quantiques.Les modifications de l'orientation de l'axe de facile aimantation dans le plan ainsi que les modifications de l'orientation de la composante perpendicualire au plan du film ont été observées par des expériences qui moyennent l'information en profondeur. Comme ces films minces de Fe présentent deux interfaces très différentes de part la nature des atomes en contact et de par leur morphologie, on peut se demander si la distribution d'aimantation en amplitude et en direction est homogène au sein des films. C'est afin de sonder cette homognéité que nous avons entrepris des mesures de XRMR. Les principales motivations étaient de répondre à ces questions :

- Comment l'interaction avec l'Ag et l'Au modifie le magnétisme interfacial et jusqu'à quelle distance de l'interface ces éventuelles modifications persistent ?
- Est-il possible d'être sensible à une différence de comportement vis à vis de la réorientation de l'axe de facile aimantaiton ? Autrement dit, est-ce que la présence des marches dans l'interface inférieure pourrait favoriser, pour une épaisseur donnée, une direction alors que la réduction de l'effet des marches à l'interface supérieure pourrait favoriser une autre orientation ?
- Est-il possible de détecter une variation de la composante d'aimantation hors

du plan en fonction de la distance à la surface vicinale d'Ag ?
La possibilité d'une inhomogénéité de la direction d'aimantation au sein du film rencontre une grande difficulté liée à l'anisotropie d'échange qui tend, en particulier dans le domaine d'épaisseur des films étudiés, à aligner l'aimantaiton. Toutefois, cette motivation d'aller sonder des détails d'aimantation aux interfaces a été renforcé par les résultats obtenus sur le système Au/Fe/Cu(100) (Chapitre 5) pour lequel des variations importantes ont été observées à l'échelle de 4-8 monocouches [7]. Bien sûr, le Fe sur Cu(100) adopte une structure fcc alors que sur Ag, le fer adopte une strucutre bcc qui est beaucoup moins instable pour les propriétés magnétiques que la structure fcc.

4.2 Expérience de XRMR

Les expériences de réflectivités de rayons X mous (SXRMR) ont toutes été réalisées sur l'appareil RESOXS de la ligne SEXTANTS au synchrotron SOLEIL sauf une expérience de réflectivité effectuée sur le diffractomère de la ligne ID08 de l'ESRF. Les échantillons de Au/Fe/Ag(116) étudiés ont été réalisés au Max Planck Institut par Maciek Dabrowski et Piotr Kuswik. Cette partie donnera dans un premier temps les paramètres de construction des échantillons, et leurs natures : coin, plat, substrat vicinal ou non. Ensuite un paragraphe expliquera quelles configurations expérimentales nous avons utilisées. Dans une deuxième partie les résultats de l'analyse qualitative seront présentés, puis une conclusion sur ces premiers résultats sera faites.

4.2.1 Echantillons et configurations

Fabrication et caractérisation in situ

Les échantillons de Fe/Ag(116) étudiés ont tous été recouverts par 15 monocouches d'Au (nominalement). Les échantillons sont préparés dans le bâti ultra-vide décrit dans le chapitre 3. Pendant le dépôt du Fe le vide reste inférieur à $2.10^{-10} mbar$. Le substrat d'Ag(116) est nettoyé grâce à des cycles de bombardements d'ions Ar d'1keV suivi par un chauffage à 500°C. Après cette préparation, la surface présente bien des marches monoatomiques orientées selon la direction cristalline Ag[110] [8]. En effet, les clichés de diffraction obtenus par LEED après ce traitement (figure 4.7) présentent des pics doubles qui sont caractéristiques d'une surface vicinal et permettent de remonter à une largeur de marches de 0.86nm, ce qui correspond à un angle vicinal [1] de 13.3° (figure 4.5). Le Fe est ensuite déposé à température ambiante par MBE, soit sous forme de coin, soit sous forme de deux épaisseurs différentes préparées sur le même substrat, cette forme d'échantillon sera appelée "terraces" par la suite. La croissance du Fe se fait sous forme cristallographique cubique centré (bcc) tourné de 45° par rapport à l'Ag qui est fcc. Le paramètre de maille dans le plan du Fe est agrandi de 0.8% pour correspondre à $\frac{\sqrt{2}a_{Ag}}{2}$. La figure 4.6 montre l'accord entre la maille cristallographique de l'Ag et du Fe.

1. Angle entre la direction [100] et [116].

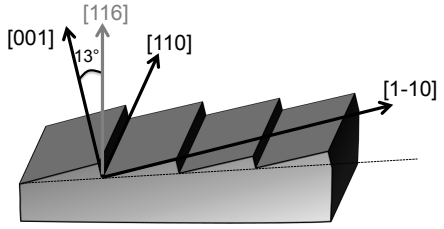


FIGURE 4.5 – Schéma de l'orientation des marches du substrat vicinal d'Ag(116)

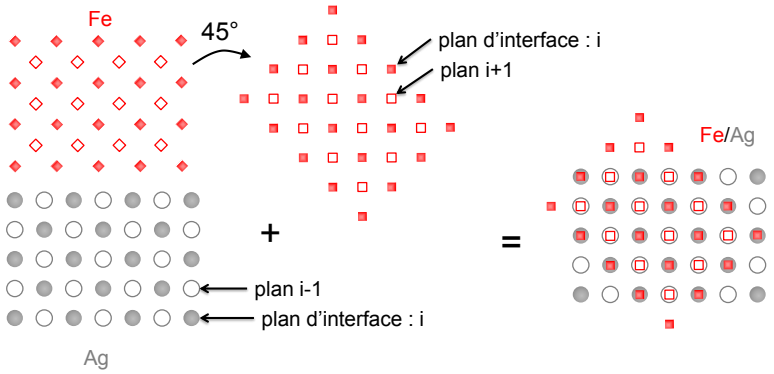


FIGURE 4.6 – Schéma de l'orientation de la maille cristallographique cubique centré du Fe par rapport à la maille cubique face centré de l'Ag. Vue du dessus de la maille cristallographique dans le plan (100)

Après la croissance du Fe, l'échantillon est chauffé à 150° pendant 30 minutes pour améliorer la qualité de sa surface [9], puis protégé par une épaisseur de 15 monocouches d'Au. Un cliché LEED permet de voir que l'échantillon a un bon arrangement cristallin puisqu'on voit des pics de diffraction (figure 4.7). Ces pics de diffraction sont regroupés par deux et sont moins bien définis que sur le cliché de la surface d'Ag. Cette information de la présence de doubles pics permet d'affirmer que pour des épaisseures inférieures à 15 monocouches de Fe, les marches sont toujours présentes dans la couche d'Au, mais moins bien définies. Les échantillons sont

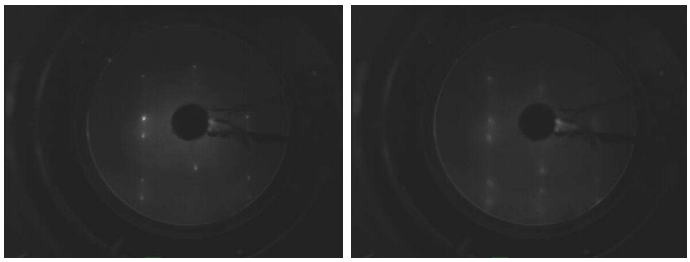


FIGURE 4.7 – Clichés de diffraction obtenus par LEED pour une énergie de 80eV. A gauche après avoir nettoyé le substrat d'Ag, et à droite après avoir déposé les couches de Fe et d'Au.

ensuite caractérisés magnétiquement par MOKE [10] comme expliqué dans la partie motivation.

Type d'échantillons

Etant donné le coût d'un substrat d'Ag vicinal de bonne qualité, nous n'avons que deux substrats d'Ag(116). Afin de pouvoir effectuer d'autres expériences avec ces substrats, et à cause de l'éloignement temporelle des expériences synchrotrons, il est difficile de garder le même échantillon d'une expérience à une autre. Plusieurs échantillons coins ont donc été élaborés quasiment pour chaque expérience synchrotron. Tous ces échantillons présentent le même comportement magnétique, à savoir une oscillation de l'amplitude et de la direction de l'anisotropie à basse température. Toutefois, il peut y avoir un décalage de la courbe H_s en fonction de l'épaisseur de Fe (figure 4.8), dû au fait que d'un échantillon à l'autre les interfaces sont légèrement différentes. Toutes les épaisseurs de Fe étudiées seront considérées comme étant issues d'un seul et même coin de 2 à 18 monocouches (MC) de Fe.

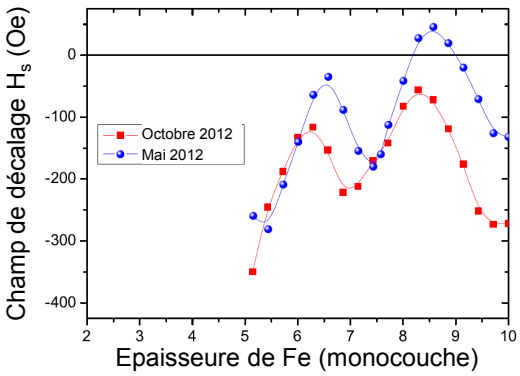


FIGURE 4.8 – Courbes montrant le champ de décalage H_s en fonction de l'épaisseur de Fe obtenues par MOKE pour deux échantillons nominalement identiques de Au/-Fe/Ag(116)

La réflectivité a été mesurée en positionnant la pente du coin perpendiculaire au plan de diffraction, c'est-à-dire que l'intersection entre ce plan et le coin correspond à une tranche d'épaisseur à priori constante (figure 4.9). Bien sûr la dimensionnalité latérale du faisceau ($\approx 200\mu m$) étant cinq fois plus petite que la dimension d'une terrace du coin ($1mm$), il est important de vérifier que la mesure de la réflectivité sur un échantillon coin est comparable à celle mesurée sur un film continu. Pour cela, un échantillon constitué de deux terraces de $6mm$ de largeur ayant des épaisseurs de 8 et 9 monocouches de Fe/Ag(116) ainsi qu'un échantillon constitué de 9 et 13 monocouches de Fe sur un substrat d'Ag(100) plat ont été testés. Trois types différents d'échantillons ont donc été réalisés et mesurés à des intervalles différents (annexe C.1).

Configurations expérimentales et mesures effectuées

Durant toutes les mesures, l'orientation des échantillons est restée la même : la pente du coin est parallèle aux marches, et afin de ne sonder qu'une épaisseur, elle est positionnée perpendiculairement au plan de diffusion (figure 4.9). La direction longitudinale correspond donc à la direction perpendiculaire aux marches, tandis que la direction transverse correspond à la direction parallèle aux marches qui est selon la direction cristallographique [110] du substrat d'Ag. Selon les expériences, cette direction a été orientée soit vers le haut, soit vers le bas (voir annexe C.1), c'est-à-dire que l'échantillon a pu être monté avec une rotation de 180°, induisant une inclinaison opposée des terraces des marches par rapport au plan du film. Les angles φ et γ sont égaux à 0 lorsque l'aimantation est longitudinale [2] comme montré sur la figure 4.9.

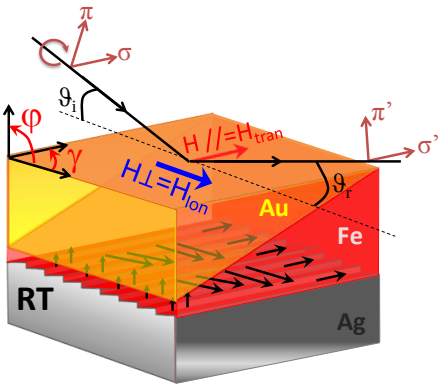


FIGURE 4.9 – Orientation d'un échantillon coin par rapport au plan de diffusion

Au cours des expériences, l'accès à différentes épaisseurs a été réalisé en déplaçant le coin dans la direction perpendiculaire au plan de diffraction. Pour chaque épaisseur sondée, des mesures à 680eV ont été effectuées à température ambiante et basse température afin de déterminer la structure [3]. A -26.8 eV sous le seuil de résonance, la contribution de F'' est négligeable, tandis que F' doit être pris en compte, même s'il ne dépend plus de l'énergie.

Des cycles d'hystérésis sont également effectués, à une énergie proche de la résonance et à un angle donné, afin de sonder la direction et l'amplitude de l'anisotropie pour l'épaisseur sondée. Les résultats sont comparés avec les résultats MOKE (figure 4.3) et on observe une très bonne correspondance. Selon les épaisseurs et la température on obtient un axe de facile aimantation parallèle ou perpendiculaire aux marches. La figure 4.10 montre les mesures expérimentales de tels cycles d'hystérésis obtenus pour trois épaisseurs différentes. Pour une épaisseur de 4.2 MC de Fe (figure 4.10 gauche), la saturation est tout juste atteinte au delà de 1600Gauss, et lorsque le champ est appliqué longitudinalement, le cycle est carré avec une légère pente, ce

2. Pour des raisons pratiques de compréhension, cette définition est différente de celle utilisée dans les chapitres précédents

3. En effet, on ne peut pas effectuer d'expérience de réflectivité sur le réflectomètre du laboratoire car le faisceau est trop large pour ne sonder qu'une épaisseur le long du coin.

qui indique un axe de facile aimantation perpendiculaire aux marches avec une forte composante hors du plan. Pour l'épaisseur de 8 MC (figure 4.10 milieu), l'axe est perpendiculaire aux marches, puiqu'un cycle d'hystérésis carré est obtenu lorsque le champ magnétique est longitudinal, et un cycle double lorsque le champ est transverse. Enfin, pour une épaisseur de 13.5 MC de Fe (figure 4.10 droite), c'est l'inverse, et l'axe est parallèle aux marches. L'annexe C.2 répertorie toutes les épaisseurs que nous avons étudiées ainsi que leur axe de facile aimantation.

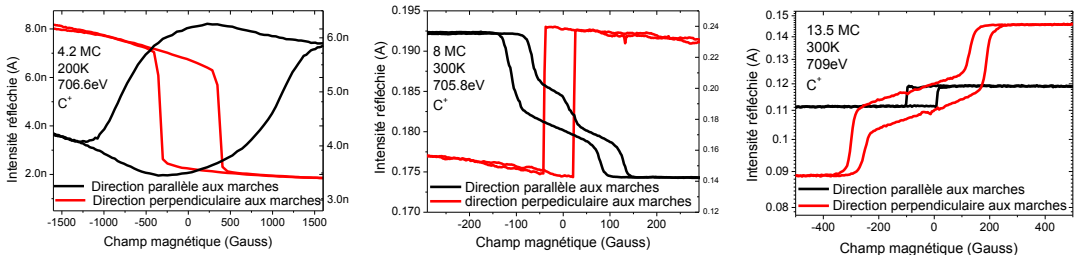


FIGURE 4.10 – Courbes d'hystérésis obtenues en réflectivité à une énergie proche du seuil L_3 du Fe pour trois épaisseurs : 4.2, 8, et 13.5 monocouches (gauche, milieu et droite respectivement) lorsque le champ magnétique extérieur est appliqué transversalement (parallèlement aux marches, noir) et longitudinalement (perpendiculairement aux marches, rouge)

Les mesures de réflectivités magnétiques ont toutes été effectuées au voisinage du seuil L_3 et les configurations Π, Hpm, et Cpm ont été effectuées en appliquant un champ soit longitudinalement, soit transversalement, à saturation ou à rémanence. Ces différentes mesures vont permettre : (i) de vérifier l'alignement des marches de l'échantillon par rapport au plan de diffraction, (ii) d'étudier son comportement à saturation et à rémanence, selon si le champ est parallèle ou perpendiculaire à l'axe de facile aimantation, (iii) d'observer l'apparition d'un signal d'asymétrie en configuration Hpm et/ou Cpm à grands angles, montrant directement l'existence d'une composante magnétique hors du plan. Le prochain paragraphe présentera ces différentes mesures expérimentales et donnera leur analyse qualitative.

4.2.2 Analyse qualitative

Dans ce paragraphe nous présenterons les résultats de l'analyse qualitative en regroupant les conclusions que nous avons tirées au cours des 5 sessions d'expériences synchrotron qui ont été effectuées. En pratique, l'analyse qualitative se fait pour chaque épaisseur d'échantillon, si possible pendant le temps de mesure pour anticiper les mesures suivantes afin d'éviter de faire des mesures inutiles ou d'oublier des mesures importantes, et de pouvoir corriger l'alignement de l'échantillon. De plus, étant donné le nombre de courbes obtenues lors de toutes nos expériences, nous montrerons seulement les courbes qui illustrent le mieux nos propos. Les cinq principales catégories dans lesquelles nous avons regroupé les mesures sont :

- L'effet de la forme de l'échantillon, ainsi que du substrat vicinal sur la réflectivité
- Les configurations permettant d'ajuster l'alignement

- La détection d'une composante hors du plan
- La présence d'une composante transverse à l'axe de facile aimantation à rémanence, interprétée comme la présence de domaines magnétiques
- L'évolution entre température ambiante et basse température

Effet de la forme "coin" de l'échantillon et du substrat vicinal

A notre connaissance, c'est la première fois que des mesures de SXRMR sur un échantillon coin sont réalisées. Le fait que l'épaisseur ne soit pas la même sur tout l'échantillon peut engendrer des phénomènes de diffusion plus ou moins importants et peut altérer la réflectivité. C'est pour cela, que des mesures de réflectivité ont été faites sur un échantillon "terraces" pour des épaisseurs de 8 et 9 monocouches, déjà sondées sur un coin. La figure 4.11 montre que les réflectivités obtenues à 680eV sont très similaires en intensité. La légère différence de forme est due au fait que les échantillons n'ont pas exactement les mêmes épaisseurs de Fe et d'Au ainsi que les mêmes rugosités, comme le montrent les résultats de l'analyse quantitative effectuée (tableau de la figure 4.12).

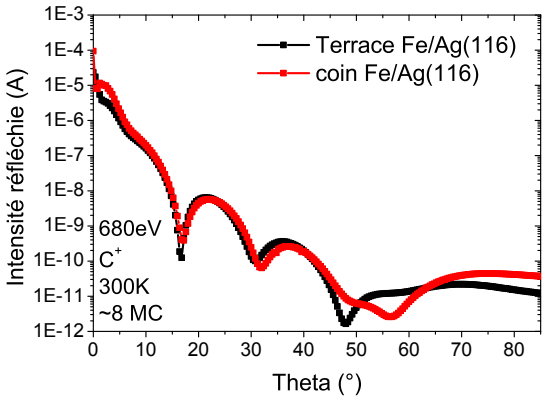


FIGURE 4.11 – Comparaison des réflectivités obtenues pour un échantillon coin (rouge), et pour un échantillon terrace (noir) pour une épaisseur d'environ 8 MC de Fe sur un substrat vicinal d'Ag.

Il en est de même pour l'effet des marches du substrat dont on distingue la présence à la surface de l'Au. Elles peuvent donner lieu à un fond de diffusion diffuse plus important. La figure 4.12 compare les réflectivités obtenues pour un échantillon de 9 MC de Fe/Ag(100) avec un échantillon de 9 MC de Fe/Ag(116) (à gauche). Les deux réflectivités étant similaires, les marches du substrat ne modifient donc pas les mesures de réflectivité. Les courbes de droite sont les réflectivités obtenues pour une épaisseur de Fe de 13 MC pour un échantillon terrace avec un substrat plat, et un échantillon coin avec un substrat vicinal. Elles ont une forme similaire, ce qui montre que ni la présence d'un coin, ni la présence des marches modifient la forme de la réflectivité, et donc les paramètres structuraux dérivés de l'analyse sont significatifs.

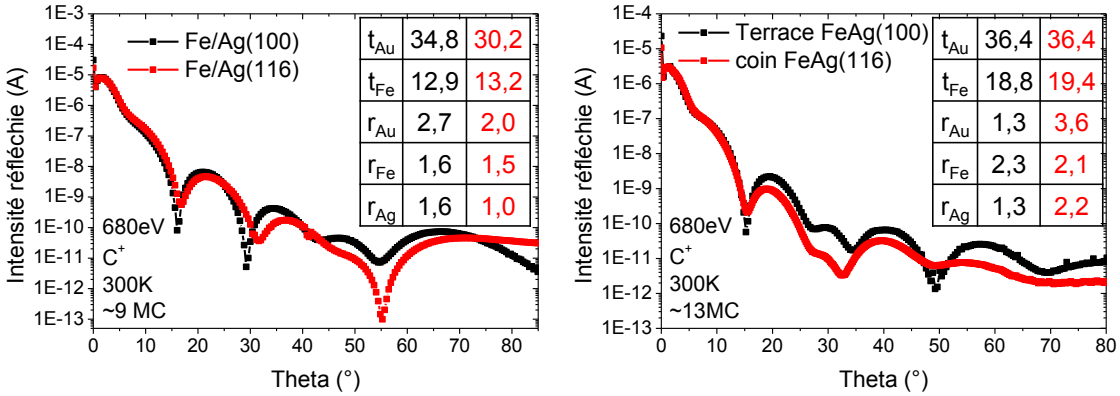


FIGURE 4.12 – Comparaison des réflectivités obtenues pour un échantillon de 9 MC ayant un substrat vicinal d'Ag(116) (rouge), et pour un échantillon ayant un substrat plat d'Ag(100) (noir), à gauche. A droite, comparaison des réflectivités obtenues pour un échantillon d'environ 13 MC sur un substrat plat(noir) et vicinal faisant partie d'un coin (rouge). Le tableau donne les résultats en Å de l'analyse quantitative pour les épaisseurs t et rugosités r.

Alignement

A chaque période de mesures de rayonnement synchrotron il a été nécessaire de réaligner l'ensemble RESOXS sur la ligne de lumière. L'alignement de nombreux éléments était donc vérifié à chaque fois afin d'éviter au maximum des artefacts de mesures. L'alignement des marches de l'échantillon par rapport au plan de diffraction, ainsi que l'alignement du champ magnétique par rapport aux marches et au plan de diffraction est donc important. Des mesures MOKE ont montré qu'un léger désalignement pouvait modifier la forme des courbes d'hystérésis mesurées [10].

Pour parfaire l'alignement, on regarde l'asymétrie obtenue en configuration Πlon qui devrait être nulle (tableau 3.4) puisqu'on est à saturation. La figure 4.13 montre les asymétries obtenues en configuration Πlon pour trois épaisseurs différentes. Pour une épaisseur de 4.2 MC le signal présente un pic à 45° qui est dû au fait qu'en polarisation π les réflectivités chutent autour de 45°, induisant un rapport signal/bruit plus grand. Ce pic est essentiellement un artéfact de mesures. Pour les épaisseurs de 5.9 et 8.6 monocouches l'asymétrie est bien réelle, ce qui indique un désalignement du champ magnétique avec le plan de diffraction. L'analyse quantitative montre que l'angle γ est d'environ 5° pour 5.9MC et 10° pour 8.6MC. Ce désalignement est plus grand pour l'échantillon contenant l'épaisseur de 8.6 MC qui a été sondé à l'ESRF, car le bloc d'aimantation est mobile par rapport au plan de diffraction, ce qui n'est pas le cas pour le diffractomètre RESOXS.

On peut également vérifier, d'une manière similaire, l'alignement entre les marches et le plan de diffraction en s'assurant que pour une épaisseur où l'axe de facile aimantation est parallèle aux marches l'asymétrie en configuration $\Pi tranrem$ est

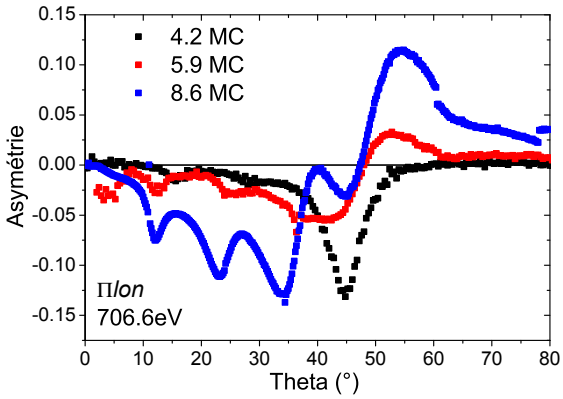


FIGURE 4.13 – Asymétries obtenues en configuration Π*lon*

la même que l'asymétrie en configuration Π*tran* [4]. La figure 4.14 montre le cas ou l'alignement est presque parfait. Ces mesures permettent d'ajuster et de donner une barre d'erreur au plus de 5° sur l'angle γ qu'on pourra trouver lors de l'analyse quantitative.

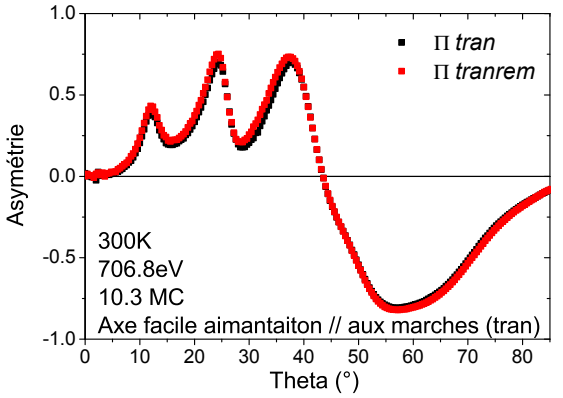


FIGURE 4.14 – Asymétries obtenues en configuration Π*tran* et Π*tranrem* à température ambiante pour 706.8eV pour une épaisseur de 10.3 monocouches où l'axe de facile aimantation est parallèle aux marches

En plus de l'alignement de la direction des marches par rapport au plan de diffraction et au champ appliqué, leur orientation est importante. En effet, si on tourne les marches de 180°, la figure 4.15 montre que les asymétries *Hpmlon* obtenues à basse température pour un axe de facile aimantation perpendiculaire aux marches sont différentes avec un signal non nul à grands angles. D'après le chapitre 3, on sait qu'une asymétrie non nulle à grands angles est dûe à une composante magnétique hors du plan. Le fait que ce signal change de signe avec une amplitude équivalente,

4. En effet si les marches ne sont pas parfaitement alignées transversalement par rapport au plan de diffraction, à rémanence l'aimantation étant le long des marches, il y aura une réduction de la composante transverse et donc une réduction de l'amplitude de l'asymétrie.

indique à priori un changement de signe de cette composante hors du plan. Ceci peut être expliqué par le fait qu'à faibles épaisseurs de Fe, à basse température, l'aimantation n'est alors pas dans le plan de l'échantillon, mais dans le plan des marches. Selon l'orientation des marches, alors que le champ magnétique est appliquée initialement dans la même direction, la composante hors du plan va être orientée vers la surface lorsque la direction [110] sort à l'arrière de la feuille (schéma bleu de la figure 4.15), ou bien orientée vers le substrat lorsque cette direction [110] pointe vers nous (schéma rouge).

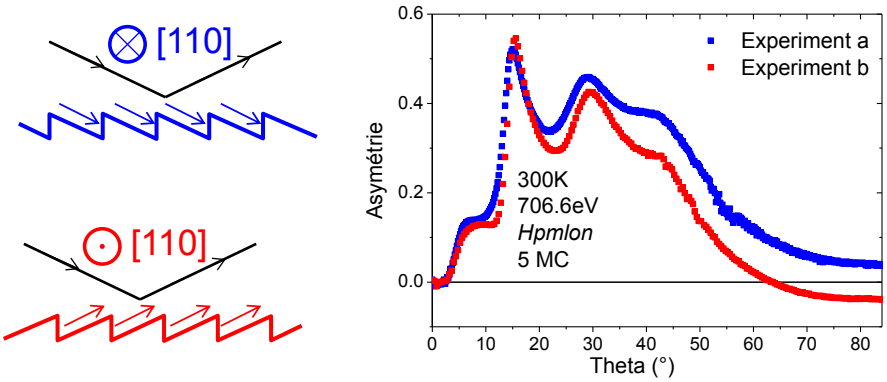


FIGURE 4.15 – Asymétries obtenues en configuration *Hpmlon* pour deux orientations des marches différentes : en bleu la direction [110] sort de la feuille, tandis qu'en rouge la direction [110] vient vers nous

Nous venons de montrer comment la comparaison de signaux mesurés pour différents types d'échantillons permettait de valider l'utilisation d'un coin dans nos conditions de mesures. Nous avons également montré, en collectant des données dans différentes configurations expérimentales, l'effet de l'orientation des marches sur la forme du signal d'asymétrie. Cela nous a permis d'essayer d'améliorer l'ajustement de l'azimuthe. Toutefois, l'absence d'un moteur pour effectuer ce mouvement nous a uniquement permis de réduire au maximum des effets non voulus. L'étude de ces différentes configurations expérimentales permet également de suivre l'évolution de l'aimantation pour différentes épaisseurs et températures.

Composante magnétique hors du plan

Sur la figure 4.16, qui présente les asymétries *Hpmlonrem* obtenues pour différentes épaisseurs à 20K, on voit une forte évolution de l'asymétrie à grands angles, c'est-à-dire une évolution de la composante hors du plan. La couleur de la légende permet de regrouper les épaisseurs par échantillons : la couleur rouge correspond aux mesures effectuées en février 2013 tandis que la couleur bleu correspond aux mesures effectuées en mai 2012. L'analyse qualitative permet seulement de dire qu'il y a une composante hors du plan et que celle-ci évolue avec l'épaisseur.

Si pour chaque épaisseur présentant un axe de facile aimantation perpendiculaire aux marches avec une composante hors du plan, on compare ces asymétries obtenues à rémanence d'un champ appliqué parallèle à l'axe de facile aimantation *Hpmlonrem*

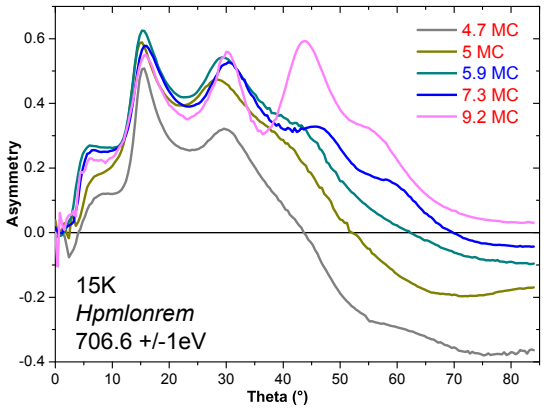


FIGURE 4.16 – Asymétries obtenues en configuration *Hpmlonrem* ou *Hpmtranrem* pour différentes épaisseurs de Fe à basse température (15K). Les couleurs de la légende permettent de regrouper les différentes épaisseurs par échantillon

avec les asymétries obtenus à saturation *Hpmlon*, on s'aperçoit que ces asymétries sont différentes uniquement pour les épaisseurs de 4.2, 5, 5.9, et 6.4 monocouches de Fe. La figure 4.17 montre les asymétries à saturation (noir) et à rémanence (rouge) en configuration *Hpmlon* pour des épaisseurs de 4.2, 5.9, 7.3, et 9.2 monocouches. Cette différence de comportement en fonction de l'épaisseur du Fe est probablement due à la transition de réorientation de spin qui a lieu pour de faibles épaisseurs, jusqu'à 5 MC (d'après les mesures MOKE et les hystérésis). Pour des épaisseurs plus grandes, la différence entre les asymétries obtenues en *Hpmlon* et *Hpmlonrem* est petite ou inexistante, et la composante hors du plan est probablement due aux marches et ne peut être saturée le long du champ magnétique appliqué.

Afin d'étudier comment l'aimantation, après avoir été forcée de s'aligner selon un axe à 90° de l'axe de facile aimantation revenait ou non le long de cet axe de facile aimantation, des mesures en configuration *Hpmtranrem* ont été effectuées. La figure 4.17 montre les asymétries expérimentales obtenues en configuration *Hpmlonrem* (ou *Cpmlonrem*, rouge) et en configuration *Hpmtranrem* (bleu) pour des épaisseurs de 4.2, 5.9, 7.3 et 9.2 monocouches de Fe. Si l'aimantation revenait complètement selon l'axe de facile aimantation après avoir relaché le champ appliqué dans la direction de "moins facile" aimantation, ces asymétries devraient être similaires, ce qui n'est pas le cas. En effet, le signal obtenu en *Hpmtranrem* est toujours plus petit que celui mesuré en *Hpmlonrem* ou *Cpmlonrem*. De plus, en configuration Π*tranrem* (figure 4.18) l'asymétrie est non nulle, ce qui signifie qu'il y a une composante de l'aimantation transverse, c'est à dire parallèle aux marches.

Cette composante magnétique transverse peut être interprétée comme la présence de domaines dont l'aimantation n'a pas tournée selon l'axe de facile aimantation, et est restée parallèle aux marches selon l'axe de moins facile aimantation (voir prochain paragraphe). Nous verrons dans l'analyse quantitative que ces domaines et cette composante hors du plan peuvent être quantifiés.

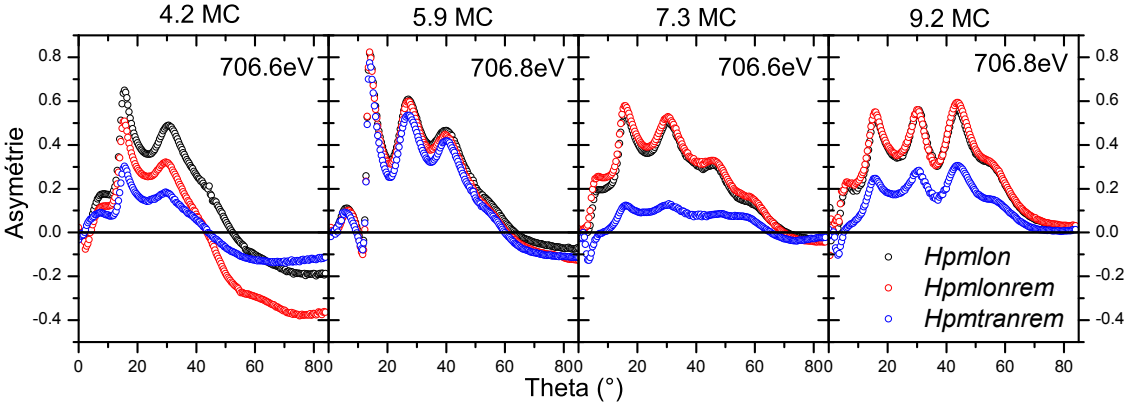


FIGURE 4.17 – Asymétries obtenues en configuration *Hpmlon* (point noir), *Hpmlonrem* (point rouge), et *Hpmtranrem* (point bleu) pour 4.2, 5.9, 7.3, et 9.2 monocouches de Fe à basse température (15K)

Présence de domaines magnétiques

A basse température, pour les épaisseurs où l'axe de facile aimantation est perpendiculaire aux marches, c'est-à-dire selon la direction longitudinale, nous venons de montrer qu'une composante transverse de l'aimantation persiste après avoir appliqué un champ magnétique selon l'axe de moins facile aimantation. La figure 4.18 montre que l'asymétrie Π*tranrem* évolue avec l'épaisseur du film de Fe.

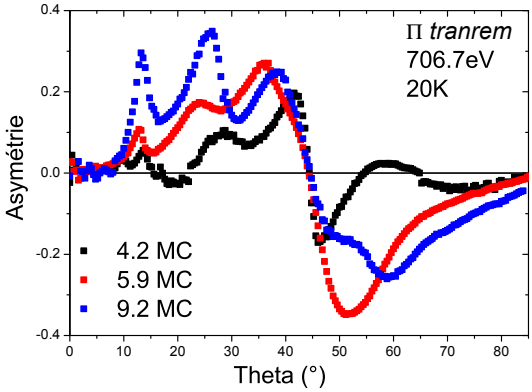


FIGURE 4.18 – Asymétries obtenues en configuration Π*tranrem* à basse température (20K) pour différentes épaisseures de Fe : 4.2 (noir), 5.7 (rouge) et 9.2 monocouches (bleu)

La présence d'une composante parallèle aux marches alors que l'axe de facile aimantation est perpendiculaire à celles-ci peut être expliquée par deux comportements de l'aimantation. Soit l'aimantation trouve une position d'équilibre selon un axe entre parallèle et perpendiculaire aux marches, c'est à dire tournée d'un angle γ (figure 4.19 a), ce qui est peu probable étant donné qu'on a vérifié que l'axe de facile aimantation est perpendiculaire aux marches, et que la direction parallèle aux

marches est un axe de moins facile aimantation. Soit ce signal est dû à l'addition d'une aimantation entièrement perpendiculaire aux marches, et d'une aimantation alignée selon les marches (figure 4.19 b). Cette dernière explication est la plus plausible et implique qu'il y a des domaines magnétiques présents au sein de l'échantillon (figure 4.19 c), et que ces domaines ont une taille inférieure à celle du faisceau qui est de quelques centaines de micromètres [7]. Des tentatives pour observer des domaines sur ces échantillons par imagerie d'effet Kerr et microscopie à force atomique n'ont pas abouties.

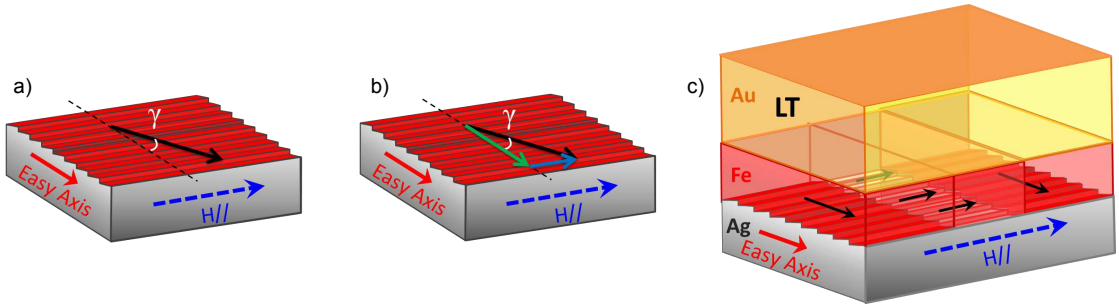


FIGURE 4.19 – Modèle d'aimantation à rémanence d'un champ parallèle aux marches, c'est à dire perpendiculaire à l'axe de facile aimantation. a) Cas d'une rotation homogène de l'aimantation. b) Cas d'une décomposition de l'aimantation net en une composante perpendiculaire et parallèle aux marches. c) Schéma de domaines magnétiques parallèle et perpendiculaire aux marches

Evolution entre température ambiante et basse température

Les mesures ont principalement été effectuées à basse température, puisque c'est aux basses températures qu'on observe des oscillations de l'aimantation ainsi qu'une composante hors du plan. Cependant des mesures à température ambiante ont également été réalisées pour pouvoir comparer les résultats. A saturation et pour des épaisseurs de Fe assez grandes, lorsqu'il n'y a pas de composante hors du plan, la figure 4.20 montre que les asymétries expérimentales obtenues en configuration $Cpmlon$ et $\Pi tran$ sont quasiment les mêmes à température ambiante et basse température. Les légères différences qu'il peut y avoir font parties de la barre d'erreur expérimentale, et sont du même ordre de grandeur qu'un bon accord entre expérience et théorie en analyse quantitative.

En revanche, pour des épaisseures de Fe plus petites, l'aimantation hors du plan à basse température induit des différences entre température ambiante et basse température, qui sont petites pour les mesures à saturation, mais beaucoup plus importantes pour les mesures effectuées à rémanence. La figure 4.21 montre cet effet pour une épaisseur de 5.9 MC. La composante hors du plan n'est pas présente à température ambiante, petite à basse température sous un champ appliqué longitudinalement, et plus grande à rémanence. On peut également voir que la proportion de domaines avec une aimantation demeurant suivant l'axe de moins facile aimantation, qu'on peut déduire des mesures effectuées en $\Pi tranrem$, est nulle à température

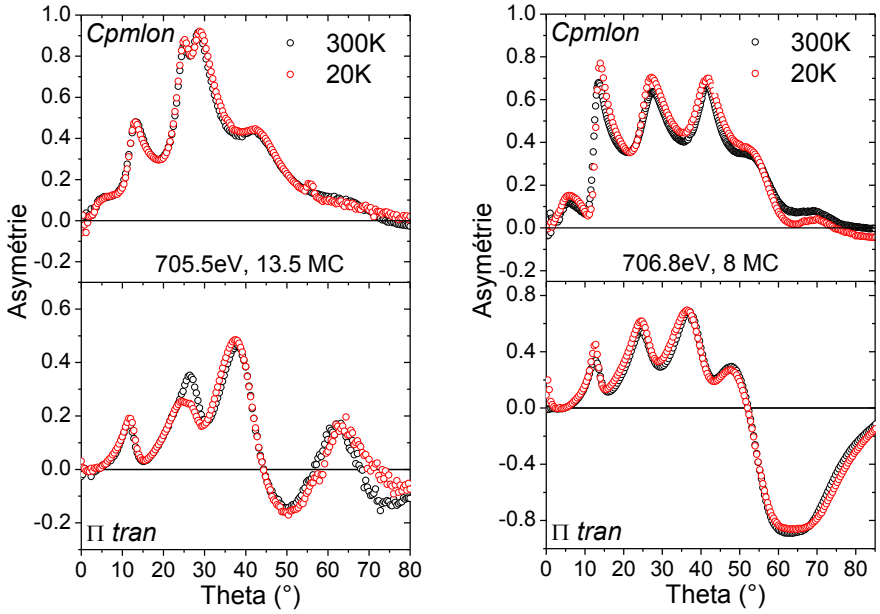


FIGURE 4.20 – Comparaison des asymétries obtenues en configuration *Cpmlon* (en haut) et Π*tran* (en bas) à basse température (20K, rouge) et température ambiante (300K, noir) pour différentes épaisseures de Fe : 13.5 monocouches à gauche, et 8 monocouches à droite

ambiante et augmente lorsque la température diminue. Le signal d'asymétrie observé en configuration Π*tranrem* à 300K est inférieur à 10% et dû au désalignement des marches avec le plan de diffraction (4.13).

4.2.3 Conclusions

L'analyse qualitative permet aussi bien d'ajuster et de vérifier l'effet de certains paramètres expérimentaux, que de prédire les principales caractéristiques du comportement de l'aimantation. Pour ce qui est du réglage des paramètres expérimentaux, nous venons de montrer qu'en comparant différentes courbes entre elles, on peut affirmer, que l'étude par réflectivité d'une "tranche" du coin est possible et que la haute densité des marches du substrat n'induit pas un effet de lissage des courbes de réflectivité. De plus, nous avons mis en avant l'importance de l'alignement et de la direction des marches par rapport au plan de diffraction, puisque les résultats se trouvent modifiés lorsque l'alignement n'est pas parfait, ce qui va induire des composantes de l'aimantation additionnelles, ou bien un comportement de l'aimantation différent.

Cette analyse qualitative permet également de donner les principales caractéristiques de l'aimantation au sein du film de Fe. Comme nous l'avons montré dans le chapitre 3, en regardant seulement la forme de l'asymétrie pour différentes configurations, on peut estimer qualitativement l'évolution des différentes composantes de l'aimantation en fonction de la température ou de l'épaisseur. Ainsi nous avons montré qu'il existe une composante magnétique hors du plan ainsi que des do-

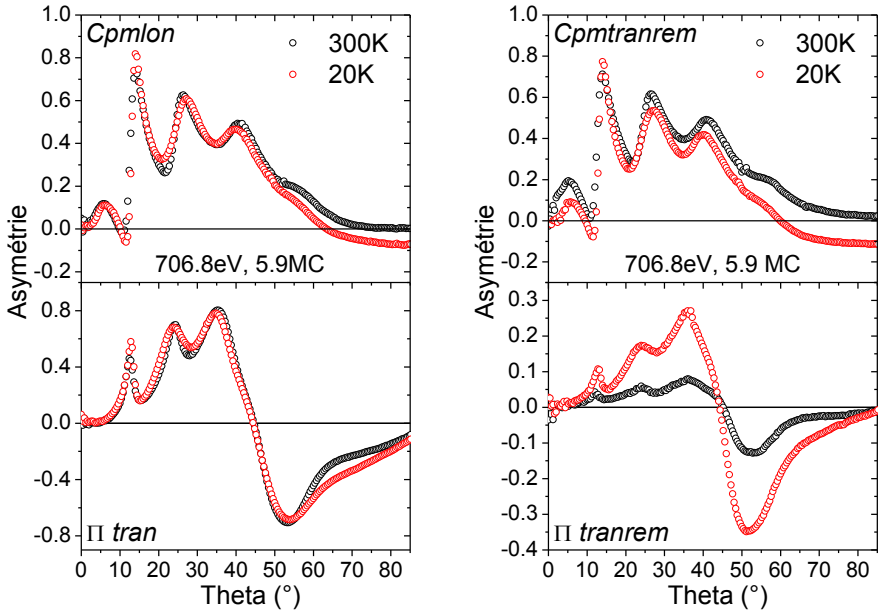


FIGURE 4.21 – Comparaison des asymétries obtenues en configuration *Cpmlon*, Π*tran*, *Cpmtranrem*, et Π*tranrem* à basse température (20K, rouge) et température ambiante (300K, noir) pour une épaisseur de 5.9 MC de Fe sondée à une énergie de 706.8eV

maines magnétiques soit parallèles aux marches, soit perpendiculaires à celles-ci, bien qu'un axe de facile aimantation existe. Ces deux résultats dépendent de l'épaisseur de l'échantillon et de la température et permettront d'avoir une idée du modèle théorique à comparer à l'expérience lors de l'analyse quantitative qui sera développée dans la prochaine partie.

4.3 Analyse quantitative

Tout d'abord, on analyse la structure, afin de déterminer les épaisseurs réelles des différentes couches sondées lors de l'expérience. Cette première partie permet de donner une corrélation entre l'épaisseur et l'axe de facile aimantation. Ensuite une analyse quantitative de la distribution d'aimantation en profondeur est effectuée. Dans un premier temps on montrera les résultats obtenus à saturation pour deux champs magnétiques appliqués parallèlement ou perpendiculairement à l'axe de facile aimantation. Puis on présentera les propriétés magnétiques déduites de l'accord entre la courbe expérimentale et la simulation pour des échantillons étant à rémanence d'un champ magnétique appliqué soit parallèlement, soit perpendiculairement à l'axe de facile aimantation. Enfin, la dernière partie regroupera l'ensemble des résultats en fonction des épaisseurs et des températures.

4.3.1 Structure

Au cours de cette étude, nous avons été ammené à étudier 13 épaisseurs de Fe différentes par SXRMR dans le but de sonder les modifications des configurations magnétiques en fonction de l'épaisseur. Dans cette partie, nous présentons dans un premier temps, les mesues de réflectivités effectuées à 680eV pour déterminer les épaisseurs de Fe de ces 13 "échantillons". Nous donnons ensuite, pour chaque épaisseur, l'axe de facile aimantation en fonction de la température.

Réflectivités à 680eV

La structure de base des échantillons est dérivée des mesures à 680eV effectuées au synchrotron pour chaque déplacement des échantillons perpendiculairement au plan de diffusion, pour sonder différentes épaisseurs. Pour chaque échantillon, le modèle de départ est constitué d'une couche d'Au de 15 monocouches, c'est à dire 30.59Å, ayant une densité de $19.32 g.cm^{-3} = 0.098 mol.cm^{-3}$; une couche de Fe d'épaisseur entre 4 et 14 monocouches (distance intercouche : 1.143325Å) avec d'une densité de $7.874 g.cm^{-3} = 0.141 mol.cm^{-3}$; et une couche d'Ag ayant une épaisseur infinie et une densité de $10.50 g.cm^{-3} = 0.097 mol.cm^{-3}$. Les rugosités initiales à la surface de l'Ag, du Fe et de l'Au sont prises égales à 2Å. L'affinement des courbes expérimentales conduit à un très bon accord expérience-simulation qui est montré pour tous les échantillons sondés sur la figure 4.22. Les épaisseurs de Fe sont données à droite en monocouches (MC), et le code couleur qui permet de regrouper les épaisseurs par échantillons est donné dans le tableau 4.1

Les épaisseurs de la couche d'Au et les rugosités pouvant varier d'un échantillon à l'autre, le tableau 4.1 donne les épaisseurs de la couche d'Au, ainsi que les rugosités trouvées pour les différents échantillons moyennées sur toutes les épaisseurs de Fe d'un même échantillon. La même analyse est effectuée pour les mesures obtenues à

Echantillons (MC)	**11-18**	**5-12**	2-10(a)	8/9	9/13(100)	**2-10(b)**
Epaisseur Au (Å)	36.2 ±0.5	39.1 ±1	35.7 ±1.5	35.3 ±0.6	36.5 ±0.2	32.3 ±2.1
Rugosité Au (Å)	3.6 ±0.5	2.8 ±0.8	3.0 ±0.5	2.7 ±0.1	1.4 ±0.2	3.1 ±0.9
Rugosité Fe (Å)	2 ±0.7	2.0 ±0.4	1.7 ±0.6	1.3 ±0.3	2.2 ±0.1	1.8 ±0.7
Rugosité Ag (Å)	2.2 ±0.7	1.5 ±0.7	1.4 ±0.8	1.5 ±0.3	1.2 ±0.1	1.1 ±0.4

TABLE 4.1 – Tableau récapitulatif des différentes épaisseurs d'Au et des rugosités à la surface de l'Au, du Fe, et de l'Ag pour les différents échantillons sondés (MC= monocouches)

basse température (20K +/-10K), et les mêmes caractéristiques structurales à ±1Å près sont retrouvées.

A petits angles : $\theta < 5^{\circ}$ l'accord entre le modèle et l'expérience n'est pas très bon, et cet accord peut être encore plus mauvais à basse température. Pour ces tout petits angles au voisinage de l'angle critique on est peu sensible à la structure de l'empilement mais essentiellement à la définition de la première couche [5]. A basse

5. Dans le domaine des rayons X mous, l'angle critique est un ordre de grandeur plus élevé

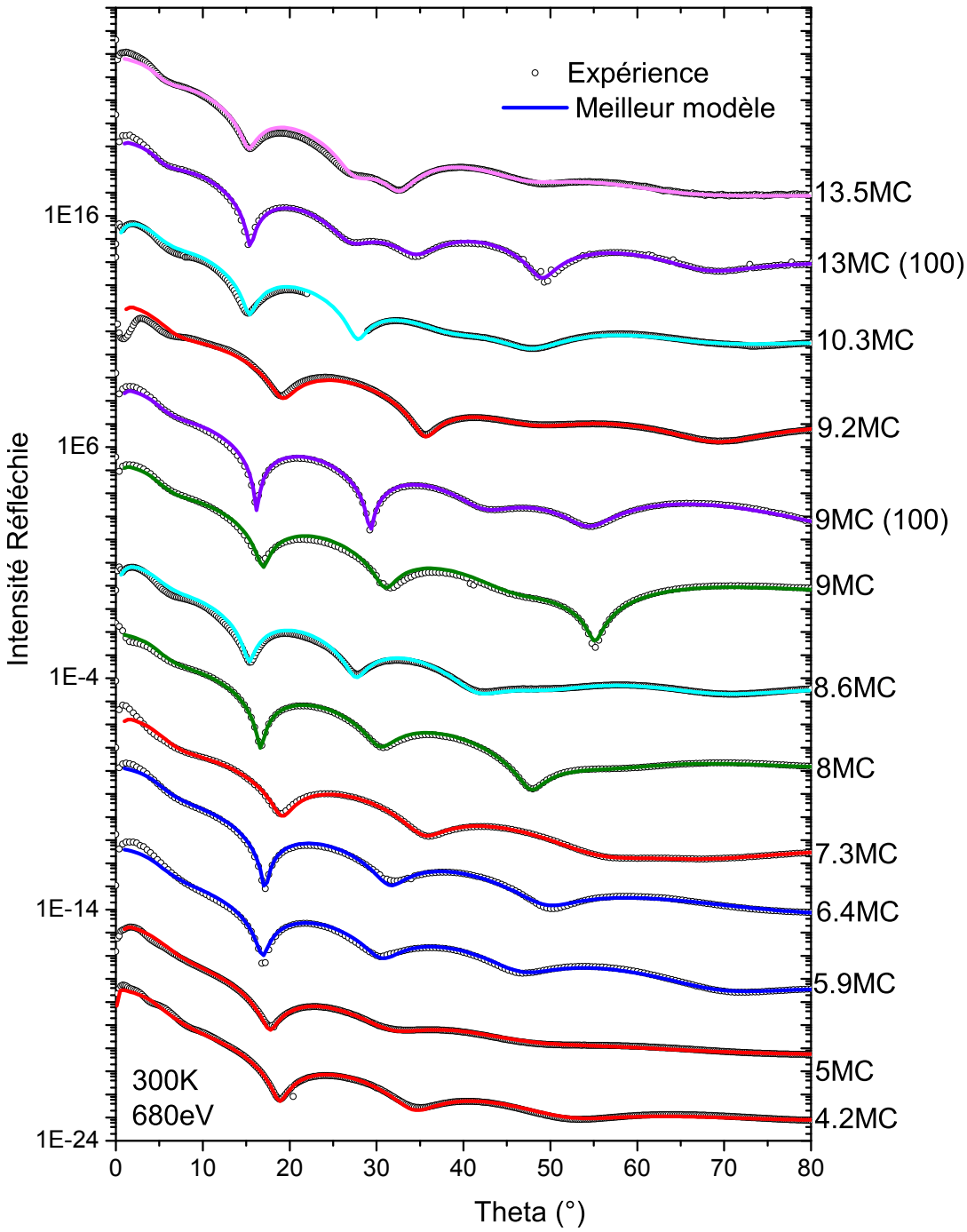


FIGURE 4.22 – Courbes de réflectivités expérimentales obtenues à température ambiante (300K) pour une énergie de 680eV (point noir) et meilleurs modèles théoriques permettant de fitter les données expérimentales (lignes). Les couleurs sont des repères pour regrouper les épaisseurs provenant d'un même échantillon : rouge = 2-10ML (b), bleu = 2-10ML (a), vert= 8 et 9ML, cyan = 5-12ML, violet=9 et 13ML (100), et rose = 11-18ML (MC=monocouches)

que dans les rayons X durs. D'autre part à la différence de mesures en rayons X durs, on observe rarement un plateau de reflectivité sur une gamme angulaire suffisante pour ajuster les courbes calculées et expérimentales.

température, une couche de contamination d'éléments légers, due à un vide initial insuffisant peut modifier la réflectivité aux petits angles. La mise à l'échelle des deux courbes n'a donc pas été réalisée en se concentrant uniquement sur la région 0-5° mais aussi en étant attentif à l'accord dans la région 5-15°. Cette différence d'approche avec un fit de rayons X durs explique certains petits désaccords. Quelques désaccords plus importants peuvent être attribués à un léger désalignement.

Sur la figure 4.22, on peut souligner que parmi les oscillations observées, les deux ou trois premières sont principalement dues à la couche d'Au. Ceci explique le fait que la position du premier creux entre 15° et 20° n'est pas la même pour toutes les épaisseurs. En effet cette différence est due au fait que l'épaisseur d'Au n'est pas la même pour tous les échantillons. Par exemple, pour les couches rouges, le premier pic est à un angle supérieur par rapport aux autres courbes, ce qui signifie que la couche d'Au est moins épaisse. C'est bien ce que donne l'analyse quantitative puisque le modèle donne une épaisseur de 32Å tandis que tous les autres échantillons ont une épaisseur d'Au supérieure à 35Å. Cette différence de position des pics s'atténue quand l'épaisseur de la couche de Fe devient plus importante et aux très grands angles où les rugosités d'interfaces peuvent modifier de manière plus significative la reflectivité.

Axe de facile aimantation

Cette analyse structurale couplée aux mesures des cycles d'hystérésis présentés dans la figure 4.10 permet de déterminer l'axe de facile aimantation pour chaque épaisseur à basse température ou température ambiante. Pour des épaisseurs inférieures à 10 MC, quelle que soit la température, l'axe de facile aimantation est perpendiculaire aux marches (⊥). Pour 10.3 et 12.2 monocouches, l'axe de facile aimantation est parallèle aux marches à température ambiante et perpendiculaire à celles-ci à 20K. Enfin pour une épaisseur de 13.5 MC de Fe, l'axe de facile aimantation est parallèle aux marches quelle que soit la température[6].

Le tableau 4.2 donne l'axe de facile aimantation pour les 12 épaisseurs de Fe, à 300K et 20K.

	4.2	5	5.9	6.4	7.3	8	8.6	9	9.2	10.3	13.5
300K	⊥	⊥	⊥	⊥	⊥	⊥	⊥	⊥	⊥	//	//
20K	⊥	⊥	⊥	⊥	⊥	⊥	⊥	⊥	⊥	⊥	//

Table 4.2 – Tableau récapitulatif des différentes épaisseurs de Fe sondées pour des températures de 300K et 20K, permettant de connaitre l'axe de facile aimantation des échantillons en fonction du nombre de monocouches de Fe et de la température. Les épaisseurs de Fe sont données en nombres de monocouches.

6. les épaisseurs de 9 monocouches et 13 monocouches correspondant à l'échantillon terrasse sur un substrat plat d'Ag(100) ne sont pas prises en compte ici puisqu'il n'y a pas d'axe de facile aimantation.

Réflectivité magnétique

Grâce à la comparaison du modèle théorique de Parratt et de l'intensité moyenne expérimentale obtenue en configuration Hpm ou Cpm, la structure trouvée à 680eV est ensuite affinée aux énergies proches de la résonance pour lesquelles les mesures magnétiques ont été effectuées, dans les barres d'erreurs déterminées à 680eV. La différence dans l'épaisseur de Fe déduite à 680eV et celle déduite proche de 706.6eV est d'environ -1Å. Comme expliqué dans le chapitre 3, cette différence est due au fait que les facteurs résonants F' et F'' dépendent fortement de l'énergie. Les épaisseurs nominales données aux différents échantillons sont une moyenne des analyses structurales effectuées à 680eV, proche de la résonance, à 20K et à température ambiante.

4.3.2 Magnétisme des échantillons à saturation magnétique

Dans cette partie on s'intéressera uniquement aux mesures effectuées sous champ magnétique non nul. Dans la plupart des cas, le champ magnétique applicable sera suffisamment fort pour qu'on puisse être à saturation, mais pour les plus faibles épaisseurs de Fe, malgré un champ appliqué de 1500G la saturation n'est pas atteinte. Par abus de langage on parlera quand même de mesures à saturation. Ces mesures ont été effectuées afin de sonder le profil magnétique en fonction de la profondeur pour étudier l'apparition d'éventuelles différences dues aux marches. Les analyses à saturation sont les plus faciles car on connait l'orientation moyenne des moments magnétiques : soit transverse lorsque l'aimantation est parallèle aux marches, soit longitudinale lorsque l'aimantation est perpendiculaire aux marches. Pour un champ magnétique perpendiculaire aux marches, on utilisera les configurations $Hpmlon$ ou $Cpmlon$ qui sont équivalentes puisqu'on est à saturation et dont le signal d'asymétrie dépend fortement de la composante magnétique longitudinale, tandis que pour un champ magnétique parallèle aux marches, seule la configuration $\Pi tran$ sera utilisée puisqu'elle n'est sensible qu'à la composante transverse de l'aimantation.

L'analyse des différentes épaisseur a permis de mettre en avant des comportements similaires. Pour chaque résultat commun à toutes les épaisseurs, seuls quelques exemples seront montrés, mais le même raisonnement, et le même résultat ont été obtenus pour toutes les épaisseurs. Les propriétés magnétiques d'un échantillon de Au/Fe/Ag(116) étant plus intéressantes à basse température qu'à température ambiante, les résultats montrés ici seront par défaut ceux effectués à 20K, sauf dans une partie qui sera consacrée aux mesures effectuées à 300K.

Dans un premier temps, l'importance de partager la couche de Fe en plusieurs sous-couches magnétiques pour des épaisseurs supérieures à 5 monocouches sera démontrée. On expliquera ensuite qu'il est nécesaire d'avoir une augmentation de l'aimantation aux interfaces d'Au et d'Ag pour avoir un bon accord entre les asymétries expérimentales et théoriques. Un troisième paragraphe montrera que le même comportement magnétique s'applique à température ambiante, et le quatrième paragraphe mettra en avant le fait que par SXRMR, on ne trouve pas de différences de modèle magnétique pour un échantillon de Fe sur un substrat plat d'Ag(100) et un

substrat vicinal d'Ag(116). Enfin, on parlera de la composante hors du plan présente en configuration *Hpmlon* ou *Cpmlon* pour des échantillons de faibles épaisseurs ayant un axe de facile aimantation perpendiculaire aux marches.

Partage magnétique de la couche de Fe

Lorsqu'on passe du modèle de Parratt au modèle magnétique, il faut donner des valeurs aux angles φ et γ, ainsi qu'à la norme de l'aimantation mms. Pour des mesures effectuées à saturation, on connait l'orientation de l'aimantation, et on peut donc fixer les valeurs des angles φ et γ à 0° en configuration *Hpmlon* ou *Cpmlon* et à 0° et 90° respectivement en configuration $\Pi tran$. Dans un premier temps, la couche de Fe est considérée comme une couche magnétique homogène avec un moment magnétique volumique de $2.1\mu_B$ (c'est à dire $mms = 1$). On compare ensuite l'asymétrie théorique obtenue à l'asymétrie expérimentale pour les deux configurations, et on ajuste les courbes en jouant sur la valeur de mms. La figure 4.23 montre l'accord obtenu pour le meilleur modèle entre la courbe expérimentale (point noir) et la courbe théorique (ligne rouge), pour les deux configurations *Hpmlon* et $\Pi tran$. Pour les deux épaisseurs les plus petites, on peut noter que l'asymétrie *Hpmlon* est non nulle aux grands angles, ce qui signifie qu'il y a une composante hors du plan, et un angle φ différent de 90°. Pour cette configuration, le paramètre φ sera donc également ajusté avec le paramètre mms (voir la section "faibles épaisseurs et composante hors du plan").

L'accord entre les asymétries expérimentales et les asymétries théoriques est très bon pour 4.2 MC en configuration *Hpmlon* et un peu moins bon pour les épaisseurs de 7.3 MC en configuration *Hpmlon* et 13.5 MC en configuration *Hpmlon* et $\Pi tran$. Cet accord n'est pas bon pour les épaisseurs de 4.2 MC et 7.3 MC en configuration $\Pi tran$. Afin d'améliorer les fits, on essaie de partager la couche de Fe en plusieurs couches magnétiques. La figure 4.24 montre les résultats d'un partage de la couche de Fe en 2, 3, 4, 5, 6, et 7 sous couches magnétiques. Si on partage en deux couches magnétiques (courbes rouges), le fit est quasiment inchangé quelle que soit la configuration et l'épaisseur de Fe sauf pour 7.3 MC en confituration *Hpmlon*, tandis que si on partage en trois couches magnétiques (courbes bleus), l'accord entre l'expérience et la théorie n'est pas amélioré pour 4.2 MC, mais est très bon pour 7.3 MC quelle que soit la configuration. Il est amélioré pour 13.5 MC, même si il n'est pas encore très bon. Pour une épaisseur de 4.2 monocouches, l'accord n'étant pas meilleur lorsqu'on divise la couche de Fe en plusieurs couches magnétiques, et ce pour les deux configurations, afin de minimiser le nombre de paramètres ajustables, on gardera le modèle à une couche magnétique. Pour les deux autres épaisseurs, on divise la couche de Fe en 4 sous-couches magnétique (courbes cyans) ce qui n'améliore pas le modèle, puis en 5 sous-couches (courbes vertes), ce qui n'améliore pas l'accord entre l'expérience et la théorie pour l'épaisseur de 7.3 MC, mais permet de mieux fitter les asymétries aux grand angles obtenues pour 13.5 MC de Fe. Afin de minimiser le nombres de paramètres ajustables, pour une épaisseur de 7.3 MC de Fe, on gardera le modèle avec 3 sous-couches magnétiques. Pour 13.5 MC de Fe, on essaie encore d'améliorer l'accord entre les asymétries expérimentales et théoriques en divisant l'épaisseur de Fe en 6 et 7 sous-couches magnétiques (courbes roses et violettes res-

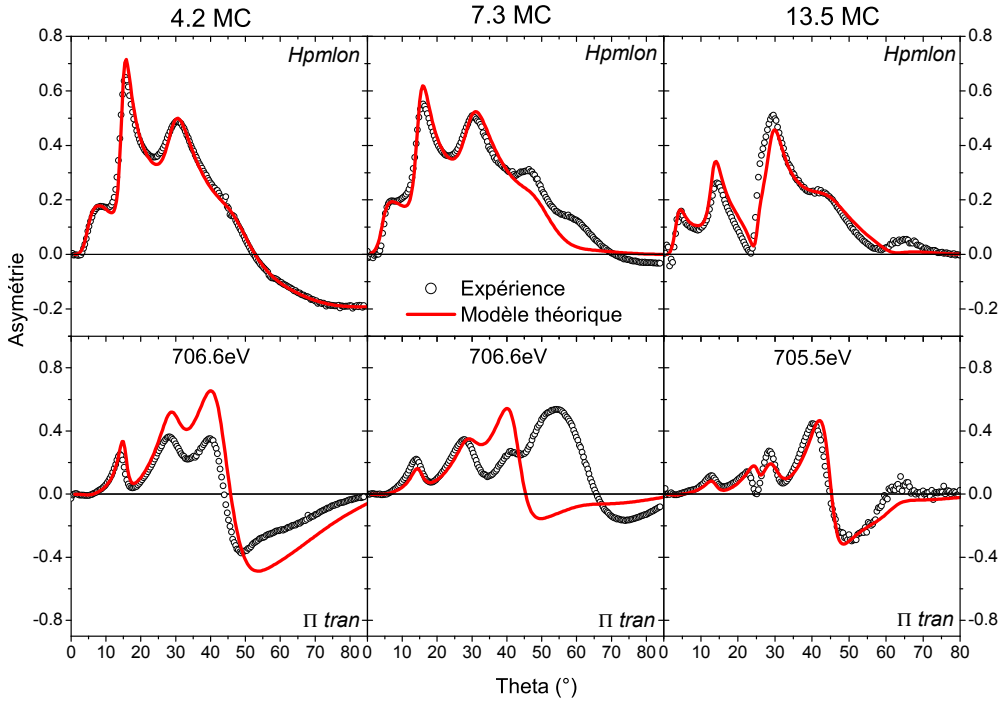


FIGURE 4.23 – Asymétries expérimentales (points noirs) et modèles théoriques pour une seule couche magnétique (ligne rouge) en configuration *Hpmlon* en haut, et Π*tran* en bas, pour une épaisseur de 4.2 MC de Fe à gauche, 7.3 MC de Fe au milieu, et 13.5 MC de Fe à droite.

pectivement). Les améliorations apportées par ces deux derniers modèles sont très faibles, et on garde donc le modèle avec 5 couches magnétiques.

Ce raisonnement est fait pour toutes les épaisseurs, et entre 5.8 et 10.3 monocouches de Fe, on considèrera trois couches magnétiques au sein du Fe, tandis que pour les épaisseurs supérieures, la film de Fe est divisé en 5 couches magnétiques, et que pour les épaisseurs inférieures, il n'y a pas besoin de partager le film de Fe qui est considéré comme une seule couche magnétique. Les épaisseurs des sous-couches magnétiques peuvent alors varier de 1.9 MC (lorsqu'on divise l'épaisseur de 5.8 MC en trois) à 3.2 MC (lorsqu'on divise l'épaisseur de 10.3 MC en trois)[7]. Un tableau récapitulatif pour toutes les épaisseurs est donné en annexe C.2. Les épaisseurs des couches magnétiques donnent la limite de résolution de la technique de SXRMR, qui est donc de 2-3 MC.

Les figures 4.23 et 4.24 mettent en évidence l'importance de l'utilisation de deux configurations différentes pour déterminer un modèle. En effet, pour l'épaisseur de 7.3 MC, si on n'avait que la configuration *Hpmlon*, on aurait choisi de partager la

7. On peut remarquer que pour un échantillon, les sous-couches magnétiques ont une épaisseur identique. Laisser libre l'épaisseur des sous-couches ne permet pas d'améliorer les ajustements obtenus. On suppose donc que le modèle avec trois sous-couches magnétiques d'épaisseurs identiques est le meilleur.

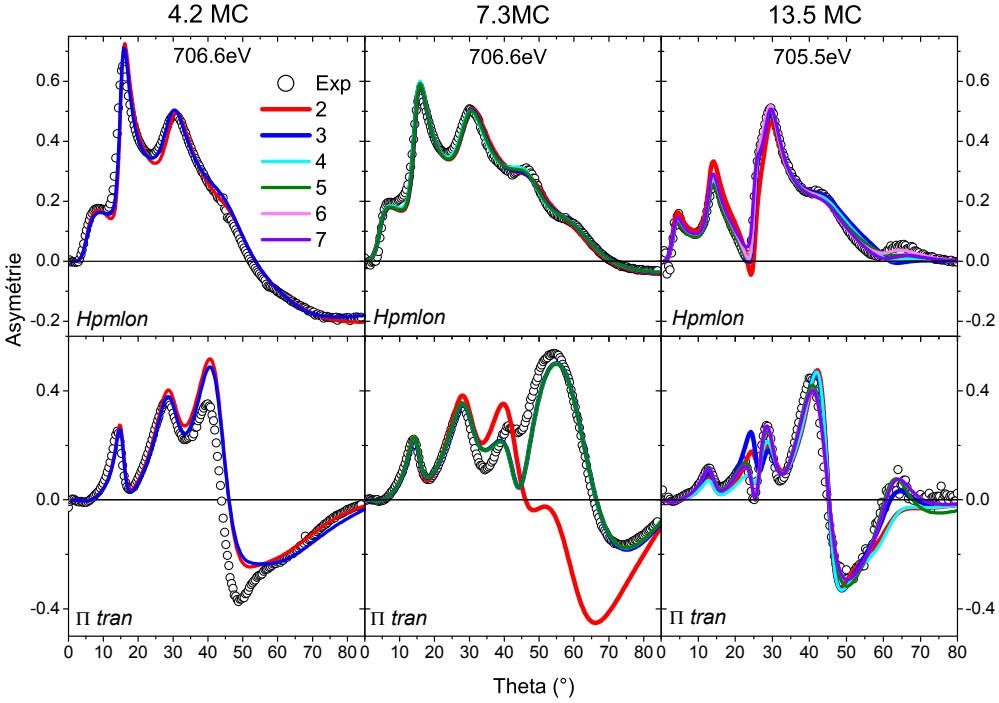


FIGURE 4.24 – Asymétries expérimentales (points noirs) et modèles théoriques pour 2 couches magnétiques (ligne rouge), 3 (ligne bleu), 4 (ligne cyan), 5 (ligne verte), 6 (ligne rose) et 7 (ligne violette), en configuration $Hpmlon$ en haut, et $\Pi tran$ en bas, pour une épaisseur de 4.2 MC de Fe à gauche, 7.3 MC de Fe au milieu, et 13.5 MC de Fe à droite.

couche de Fe en 2, alors qu'on voit clairement qu'en configuration $\Pi tran$ une division en trois sous-couches magnétiques est nécessaire.

Modèle magnétique à basse température

Dans le paragraphe précédent, nous avons montré pour les petites épaisseurs de 4.2 et 5 monocouches, que la couche de Fe ne nécessitait pas une division magnétique, c'est à dire que l'aimantation est constante (dans la limite de résolution de la technique SXRMR) au sein de la couche. En configuration $\Pi tran$, l'aimantation est le long des marches tandis qu'en configuration $Hpmlon$ l'aimantation est perpendiculaire aux marches avec une composante hors du plan de 26° pour 4.2 MC, et 6° pour 5 MC. Cette composante est due au fait que le champ appliqué n'est pas suffisant pour atteindre la saturation. L'aimantation est assez forte puisque $mms = 1.25$ et 1.33 pour 4.2 et 5 monocouches respectivement, c'est à dire une augmentation de l'aimantation de 25 à 33% par rapport à la valeur du cristal massif. Ces résultats découlent directement du fit des données expérimentales dont le résultat est montré figure 4.23 pour une épaisseur de 4.2 MC.

Pour des épaisseurs supérieures à 5.8 MC, il est nécessaire de diviser la couche de Fe en plusieurs sous-couches magnétiques. Cela signifie que la norme de l'aimantation

(les *mms*) est inhomogène au sein de la couche de Fe. La figure 4.25 illustre l'accord entre les courbes expérimentales et le meilleur modèle trouvé pour les épaisseurs de 5.9, 8, 9.2, et 13.5 MC, en configuration *Hpmlon* et Π*tran*. Les valeurs des *mms* permettant ce très bon ajustement sont données pour chaque épaisseurs et montrent qu'il y a une augmentation des *mms*, c'est à dire de l'aimantation aux deux interfaces d'Au et d'Ag [8].

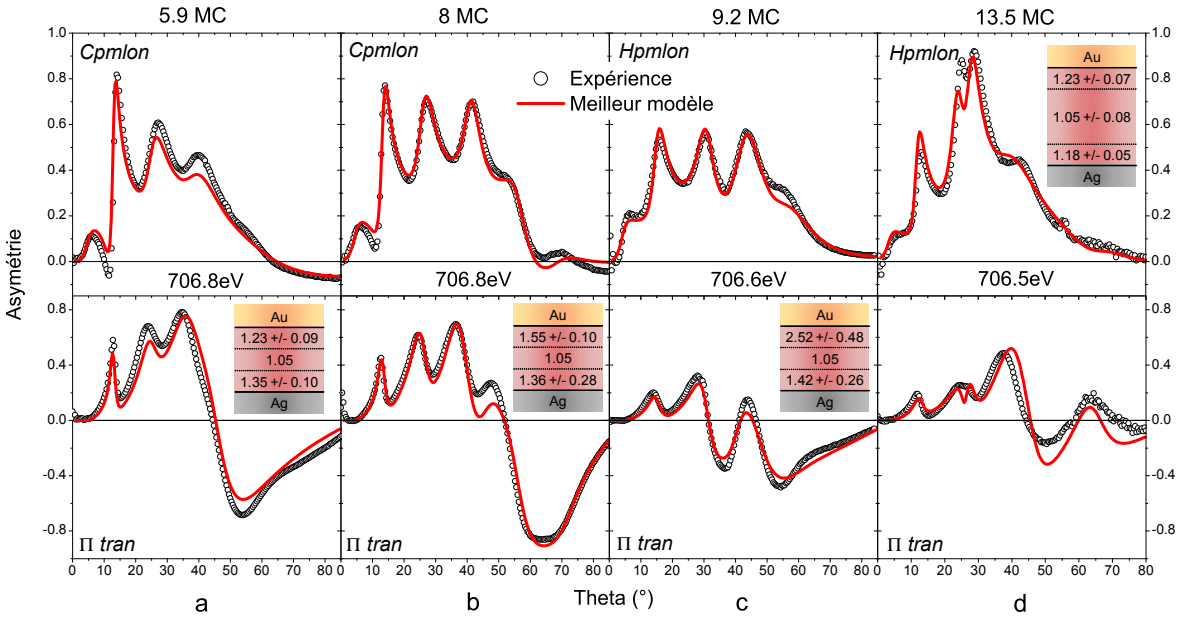


FIGURE 4.25 – Asymétries expérimentales (points noirs) et modèles théoriques (ligne rouge) à 706.8eV pour les épaisseurs de 5.9 et 8 MC (a et b respectivement), 706.6eV pour 9.2 MC (c), et 706.5eV pour 13.5 MC (d), pour des configurations *Cpmlon* ou *Hpmlon* (en haut) et Π*tran* (en bas), les valeurs des *mms* sont données pour chaque épaisseur

L'accord entre les courbes expérimentales et le meilleur modèle est bon dans les deux configurations *Cpmlon* et Π*tran*, ce qui montre la force de ce modèle. Cependant, pour vérifier l'unicité de celui-ci, on peut analyser les asymétries réalisées pour d'autres énergies, et comparer d'autres modèles aux courbes théoriques. La figure 4.26 montre les asymétries expérimentales et théoriques pour des épaisseurs de 8 et 13.5 monocouches à des énergies différentes de la figure 4.25, mais pour le même modèle théorique. L'accord entre les courbes expérimentales et les meilleures courbes théoriques est très bon dans les deux configurations, ce qui confirme le modèle venant directement de l'analyse avec une augmentation de l'aimantation dans les 2-3 MC près des interfaces d'Au et d'Ag.

Nous avons également testé des modèles différents. La figure 4.27 montre différents modèles de *mms* pour une épaisseur de 13.5 MC à 705.5eV en configuration *Cpmlon*

8. On remarque que pour 9.2 MC, l'augmentation près de l'Au est très forte avec un moment magnétique de $5.3\mu_B$. Cette très forte augmentation ne peut être physique, mais est impossible à réduire si on veut un bon fit. La technique de SXRMR n'est pas très sensible à la valeur des moments magnétiques mais à leur variation. Ceci peut expliquer un si grand *mms*.

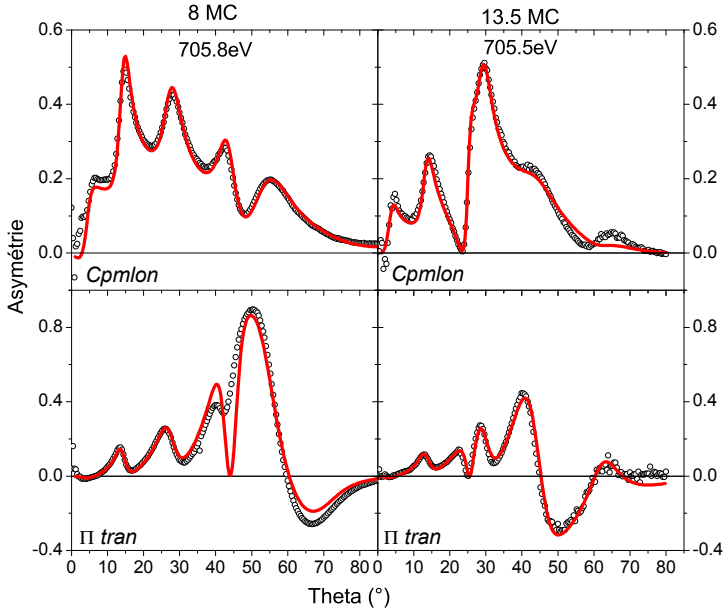


FIGURE 4.26 – Asymétries expérimentales (points noirs) et modèles théoriques (ligne rouge) à 705.8eV pour l'épaisseur de 8 MC (gauche), et 705.5eV pour 13.5MC (droite), en configuration *Cpmlon* (en haut) et Π*tran* (en bas)

(en haut) et Π*tran* (en bas), par rapport à la courbe expérimentale. La légende permet de connaitre les *mms* du modèle : par exemple, la courbe rose correspond au modèle 0.8-1-0.8, ce qui signifie que les *mms* près de l'Au et de l'Ag ont été réduit de 20%, tandis qu'au milieu ils sont à 1. Sur la figure 4.27 on voit clairement que les modèles avec une diminution près des interfaces ou une aimantation constante au sein la couche de Fe ne sont pas en bon accord avec l'expérience autour de $\theta = 30^\circ$ en configuration *Cpmlon* et $\theta = 60^\circ$ en configuration Π*tran*. Seules les courbes théoriques avec un modèle présentant une augmentation aux interfaces se rapprochent de la courbe expérimentale pour les deux configurations.

Les analyses effectuées pour chaque épaisseur montrent que cette augmentation de l'aimantation dans les 2-3 MC près des interfaces est présente quelle que soit l'épaisseur de Fe, et est d'environ 30%. Ce résultat qui découle directement des mesures expérimentales faites à basse température (20K) est en accord avec les prédictions théoriques faites à température nulle par Hasegawa *et al* [11]. C'est la première fois que le modèle théorique est vérifié aussi directement (voir partie Discussion).

Modèle magnétique à température ambiante

Afin de tester l'effet de la température sur le profil mesuré à basse température, nous avons également effectué des asymétries à température ambiante. L'analyse qualitative effectuée dans la section précédente a montré qu'à saturation, les asymétries à différentes températures étaient les mêmes pour des épaisseurs où il n'y a pas de composante hors du plan (figure 4.20). Le modèle magnétique dérivé de l'analyse

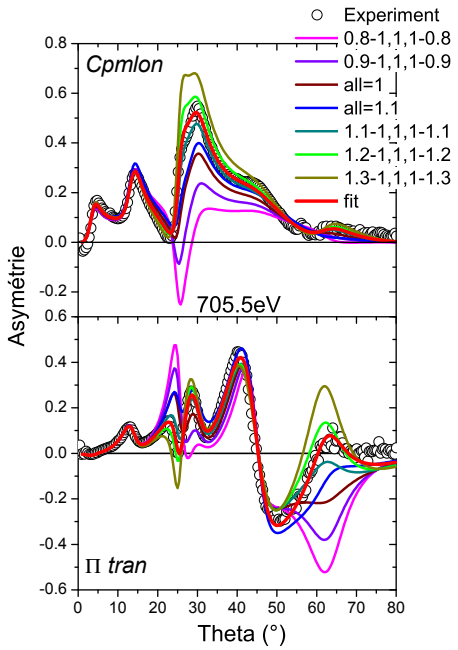


FIGURE 4.27 – Asymétries expérimentales (points noirs) et modèles théoriques pour une épaisseur de 13.5 MC à 705.5eV en configuration *Cpmlon* en haut et Π*tran* en bas.

quantitative est donc attendu très proche de celui trouvé pour des mesures à saturation. La figure 4.28 montre les asymétries expérimentales et théoriques pour des épaisseurs de 8 et 13.5 monocouches (à gauche et droite respectivement). Le meilleur accord est obtenu grâce à un modèle où l'aimantation est augmentée aux deux interfaces, et ce pour les deux configurations *Cpmlon* et Π*tran* pour deux énergies différentes et pour chaque épaisseur. Il n'y a donc pas de différence d'aimantation au sein du Fe entre 20K et 300K, pour des épaisseurs de Fe supérieures à 8 MC [9].

Pour des épaisseurs de Fe plus minces, où il y a une composante de l'aimantation hors du plan à basse température, les asymétries expérimentales obtenues à 20K et 300K sont similaires sauf à grands angles (figure 4.21). On prévoit donc un modèle de distribution de l'aimantation semblable avec des φ à ajuster entre température ambiante et basse température. La figure 4.29 montre l'accord entre les asymétries expérimentales obtenues à température ambiante à 706.8eV et le meilleur fit trouvé pour les deux configurations *Cpmlon* et Π*tran*. Le modèle associé au fit est identique à celui donné sur la figure 4.25 et confirme que l'aimantation augmente près des deux interfaces [10]. Afin de vérifier ce modèle, pour de faibles épaisseurs, nous avons essayé d'ajuster le modèle à l'expérience en contraignant les *mms* à être plus petits aux interfaces. La figure 4.29 montre que l'accord entre expérience et théorie, en confi-

9. D'autres expériences et analyses ont été effectuées sur des épaisseurs intermédiaires entre 8 et 13.5 monocouches, à température ambiante, et donnent le même résultat : une augmentation de l'aimantation près des interfaces.

10. On peut remarquer qu'à 300K il n'y a plus de composante hors du plan et les angles φ sont nuls.

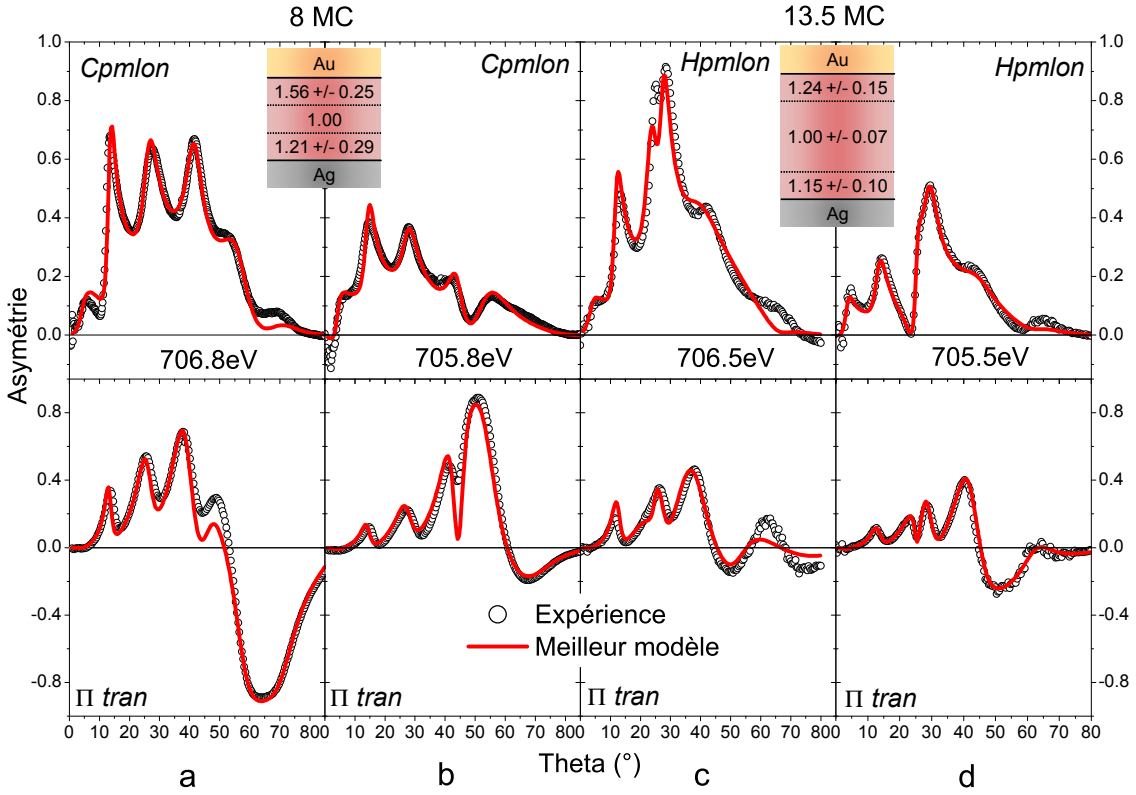


FIGURE 4.28 – Asymétries expérimentales (points noirs) et meilleurs modèles théoriques (courbe rouge) obtenus en configuration *Cpmlon* et Π*tran* à température ambiante pour une épaisseur de 8 MC (à gauche) à 706.8eV (a) et 705.8eV (b), et pour une épaisseur de 13.5 MC (à droite) pour des énergies de 706.5eV (c) et 705.5eV (d). Les valeurs moyennes des *mms* utilisés pour avoir les modèles théoriques sont données dans les deux tableaux insérés à la figure

guration *Cpmlon*, est aussi bon que le modèle avec augmentation de l'aimantation aux interfaces. Cependant en configuration Π*tran* le modèle d'une diminution de l'aimantation aux interfaces ne permet pas un ajustement parfait entre l'asymétrie expérimentale et théorique. Une fois encore l'importance de l'utilisation de plusieurs configurations magnétiques pour un même échantillon est mise en évidence. On vient donc de montrer que pour un échantillon de Au/Fe/Ag(116) à température ambiante, et à saturation, l'aimantation est augmentée aux deux interfaces, quelle que soit la direction du champ appliqué, l'épaisseur et l'axe de facile aimantation, comme à basse température.

Le modèle d'augmentation de l'aimantation aux interfaces est schématisé sur la figure 4.30 pour les deux axes de faciles aimantations. Cette augmentation peut trouver son origine dans la brisure de symétrie qu'induit l'interface (chapitre 2) ainsi qu'un phénomène d'hybridation des orbitales $3d$ du Fe avec les orbitales $5d$ de l'Au et de l'Ag. Par ailleur, nos expériences ont été faites pour un substrat vicinal, ce qui entraine un abaissement supplémentaire de symétrie à l'interface avec l'Ag. On peut

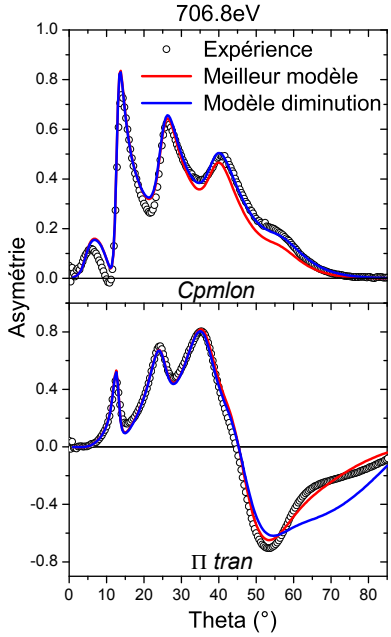


FIGURE 4.29 – Asymétries expérimentales (points noirs) et meilleurs modèles théoriques (ligne rouge) pour une épaisseur de 5.9 MC à 706.8eV en configuration *Cpmlon* en haut et Π*tran* en bas à 300K. En bleu, modèle où l'aimantation est contrainte à être plus petite près des interfaces qu'au centre

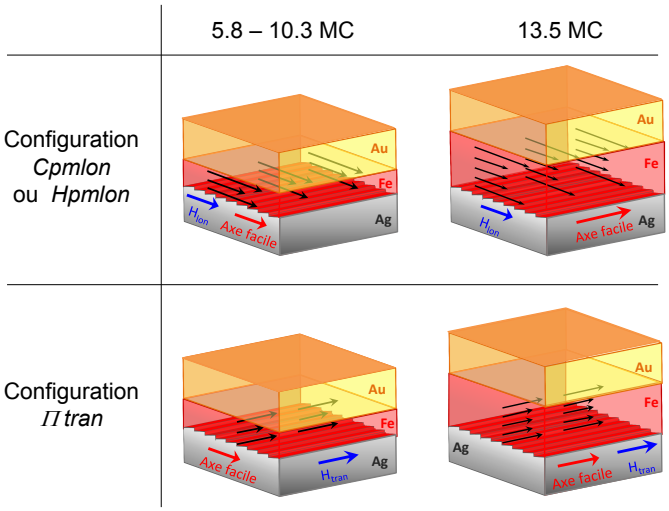


FIGURE 4.30 – Schéma de l'augmentation de l'aimantation magnétique aux interfaces en configuration *Hpmlon* ou *Cpmlon*, et Π*tran* pour un axe de facile aimantation perpendiculaire aux marches à gauche, c'est à dire pour des épaisseurs entre 5.8 et 10.3 monocouches de Fe divisés en 3 sous-couches magnétiques ; et parallèle aux marches à droite, c'est à dire pour une épaisseur de 13.5 MC divisé en 5 sous-couches magnétiques

donc s'interroger sur le rôle des marches quant à l'augmentation de l'aimantation par rapport aux interactions avec l'Ag d'un côté et l'Au de l'autre. Afin de voir l'influence des marches sur l'aimantation, des expériences de SXRMR ont été effectuées sur un échantillon Au/Fe/Ag(100) où le substrat peut être considéré comme plat.

Modèle magnétique pour un échantillon Au/Fe/Ag(100)

Les expériences de SXRMR ont été réalisées uniquement à tempérautre ambiante en configuration *Hpmlon* et Π*tran*, pour des épaisseurs de 9 et 13 monocouches. L'analyse de ces deux épaisseurs mène aux mêmes conclusions, et seuls les résultats obtenus pour une épaisseur de 13 MC seront montrés dans ce manuscrit. La figure 4.31 montre l'asymétrie expérimentale obtenue à 706.6eV en configuration *Hpmlon* et les asymétries théoriques obtenues pour un nombre de couches magnétiques différent (entre 1 et 7). Ces résultats montrent qu'en considérant trois couches d'épaisseurs identiques et d'aimantations différentes on reproduit l'essentiel de l'asymétrie. Cependant pour s'approcher au mieux de l'expérience aux grands angles, il est préférable de diviser la couche de Fe en 5 sous-couches magnétiques. L'aimantation n'est donc pas homogène au sein de la couche. Le modèle permettant

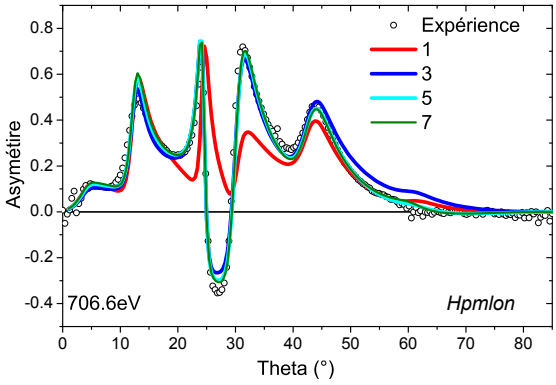


FIGURE 4.31 – Asymétrie expérimentale (points noirs) pour un échantillon de 13 MC de Fe sur un substrat plat d'Ag recouvert par 18 MC d'Au en configuration *Hpmlon* à 706.6eV et à température ambiante, et les courbes correspondant aux meilleurs modèles pour 1, 3, 5, et 7 couches magnétiques (rouge, bleu, cyan, vert, respectivement)

un bon accord donne des *mms* de l'Au vers l'Ag de : 1.43-1.01-1.05-0.80-1.17. Il y a donc une augmentation de l'aimantation aux deux interfaces. Ce modèle est vérifié pour la configuration Π*tran* et deux autres énergies. La figure 4.32 montre le bon accord entre les courbes expérimentales et les meilleurs modèles obtenus. La moyenne de tous les modèles ainsi que la renormalisation à 1 pour la couche magnétique du milieu [11] donne des *mms* de l'Au vers l'Ag de : 1.22-1.04-1.00-0.98-1.19, avec

11. La SXRMR étant sensible à la différence d'amplitude, mais pas à la valeur propre de l'aimantation, on considère la couche du milieu comme massive et donc avec un moment de $2.1\mu_B$ à température ambiante, et $2.2\mu_B$ à basse température.

une barre d'erreur maximum de ±0.22, qui est déduit de la moyenne des résultats obtenus pour différentes configurations expérimentales et énergies.

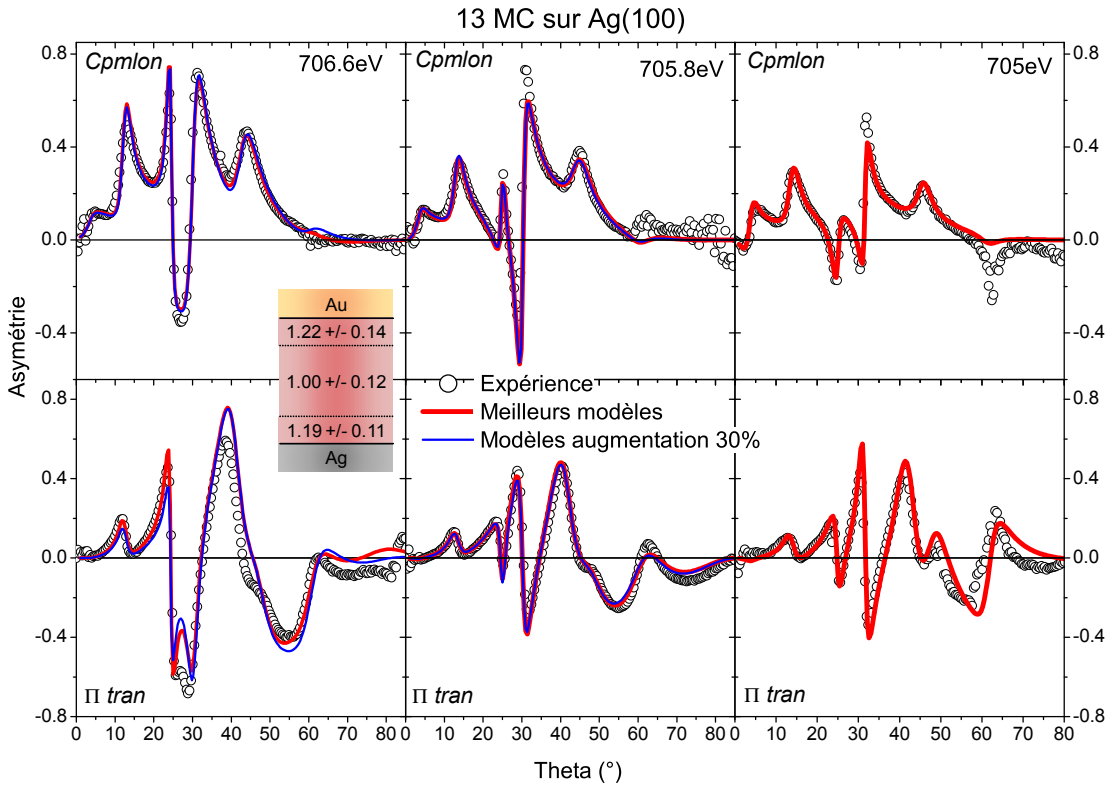


FIGURE 4.32 – Asymétries expérimentales (points noirs) et meilleurs modèles théoriques (ligne rouge) pour une épaisseur de 13 MC sur un substrat plat en configuration *Hpmlon* en haut et Π*tran* en bas à des énergies de 706.6eV (gauche), 705.8eV (milieu), et 705eV (droite) ; ainsi que le modèle théorique contraint à une augmentation de 30% (ligne bleu) pour 706.6eV et 705.8eV

Pour un film mince de Fe sur un substrat plat, l'aimantation est donc augmentée d'environ 20% aux deux interfaces. On pourrait alors penser, que l'augmentation est un peu plus faible que pour un substrat vicinal puisque précédemment nous avons trouvé une augmentation moyenne de 30%. Cependant la figure 4.32 montre que si on ajuste le modèle aux données expérimentales en contraignant l'écart entre les *mms* du milieu et les *mms* des interfaces à 30%, l'accord avec l'asymétrie expérimentale est aussi bon que celui trouvé précédemment.

La technique de SXRMR n'est donc pas suffisamment sensible aux variations de la norme de l'aimantation pour mettre en évidence une différence dans l'augmentation de cette aimantaiton aux interfaces entre un film mince déposé sur un substrat plat et le même déposé sur un substrat vicinal. On ne peut donc pas isoler la contribution des marches par rapport à la brisure de symétrie due à l'interface dans l'augmentation de l'aimantation.

Faibles épaisseurs et composante hors du plan (angle φ)

Lors des résultats présentés précédemment, pour les faibles épaisseurs en configuration *Cpmlon* ou *Hpmlon*, à basse température, l'asymétrie aux grands angles est non nulle, ce qui signifie qu'il y a une composante hors du plan. Nous avons vu dans le deuxième paragraphe que pour 4.2 et 5 monocouches l'angle φ était de 26° et 6° respectivement et paraît s'expliquer par le fait que le champ magnétique appliqué n'est pas assez fort pour atteindre la saturation. Cependant, pour les épaisseurs supérieures à 5.9 MC, à basse température, les mesures ont été effectuées à saturation, d'après les cycles d'hystérésis, et une composante hors du plan existe. Ceci serait dû à l'effet des marches qui induirait une composante magnétique hors du plan même sous champ appliqué dans le plan.

Dans les résultats que nous avons discutés plus tôt, nous avons montré qu'il fallait partager le film mince de Fe en trois couches magnétiques, et n'avons donné que les valeurs des *mms* sans parler des valeurs de l'angle φ relié à une composante d'aimantation hors du plan et nécessaire pour arriver aux bons accords que nous avons présentés. Lorsqu'un angle φ est nécessaire pour que l'accord entre le modèle théorique et l'expérience soit bon, afin d'éviter d'avoir trop de paramètres ajustables en même temps, on utilise les configurations $\Pi tran$ ou *Hpmtran* qui ne sont pas sensibles à la composante hors du plan donc à l'angle φ pour ajuster les *mms*, puis en fixant les valeurs des *mms* trouvées on ajuste les angles φ pour fitter les asymétries mesurées en configuration *Cpmlon* ou *Hpmlon*. Une fois que l'affinement est suffisamment proche, on peut relacher la contrainte sur les *mms* et ajuster les 6 paramètres en même temps. Les résultats des valeurs trouvées pour les trois angles φ sont donnés dans le tableau 4.3, et montrent que le comportement est le même pour toutes les épaisseurs avec un angle plus important près de l'Ag, puis qui diminue en se rapprochant de l'Au (c'est à dire en s'éloignant des marches du substrat). Le signe négatif trouvé pour une épaisseur de 9.2MC correspond au signe négatif trouvé par mesure MOKE de la composante magnétique O.P moyenne.

5.9MC	6.4MC	7.3MC	8.6MC	9.2MC	10.3MC
			Au		
4°	6°	4°	8°	-3°	3°
4°	9°	7°	11°	-8°	8°
9°	12°	10°	18°	-10°	15°
			Ag		

Table 4.3 – Tableau récapitulatif des différents angles φ trouvés pour les épaisseurs (données en monocouches (MC)) présentant une asymétrie non nulle à grands angles à basse température en configuration *Cpmlon* ou *Hpmlon*

Ce comportement peut donc être dû à la présence des marches du substrat d'Ag(116) qui induirait une composante hors du plan plus forte, et est résumé dans la figure 4.33 qui remplace le schéma en haut à gauche de la figure 4.30. Ce modèle semble avoir un sens physique puisque l'angle des marches est de 13° et que l'angle

près de la couche d'Ag est de 12°±4 si on moyenne les valeurs absolues. Nous verrons dans les parties conclusion, et discussion que le changement de signe de cet angle pour 9.2 MC est normal.

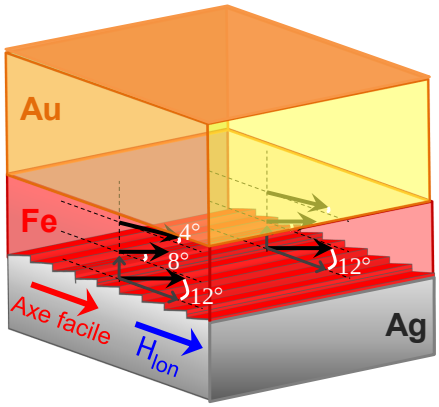


FIGURE 4.33 – Schéma du comportement de l'angle hors du plan φ en fonction de la profondeur de la couche de Fe à basse température pour une configuration *Hpmlon* ou *Cpmlon*. Les valeurs données sont les moyennes des valeurs absolues avec une barre d'erreur de ±4°

4.3.3 Magnétisme des échantillons à rémanence

A basse température, les mesures à saturation ont permis de montrer qu'il était nécessaire pour des épaisseurs de Fe supérieures à 5.8 MC de diviser la couche en plusieurs sous couches magnétiques, et que l'aimantation était plus grande aux interfaces d'Au et d'Ag. De plus, il a été mis en évidence qu'un angle hors du plan φ existait pour des échantillons dont l'axe de facile aimantation est perpendiculaire aux marches en configuration *Hpmlon* ou *Cpmlon*. Afin de voir quel est le comportement de l'aimantation d'un échantillon non soumis à un champ magnétique, nous avons effectué des mesures à rémanence d'un champ magnétique appliqué soit parallèlement soit perpendiculairement à l'axe de facile aimantation. Seules les mesures effectuées pour des températures inférieures à 20K seront présentées ici.

Pour un axe de facile aimantation parallèle aux marches, c'est-à-dire pour l'épaisseur de 13.5 MC, nous n'attendons pas de composante hors du plan car : (i) on est à une épaisseur nettement supérieure à celle de la transition de réorientation de spin, (ii) l'aimantation étant parallèle aux marches, elle ne ressent pas l'effet de l'inclinaison des marches. De plus, les données MOKE n'ont pas montré la présence d'une composante magnétique polaire. La seule mesure qui a été faite à rémanence en configuration *Cpmlonrem* devrait être nulle si l'aimantation revient complètement parallèle aux marches [12]. Cependant la figure 4.34 montre qu'il y a une légère asymétrie qui a la même forme que l'asymétrie mesurée en *Cpmlon* (figure 4.25 et 4.27), mais est beaucoup plus faible. Cela signifie qu'une petite composante longitudinale persiste. L'analyse quantitative permet de montrer qu'un bon accord entre expérience

12. longitudinal=perpendiculaire aux marches

et théorie est trouvé pour un angle γ dans le plan de 4°±1°. Cet angle est interprété comme un défaut de l'alignement des marches par rapport au plan de diffraction. Ces données expérimentales sont par ailleurs en parfait accord avec l'absence de composante d'aimantation hors du plan puisque l'asymétrie est nulle à grands angles.

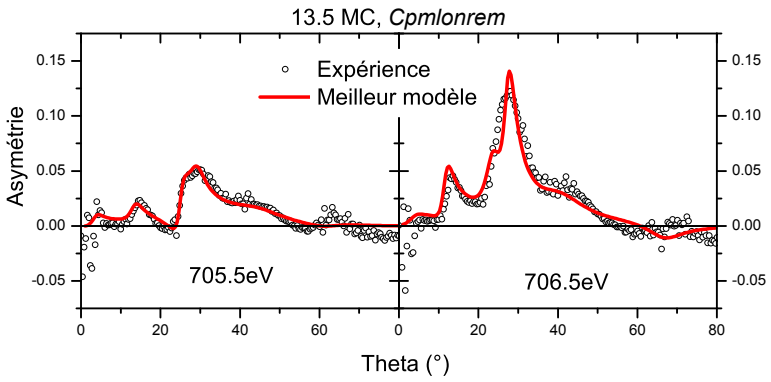


FIGURE 4.34 – Asymétrie expérimentale (points noirs) et meilleurs modèles théoriques (ligne rouge) en configuration *Cpmlonrem* pour un échantillon de 13.5 MC de Fe à basse température pour une énergie de 705.5eV à gauche et 706.5 à droite

Pour un axe de facile aimantation perpendiculaire aux marches, la composante hors du plan observée à saturation est toujours présente à rémanence, et parfois plus grande. Afin d'étudier la distribution d'aimantation sans champ appliqué, nous avons fait des mesures à rémanence d'un champ magnétique appliqué soit parallèlement, soit perpendiculairement à l'axe de facile aimantation, c'est à dire perpendiculairement ou parallèlement aux marches respectivement.

Mesures à rémanence d'un champ appliqué parallèlement à l'axe de facile aimantation

Pour des échantillons dont l'axe de facile aimantation est perpendiculaire aux marches, les mesures obtenues en configuration *Hpmlonrem* ou *Cpmlonrem* ne devraient révéler, en dehors d'un défaut d'alignement, aucune variation d'amplitude de l'asymétrie due à une rotation dans le plan. En revanche, en l'absence d'un champ appliqué elles pourraient permettre d'observer une augmentation de l'asymétrie au grands angles associée à une réduction de celle aux petits angles du fait d'une rotation de l'aimantation hors du plan.

L'analyse qualitative montre que l'angle hors du plan augmente fortement à rémanence pour des épaisseurs de 4.2 et 5 monocouches, où il n'y a qu'une seule couche magnétique. La figure 4.35 montre l'accord entre l'expérience et le meilleur modèle trouvé en configuration *Hpmlonrem* pour des valeurs de *mms* de 1.25±0.25 et des angles φ de 53°±7° pour 4.2 MC, et de 28°±3°. Ce modèle est valable pour deux énergies différentes, bien que l'accord soit moins bon à 708eV. A rémanence

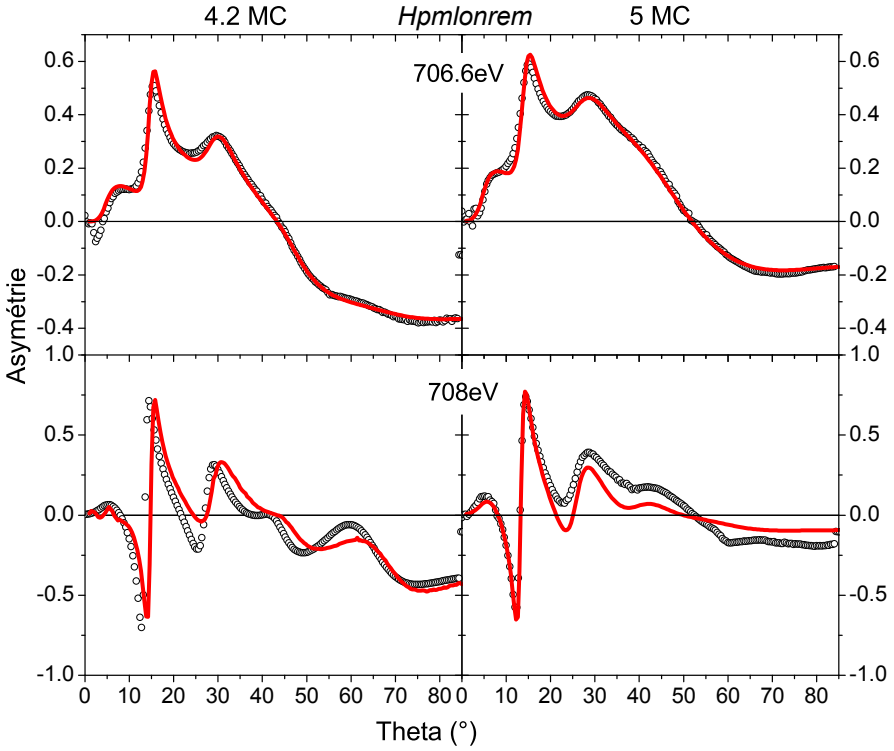


FIGURE 4.35 – Asymétrie expérimentale (points noirs) et meilleurs modèles théoriques (ligne rouge) en configuration *Hpmlonrem* pour des épaisseurs de 4.2 MC (à gauche) et 5 MC (à droite) à basse température pour une énergie de 706.6eV (en haut) et 708eV (en bas)

l'aimantation a une composante hors du plan beaucoup plus grande que sous champ appliqué. Cette très forte composante hors du plan, bien supérieure à l'angle des marches est attribuée à la transition de réorientation de spin. De part la compétition entre l'anisotropie de forme et l'anisotropie magnétocristalline, l'axe de facile aimantation n'est ni dans le plan, ni complètement hors du plan [12].

Pour les épaisseurs strictement supérieures à 5 monocouches, l'asymétrie à saturation n'évolue pas à rémanence pour la plupart des épaisseurs de Fe. Seuls les échantillons de 5.9 et 6.4 monocouches présentent des asymétries différentes à rémanence avec un signal légèrement plus grand à grands angles. La figure 4.36 montre le bon accord entre l'expérience et le meilleur modèle trouvé pour des angles φ indiqués en insert. Les valeurs des *mms* sont les mêmes que celles trouvées à saturation (figure 4.25). Pour les autres épaisseurs (7.3, 8.6, 9.2, et 10.3), les angles φ ainsi que les *mms* trouvés dans le paragraphe précédent sont les mêmes, et le profil d'aimantation peut être schématisé comme sur la figure 4.33.

Afin d'étudier les effets de la force de l'anisotropie planaire qui favorise l'aimantation perpendiculaire aux marches pour chaque épaisseur, des mesures à rémanence d'un champ appliqué parallèlement aux marches ont été éffectuées.

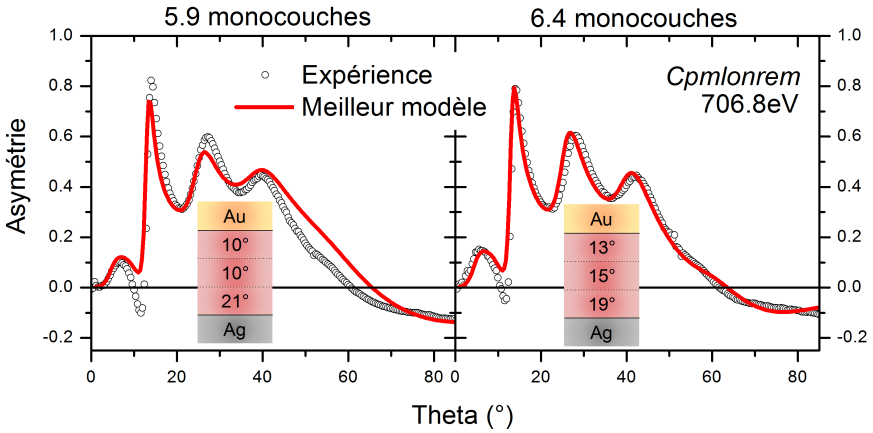


FIGURE 4.36 – Asymétrie expérimentale (points noirs) et meilleurs modèles théoriques (ligne rouge) en configuration *Cpmlonrem* pour un échantillon de 5.9 MC (à gauche) et 6.4 MC (à droite) à basse température pour une énergie de 706.8eV

Mesures à rémanence d'un champ appliqué perpendiculairement à l'axe de facile aimantation

Dans ce cas de figure, on part d'une situation où l'aimantation a été forcée parallèlement aux marches donc avec aucune contribution hors du plan, comme révélé par les mesures en configuration $\Pi tran$ et Πlon. On s'intéresse à comment l'aimantation se redistribue lorsque le champ appliqué est relaché. Peut-on imaginer qu'au voisinage des marches l'effet de l'anisotropie est plus important que loin des marches (interface avec l'Au) ? C'est à dire peut-on imaginer que l'aimantation au voisinage des marches opère une rotation de 90° (retour perpendiculaire) et qu'à l'interface avec l'Au, l'aimantation reste parallèle à la direction des marches ? Ou bien en considérant que l'interaction d'échange est trop importante pour les épaisseurs considérées [13], faut-il envisager que l'aimantation se redistribue en domaines avec des domaines où l'aimantation reste le long des marches et des domaines où l'aimantation s'aligne perpendiculaire aux marches avec une contribution hors du plan ? Dans ce cas de figure, le rapport d'asymétrie qui est sensible à une moyenne de l'aimantation dans le plan pourrait conduire à une rotation dans le plan, plus ou moins liée à la proportion des domaines. Dans tous les cas, trois paramètres ajustables sont nécessaires pour chaque couche magnétique : mms, φ, et γ. L'aimantation en configuration $Hpmtranrem$ et $\Pi tranrem$ est théoriquement la même et on essaiera d'avoir exactement le même modèle théorique pour ces deux configurations.

Pour les deux épaisseurs les plus faibles (4.2 et 5 monocouches), on peut considérer une seule couche magnétique et il est raisonable d'affiner les trois paramètres simultanément. La figure 4.37 montre le bon accord entre expérience et théorie obtenue, ainsi que la valeur des angles φ et γ. La valeur des mms est comprise dans la barre d'erreur de celle obtenue à saturation et en $Hpmlonrem$. Seules les mesures à 706.6eV sont montrées, mais les valeurs des paramètres ajustables sont une moyenne tenant compte des valeurs obtenues pour une énergie de 708eV.

13. Les spirales en profondeur s'établissent dans des couches de 150 à 200Å

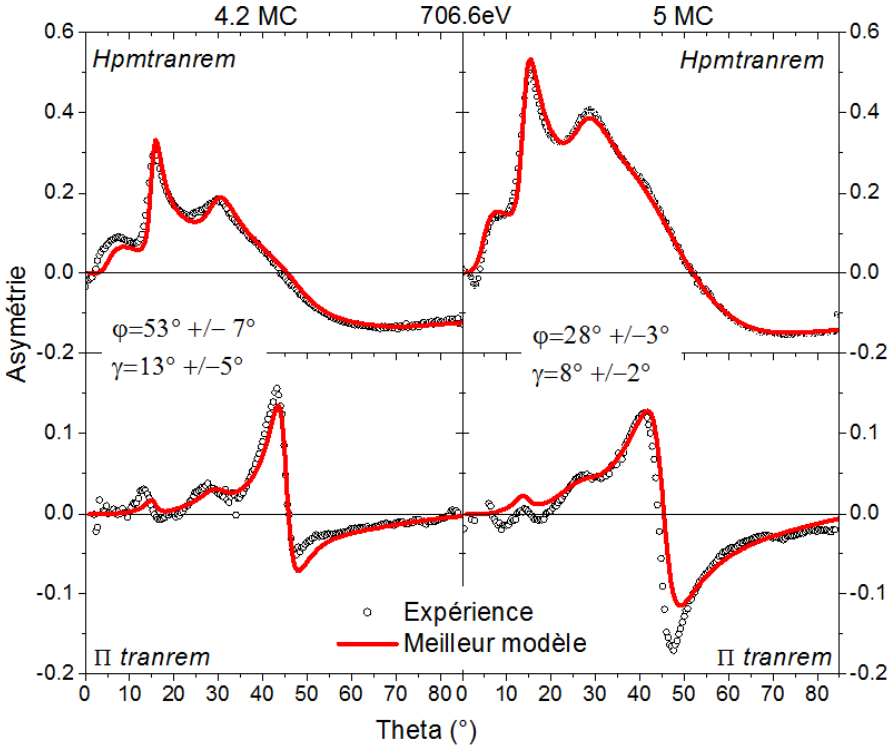


FIGURE 4.37 – Asymétrie expérimentale (points noirs) et meilleurs modèles théoriques (ligne rouge) en configuration *Hpmtranrem* en haut et Π*tranrem* en bas pour des épaisseurs de 4.2 MC (à gauche) et 5 MC (à droite) à basse température pour une énergie de 706.6eV.

Pour des épaisseurs de Fe plus grandes, étant donné qu'il est nécessaire de considérer trois couches magnétiques, tous les paramètres (9 au total) ne peuvent être affinés simultanément. Pour cela, on part du modèle permettant un bon accord entre expérience et simulation obtenu en configuration *Hpmlonrem* ou *Cpmlonrem* pour avoir les *mms* et les angles φ. On affine les paramètres γ en configuration Π*tranrem* puis les paramètres φ et *mms* de manière séparée en configuration *Hpmtranrem*. On fait plusieurs aller-retour entre les configurations Π*tranrem* et *Hpmtranrem*, jusqu'à obtenir un modèle qui donne le meilleur accord pour les deux configurations simultanées. Si des mesures expérimentales ont été faites pour une deuxième énergie (mais ce n'est malheureusement pas tout le temps le cas), le modèle obtenu à une énergie proche de 706.6eV est testé à une autre énergie (708eV). Les angles φ obtenus sont proches de ceux obtenus précédement et restent dans la barre d'erreur de $\pm 4°$. Les *mms* ont également les mêmes valeurs, dans la barre d'erreur, que ceux trouvés à saturation. Seuls les paramètres γ sont donc nouveaux. La figure 4.38 montre le bon accord obtenu entre expérience et simulation pour un modèle dont les angles γ sont les mêmes pour les trois couches magnétiques et sont donnés pour chaque épaisseur. Nous n'avons donc pas d'indication d'une distribution de valeur de γ avec la profondeur. Pour des épaisseurs inférieures à 10 MC, le modèle de domaines est donc le plus probable. On peut remarquer une différence d'amplitude du signal d'asymétrie

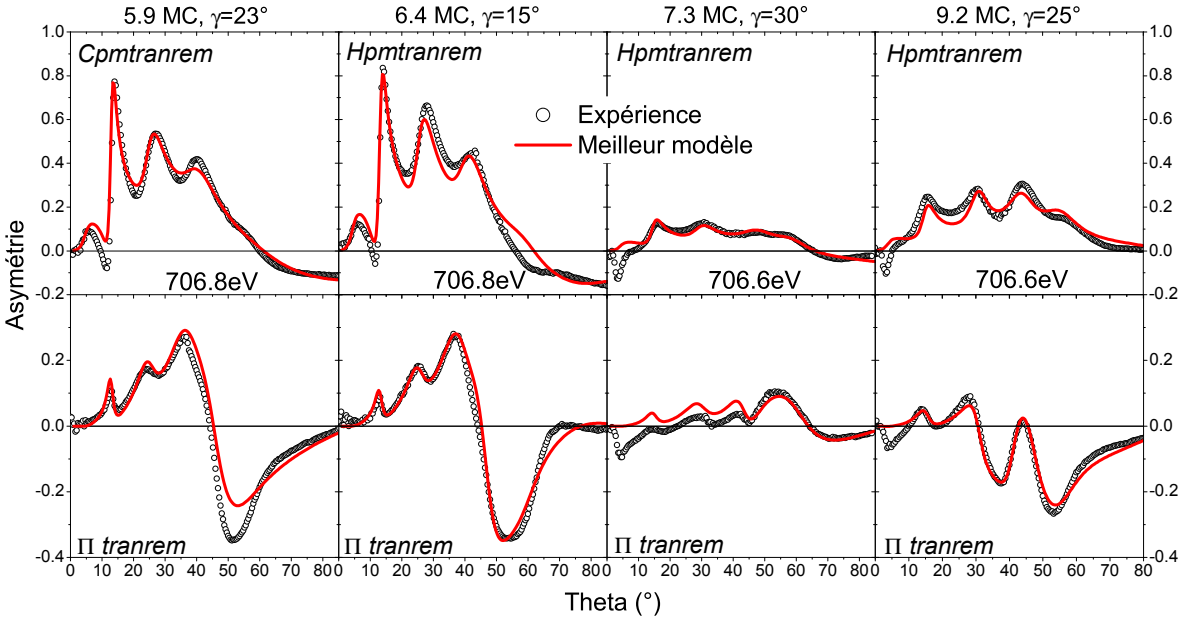


FIGURE 4.38 – Asymétrie expérimentale (points noirs) et meilleurs modèles théoriques (ligne rouge) en configuration *Hpmtranrem* en haut et Π*tranrem* en bas pour des épaisseurs de 5.9 et 6.4 monocouches de Fe pour une énergie de 706.8eV et de 7.3 et 9.2 monocouches de Fe pour une énergie de 706.6eV, à basse température.

assez fort entre les épaisseurs de 5.9 et 6.4 monocouches et les épaisseurs de 7.3 et 9.2 MC. Ceci peut-être dû au fait que ces "paires" d'épaisseurs ne proviennent pas du même échantillon, et les signaux d'asymétrie plus faibles pourraient être le résultat d'une répartition de domaines de manière homogène à gauche et à droite de l'axe transverse.

Les mesures à rémanence permettent donc de confirmer le profil de la composante hors du plan de l'aimantation trouvé lors de l'analyse des mesures à saturation, et indique également la présence de domaines où l'aimantation reste parallèle aux marches, et ce pour toutes les épaisseurs ayant un axe de facile aimantation perpendiculaire aux marches. Afin de vérifier le modèle d'une distribution de l'angle φ, avec une valeur plus grande près de l'Ag et qui diminue près de l'Au, nous avons testé un modèle où l'angle φ est contraint à être le même dans toute l'épaisseur de Fe.

Vérification de l'inhomogénéité de l'angle φ

Lorsqu'on essaie d'ajuster la courbe théorique à la courbe expérimentale en jouant sur un φ unique dans la couche de Fe, on obtient les modèles bleus de la figure 4.39. Les angles φ sont donnés en bleu pour le modèle homogène et en rouge de l'Au vers l'Ag pour le modèle où φ est inhomogène.

La figure 4.39 montre clairement que le modèle avec φ constant ne permet pas un aussi bon ajustement entre l'expérience et la théorie, notamment à grands angles. En

comparant les valeurs de φ pour le modèle inhomogène et homogène, on s'aperçoit que le signe de cet angle n'est pas le même pour une même épaisseur lorsque celle-ci est inférieure à 8 monocouches. Au delà de 8 monocouches les modèles où φ est inhomogène ou homogène donnent un angle ayant le même signe.

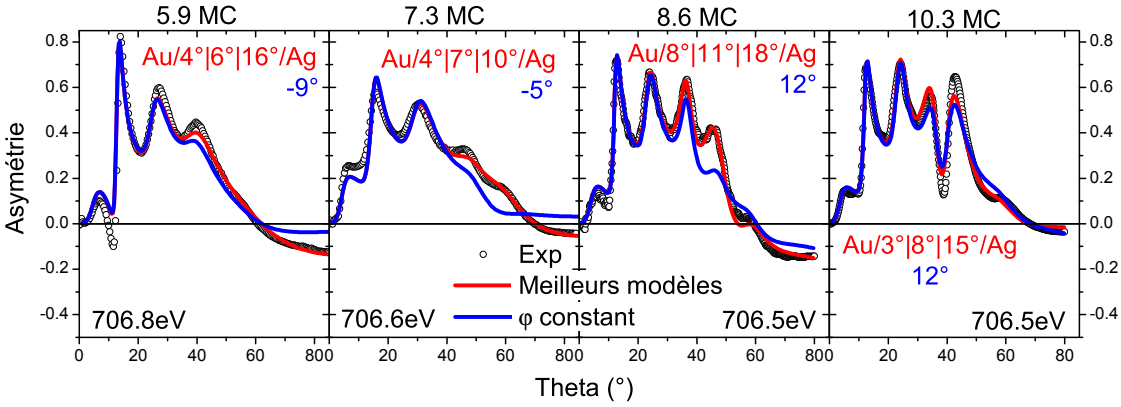


FIGURE 4.39 – Asymétrie expérimentale (points noirs), meilleurs modèles théoriques (ligne rouge), et meilleurs modèles où φ constant (ligne bleu) en configuration *Hpmlonnrem* ou *Cpmlonrem* pour des épaisseurs de 5.9 et 8.6 MC de Fe pour une énergie de 706.8eV et de 7.3 MC de Fe pour une énergie de 706.6eV, et 10.3 MC pour une énergie de 706.5eV, à basse température.

Cette différence de signe de l'angle φ entre le modèle inhomogène et homogène montre qu'il n'est pas possible de prendre correctement en compte tous les phénomènes avec un modèle d'angle φ homogène. Le modèle de la figure 4.33 est donc bon, et peut même être complété pour une configuration *Hpmtranrem* par l'apparition de domaines où l'aimantation est restée parallèle aux marches (figure 4.40).

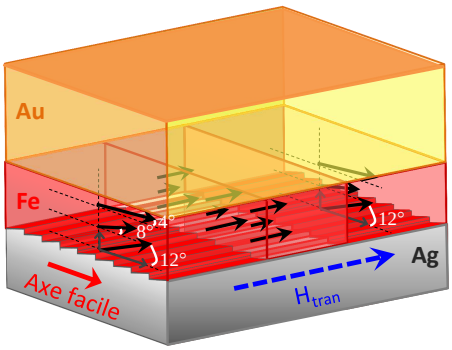


FIGURE 4.40 – Schéma du comportement de l'angle hors du plan φ en fonction de la profondeur, ainsi que de la présence de domaines magnétiques à basse température pour une configuration *Hpmtranrem*. Les valeurs données sont la moyenne des valeurs absolues avec une barre d'erreur de $\pm 4^{\circ}$, et le partage des domaines est un schéma relatif à un angle γ de 30°

4.3.4 Conclusions, synthèse

Cette analyse quantitative a donc permis de mettre en évidence le profil de l'aimantation au sein d'une couche mince de Fe sur Ag(116) recouvert par de l'Au. Pour des épaisseurs inférieures à 5 MC de Fe, la technique de SXRMR au seuil L_3 du Fe ne permet pas d'obtenir un profil résolu en profondeur mais donne des indications sur la norme et la direction de l'aimantation d'une couche totalement hybridée par chaque interface. Le tableau 4.4 donne les valeurs des mms et des angles φ et γ pour les deux épaisseurs de 4.2 et 5 monocouches, à saturation et rémanence.

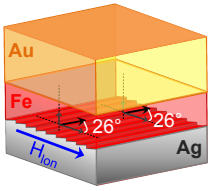
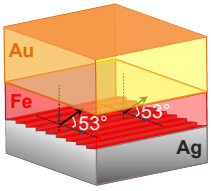
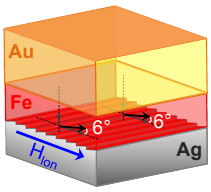
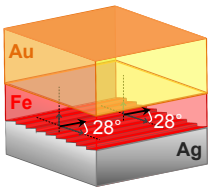
	Valeur $\|\vec{m}\|$	Orientation		
		sous champ appliqué	rémanence	
4.2 MC	$2.63\mu_B \pm 0.5$			$\gamma = 13^\circ$ i.e. $\approx 18\%$ de domaines // aux marches
5 MC	$2.8\mu_B \pm 0.5$			$\gamma = 8^\circ$ i.e. $\approx 12\%$ de domaines // aux marches

TABLE 4.4 – Tableau récapitulatif de la valeur et de l'orientation de l'aimantation pour les épaisseurs de 4.2 et 5 monocouches. L'orientation de l'aimantation dépend de la présence d'un champ appliqué ou non (rémanence)

La valeur de l'aimantation est supérieure à celle du cristal massif car pour des épaisseurs si petites, le Fe ressent les effets d'interfaces telles que l'hybridation et la brisure de symétrie, et ce quelle que soit sa position dans la couche.

La valeur de l'angle hors du plan étant beaucoup plus grande que l'angle des marches de 13°, la composante hors du plan est attribuée à la transition de réorientation de spin qui résulte de la compétition entre les différents termes de l'anisotropie (chapitre 2). La direction d'aimantation est alors entre la direction perpendiculaire au plan et la direction dans le plan, perpendiculaire aux marches [12, 13]. La variation de φ avec l'épaisseur du film permet de mettre en évidence la rotation de l'axe de facile aimantation de hors du plan à dans le plan en fonction de l'épaisseur de Fe. En effet, près de l'épaisseur critique de transition de réorientation de spin, une faible variation d'épaisseur induit une forte variation de l'angle hors du plan.

Pour des épaisseurs supérieures à 5.8 monocouches, la technique de SXRMR est sensible aux modifications de l'aimantation en fonction de la profondeur. Deux caractéristiques magnétiques se dégagent de ce profil. La première est l'augmentation

de l'aimantation aux deux interfaces d'Au et d'Ag. La deuxième est la présence d'un angle hors du plan non homogène en profondeur puisqu'il est plus fort près de l'Ag et diminue ensuite. A rémanence d'un champ magnétique appliqué perpendiculairement à l'axe de facile aimantation (i.e. parallèle aux marches) l'aimantation du film présente deux types de domaines à aimantation perpendiculaire.

Augmentation de l'aimantation aux interfaces

Nous avons montré qu'il est nécessaire d'avoir une augmentation de l'aimantation aux deux interfaces d'Au et d'Ag pour avoir un bon accord entre l'expérience et le modèle théorique. Cette augmentation aux interfaces est valable pour toutes les épaisseurs, quels que soient la configuration, le champ appliqué, et l'axe de facile aimantation, et est limitée aux 2-3 monocouches près des interfaces. Le tableau 4.5 donne les valeurs moyennées des mms pour toutes les configurations et énergies pour chaque épaisseur sondée, à température ambiante, et basse température. Cette augmentation est comprise entre 10% et 50%, et la barre d'erreur varie pour chaque épaisseur entre 0.05 et 0.5. Les grandes incertitudes sur les amplitudes absolues de l'aimantation peuvent avoir plusieurs origines. La plus probable est liée à la manière dont la SXRMR est sensible aux propriétés magnétiques et plus largement aux paramètres résonants. En mesurant la réflectivité et l'asymétrie à une énergie, on sélectione quatre paramètres résonants dont M' et M'' qui permettent de déterminer les mms. L'amplitude de ces paramètres dépend de la résolution en énergie. Si les expériences ont été effectuées avec une résolution en énergie différente de celle disponible au moment de la mesure de F'' et M'', il peut y avoir, à cause d'une résonance très étroite des variations d'amplitudes qui se répercutent immédiatement dans la valeur des mms. Une autre origine est due au fait que la SXRMR n'est pas directement sensible à l'aimantation, mais au produit aimantation/concentration de l'élément magnétique. Une incertitude sur la composition au niveau d'une interface peut donc aussi engendrer une incertitude sur les mms. Enfin, malgré tous les efforts effectués pour obtenir des courbes de réflectivité de bonnes qualités, le signal à grands angles peut s'avérer trop faible, ce qui engendre une barre d'erreur. De plus, notre programme d'analyse considère que les couches sont plates et continues et ne tient compte que d'un modèle de rugosité simple, ce qui n'est probablement pas le cas. Cette approximation engendre donc des erreurs dans la structure qui se répercutent sur l'amplitude des mms à cause des termes croisés structure/magnétisme présents dans l'expression de l'asymétrie. La technique de SXRMR, on donc est plus sensible à des variations relatives en fonction de la profondeur qu'à des valeurs d'aimantation absolue.

Si on trace ces données (figure 4.41) on s'aperçoit qu'on peut moyenner les valeurs des mms près de l'Ag et près de l'Au (mms_{Ag} et mms_{Au} respectivement) pour 20K et 300K. Il semble alors que l'augmentation près de l'Au soit légèrement plus forte que celle près de l'Ag, et qu'à température ambiante, l'augmentation tende à être réduite. Cependant, une grande dispersion des valeurs, exceptées pour les mms_{Ag} à 300K montre la difficulté de commenter trop loin une variation de 10%. Cette limitation est liée à la manière dont la technique est sensible à une valeur absolue de l'aimantation. En revanche l'approche est très sensible aux variations relatives

	5.9	**6.4**	**8**	**8.6**	**9**	**9 p**	**10.3**	**13 p**	**13.5**	
	Au									
300K	1.13	1.29	1.56	1.42	1.41	1.37	1.38	1.22	1.24	↕ 2-3 MC
	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	cœur
	1.17	1.06	1.21	1.17	1.21	1.17	1.10	1.19	1.15	↕ 2-3 MC
	Ag									
	5.9	**6.4**	**7.3**	**8**	**8.6**	**9**	**9.2**	**10.3**	**13.5**	
	Au									
20K	1.29	1.37	1.54	1.55	1.34	1.50	2.24	1.54	1.23	↕ 2-3 MC
	1.05	1.05	1.05	1.05	1.05	1.05	1.05	1.05	1.05	cœur
	1.35	1.35	1.53	1.36	1.13	1.36	1.31	1.20	1.18	↕ 2-3 MC
	Ag									

TABLE 4.5 – Tableau récapitulatif des différentes valeurs de *mms* pour toutes les épaisseurs de Fe en fonction de la profondeur à température ambiante (300K) et basse température (20K). Les épaisseurs de Fe sont données en monocouches dans les cases colorées afin de faire le lien entre les épaisseurs venant d'un même échantillon (ayant la même couleur). Le code couleur est le même que celui utilisé dans la partie structure

d'aimantation en profondeur et a mis en évidence l'augmentation de l'aimantation de 20 à 30% dans les 2-3 monocouches proches des deux interfaces. On retrouve la valeur anormalement élevée de l'aimantation à l'interface d'Au pour l'échantillon de 9.2 MC.

Composante de l'aimantation hors du plan, angle φ

A basse température, lorsque l'axe de facile aimantation est perpendiculaire aux marches, l'aimantation présente une composante hors du plan observable en configuration *Hpmlon*, *Cpmlon*, *Hpmlonrem*, *Cpmlonrem*, *Hpmtranrem* et Π*tranrem*. Pour avoir un bon ajustement entre expérience et simulation, il faut un modèle où l'angle hors du plan φ est plus grand au voisinage du substrat d'Ag et diminue près de l'Au. Le tableau 4.6 donne la valeur de ces angles en fonction des épaisseurs de Fe. Pour toutes les épaisseurs sauf 5.9 et 6.4 monocouches, le comportement magnétique est le même à saturation et à rémanence. Pour ces deux épaisseurs, l'augmentation de l'angle φ à rémanence est propablement due à la transition de réorientation de spin dont les effets se font encore sentir.

Le changement de signe de l'angle φ en fonction de l'épaisseur a été observé par MOKE, et a été attribué à une oscillation de la direction d'aimantation due à la présence de puits quantiques au sein de la couche. La figure 4.42 montre la variation de l'angle φ en fonction de l'épaisseur de la couche de Fe, pour des résultats obtenus par MOKE, (noir) et les résultats moyennés sur les trois couches magnétiques que nous avons obtenus en SXRMR (rouge). Les résultats correspondent assez bien, et on retrouve le changement de signe de 9.2 MC.

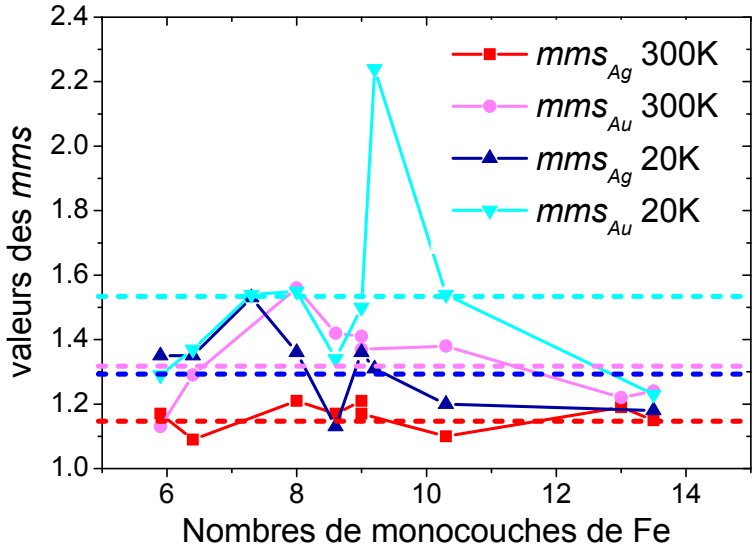


FIGURE 4.41 – Graphique donnant les valeurs des mms_{Ag} à 20K (bleu) et 300K (rouge) et mms_{Au} à 20K (cyan) et 300K (rose) en fonction du nombre de monocouches du film mince de Fe. Les lignes en pointillées représentent la moyenne des mms sur toutes les épaisseurs

5.9MC		6.4MC		7.3MC	8.6MC	9.2MC	10.3MC
sat	rem	sat	rem	sat=rem	sat=rem	sat=rem	sat=rem
Au							
4°	10°	6°	13°	4°	8°	-3°	3°
4°	10°	9°	15°	7°	11°	-8°	8°
9°	21°	12°	19°	10°	18°	-10°	15°
Ag							

TABLE 4.6 – Tableau récapitulatif des différentes valeurs de φ en fonction de la profondeur pour toutes les épaisseurs de Fe à basse température (20K). Les épaisseurs de Fe sont données en monocouches (MC) dans les cases colorés afin de faire le lien entre les épaisseurs venant d'un même échantillon

Dès qu'une inhomogénéité de l'amplitude de l'aimantation apparait dans la couche, il faut être prudent avec une correspondance directe entre changement de signe de l'angle φ et changement de signe de l'asymétrie. Afin de mieux comprendre l'effet de l'inhomogénéité de l'amplitude magnétique sur l'analyse de la distribution angulaire, on a comparé plusieurs modèles théoriques entre eux. A partir du modèle à 5.9 monocouches en configuration *Cpmlon* on fixe les mms à 1.3 près de l'Ag et de l'Au et 1 au centre, et on met tous les angles ϕ à 0 sauf φ_i qui est égal à $\pm 20^\circ$ (i représente la position de la couche et est égal à Au, int, Ag). La figure 4.43 compare l'expérience aux différents modèles théoriques, à gauche pour une augmentation des φ_i de $+20^\circ$, et à droite pour une augmentation de -20°. On observe par exemple que

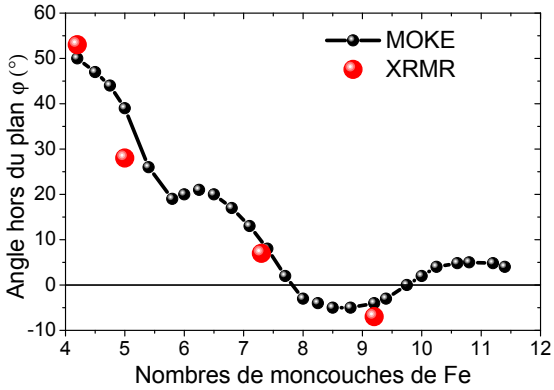


FIGURE 4.42 – Variation de l'angle φ en fonction de l'épaisseur de la couche de Fe pour des résultats obtenus par MOKE (points noirs) et les résultats obtenus par XRMR moyennés sur les trois couches pour le même échantillon de 2-10 (b) monocouches

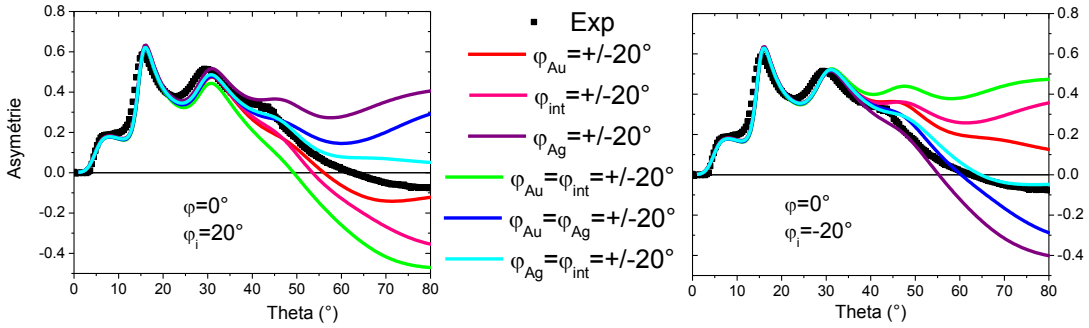


FIGURE 4.43 – Asymétries expérimentales et théoriques pour 5.9 MC de Fe en configuration *Cpmlon* à 706.6eV à basse température, pour différents modèles : *mms*=Au/1.3-1-1.3/Ag, et $\varphi = 0^\circ$ sauf $\varphi_i = 20^\circ$ à gauche et $\varphi_i = -20^\circ$ à droite

si une seule couche sur trois présente une inclinaison de 20°, la forme de l'asymétrie aux grands angles est différente en amplitude et en signe suivant la position de la couche. Cette comparaison de différents modèles permet de comprendre pourquoi on peut trouver des signes de φ différents dans un modèle homogène et inhomogène, et pourquoi un changement de signe de l'asymétrie n'explique pas forcément un changement de signe de φ.

On a donc un profil de la composante de l'aimantation hors du plan inhomogène et dont le signe varie avec l'épaisseur à basse température. A température ambiante, il n'y a pas de composante hors du plan puisque les asymétries tendent vers 0 à grands angles.

Présence de domaines magnétiques, angle γ

Lors de l'analyse qualitative nous avons souligné l'importance d'utiliser les configurations Π pour détecter la présence d'une contribution d'aimantation parallèle

aux marches. A saturation, il a été montré qu'un petit signal Π*lon* pouvait exister et était probablement dû à un alignement non parfait entre les marches et le plan de diffraction. L'analyse quantitative a confirmé le fait que ces faibles asymétries imposaient d'introduire une rotation de l'aimantation γ de l'ordre de 5°, homogène en profondeur. Cette angle correspond à la barre d'erreur d'alignement en l'absence d'une rotation azimuthale motorisée de l'échantillon qui pourrait être utile pour ce type d'expérience.

A rémanence, la présence d'un angle dans le plan, surtout si il est supérieur à 5°, indique que tous les moments ne se sont pas réalignés suivant l'axe de facile aimantation perpendiculaire aux marches. Elle conduit à introduire un angle γ pour l'aimantation moyenne plus ou moins important. Cet angle s'est révélé toujours homogène en profondeur et est donné dans le tableau 4.7 en fonction des différentes épaisseurs.

5.9MC	**6.4MC**	**7.3MC**	**9.2MC**
23°	15°	30°	25°
≈ 30%	≈ 21%	≈ 36%	≈ 32%

Table 4.7 – Tableau récapitulatif des différentes valeurs de γ pour toutes les épaisseurs de Fe à basse température (20K) ayant un signal Π*tranrem* significatif. Les épaisseurs de Fe sont données en monocouches (MC) dans les cases colorées afin de faire le lien entre les épaisseurs venant d'un même échantillon. La dernière ligne donne la correspondance en pourcentage de domaines où l'aimantation est restée parallèle aux marches.

Cet angle a été interprété comme l'apparition de domaines, et une valeur de 25° signifie qu'il y a à peu près 68% des domaines où l'aimantation est perpendiculaire aux marches, et 32% des domaines où l'aimantation est parallèle aux marches. Cette proportion n'a pas pû être vérifiée par des mesures de microscopie à force magnétique faites en laboratoire à cause de la couche de protection d'Au.

La prochaine partie discutera et comparera les trois résultats principaux que nous venons de dégager par rapport aux connaissances déjà publiées.

4.4 Discussions

4.4.1 Augmentation de l'aimantation aux interfaces

Théoriquement, une augmentation de l'aimantation aux interfaces est un phénomène bien connu. Expérimentalement, il a été montré indirectement que cette augmentation existait, soit par magnétométrie, soit par XMCD [14]. Des mesures de magnétométrie ont déjà été appliquées in situ pour des échantillons de Fe/Ag et Fe/Au grâce aux techniques de TOM et SQUID [15], pour différentes épaisseurs de Fe, mais ces méthodes intègrent le signal sur toute l'épaisseur de la couche. Il n'y a donc pas de résolution spatiale, et les résultats d'une augmentation aux interfaces

dépendent de l'interpolation des mesures effectuées pour des couches de différentes épaisseurs de Fe. Une autre technique couramment utilisée pour sonder les moments magnétiques est la technique de XMCD qui, utilisée de manière standard, moyenne également l'aimantation sur toute l'épaisseur de la couche. Néanmoins, si cette technique est utilisée avec une détection des électrons émergents pour différents angles (c'est à dire différentes épaisseurs), l'aimantation peut être sondée pour différentes profondeurs [16]. Cependant, ce nombre d'électrons doit être corrigé en fonction de l'épaisseur dont ils proviennent, ce qui est assez compliqué.

Des techniques résolues en profondeur ont également été utilisées sur des échantillons de Fe bcc. Il existe seulement deux manières d'effectuer des mesures résolues en profondeur : sonder le champ hyperfin couche par couche grâce à la spectroscopie Mössbauer, ou utiliser le moment magnétique comme un paramètre influençant la réflectivité des neutrons ou des rayons X en utilisant la technique de PNR ou XRMR respectivement. Des expériences de spectroscopie Mössbauer ont été effectuées par Tyson *et al* [17] et Korecki *et al* [18], cependant ces mesures donnent des informatione sur le champ hyperfin, qui est ensuite interprété comme l'augmentation ou la diminution des moments magnétiques. Les techniques de réflectivité donnent donc une information la plus directe sur l'aimantation de manière résolue en profondeur au sein d'un film mince.

Les expériences de SXRMR, effectuées sur des films minces de Au/Fe/Ag(116), ont permis de mettre expérimentalement en évidence, et de manière directe, l'augmentation de l'aimantation aux deux interfaces. De plus, ces expériences ont permis de donner un ordre de grandeur de la résolution qu'on peut attendre en XRMR. En effet, nous avons vu que réduire l'épaisseur des sous couches magnétiques au sein du film de Fe en dessous de deux monocouches n'améliorait pas l'accord entre l'expérience et les modèles théoriques. Les sous couches magnétiques sont de l'ordre de 2-3 monocouches atomiques de Fe, et l'augmentation de l'aimantation est observée pour les 2-3 monocouches près des interfaces d'Au et d'Ag [19].

Théoriquement il a été prédit à température nulle que l'augmentation des moments magnétiques aux interfaces s'étend dans les trois premières monocouches atomiques et que la valeur moyenne du moment magnétique est de $2.6\mu_B$ [20, 21, 22]. Ces faits on été vérifiés expérimentalement par des méthodes indirectes [15, 23], et pour pouvoir comparer nos résultats à ceux-ci, il suffit de multiplier les mms obtenus par $2.1\mu_B$. A basse température, si on ne prend pas en compte la très grande valeur de mms pour 9.2 monocouches, on obtient une moyenne de $2.9\mu_B \pm 0.2$. Cette valeur est légèrement supérieure à celle prédite théoriquement, mais s'accorde bien avec les résultats plus proches de l'interface qui prédisent une augmentation de 2.98-$3.01\mu_B$ [24], ainsi qu'avec les valeurs théoriques moyennant l'aimantation de deux monocouches de Fe sur un substrat d'Ag(001) de $2.8\mu_B$ ou bien donnant l'aimantation d'une monocouche de Fe coincée entre deux couches d'Ag ($2.8\mu_B$) ou bien deux couches d'Au ($2.9\mu_B$) [25]. Enfin, si on moyenne les résultats sur toute la couche, on obtient un moment de $2.6\mu_B$ qui est en bon accord avec les résultats trouvés par Bland *et al* [23].

A température ambiante, on trouve des résultats très similaires avec une aimantation dans les deux-trois monocouches près des interfaces de $2.6\mu_B \pm 0.2$. Ce résultat est légèrement différent de celui obtenu à basse température, ce qui est normal puis-

qu'à 300K, les moments magnétiques fluctuent plus à l'interface, et l'aimantation qui est la moyenne de ces moments se trouve réduite. Cependant si on prend en compte les barres d'erreurs de $0.2\mu_B$, il peut ne pas y avoir de différence entre basse et haute température. On atteint la limite de précision de la technique XRMR. Une valeur d'aimantation significativement plus faible entre basse et haute température a déjà été observée expérimentalement pour un film correspondant à 21 MC de Fe couvert par de l'Ag [18]. On peut imagnier que pour des épaisseurs plus faibles comme dans cette étude, la variation de l'aimantation avec la température est plus homogène à travers le film car les effets de la réduction des interactions d'échange à l'interface avec un accroissement de la température s'étendent sur plusieurs couches atomiques. Par ailleurs, dans le cas d'une interface Au/Fe, c'est une augmentation à température ambiante qui a été observée [26]. Dans ce cas, c'est une modification de la contribution des électrons de valence qui a été évoquée. De plus, la barre d'erreur importante sur la détermination de l'amplitude de l'aimantation dans une couche magnétique aussi fine que 2-3 MC ne nous a pas permis d'observer une différence significative lorsque le Fe est déposé sur un substrat plat.

La détermination des *mms* par l'analyse quantitative des données XRMR est directement reliée aux facteurs résonants F', F'', M', et M'', qui proviennent de données XMCD recueillies sur un échantillon massif de Fe bcc [27]. Afin d'utiliser des facteurs résonants provenant directement de notre type d'échantillon, Au/-Fe/Ag(116), une expérience de XAS/XMCD a pu être réalisée sur la ligne de de lumière DEIMOS à SOLEIL avec Edwige Otero. Ces résultats sont présentés en annexe C.3.2 et n'ont pû être utilisés pour l'analyse quantitative des données XRMR car l'Ag a son seuil M_1 (719eV) juste sous le seuil L_2 du Fe ce qui pose un problème de normalisation des données d'absorption en unité d'électron via les valeurs tabulées loin des seuils (Chantler). Cependant, le signal XMCD obtenu est très proche de celui utilisé, ce qui nous permet de valider l'utilisation des paramètres résonants dérivés d'un cristal massif de Fe bcc.

4.4.2 Composante magnétique hors du plan

A basse température et pour des épaisseurs ayant un axe de facile aimantation perpendiculaire aux marches, une composante hors du plan a été observée. Selon l'épaisseur de la couche de Fe, cette composante est due à la transition de réorientation de spin qui a lieu pour les plus faibles épaisseurs de Fe inférieures à 5.5 MC [28, 29, 4], tandis que pour les épaisseurs plus grandes, cette composante hors du plan est due à la présence de marches.

Pour les épaisseurs de 4.2 et 5 monocouches, la composante magnétique polaire est due au phénomène de transition de réorientation de spin décrit dans le chapitre 2, et donne lieu à une direction d'aimantation non plus dans le plan, mais à 53° pour 4.2 monocouches de Fe et 28° pour 5 monocouches de Fe. La résolution de la technique de XRMR n'est pas suffisante pour pouvoir sonder le profil magnétique en profondeur de couches si minces. Ces résultats sont en accord avec les données MOKE collectées au Max Planck Institut. Cet angle pourait résulter de la présence de domaines où l'aimantation est soit complètement hors du plan soit complètement

dans le plan [30], mais il a été montré que pour un film mince sur un substrat vicinal, la transition de l'axe de facile aimantation de hors du plan à dans le plan était continue [12, 13], c'est à dire qu'il n'y a pas de domaines, contrairement à la transition de réorientation dans le plan de parallèle à perpendiculaire aux marches. Il aurait été intéressant de compléter cette étude : (i) en effectuant des asymétries à rémanence d'un champ magnétique hors du plan pour tester un éventuel retour à 53° ; (ii) par une expérience d'imagerie sensible à l'aimantation perpendiculaire.

Pour des épaisseurs de Fe plus grandes, entre 5.8 et 10.3 monocouches, une faible composante hors du plan a été détectée. Cette composante magnétique est inhomogène au sein de la couche de Fe et s'avère être de plus en plus grande au fur et à mesure qu'on se rapproche de l'interface d'Ag. Deux questions se posent quant au sens physique de ce résultat : la première concerne la possibilité d'une inhomogénéité de la direction de l'aimantation pour des épaisseurs de Fe très fines ; la deuxième se rapporte au fait que cette composante soit plus grande près de l'Ag et non près de l'Au.

L'inhomogénéité de l'orientation de l'aimantation au sein de films ultra-minces magnétiques d'épaisseurs inférieures à 1.5 nm (10.3 MC) peut sembler surprenante car pour cet ordre de grandeur, le couplage d'échange devrait dominer et aligner l'aimantation. Cependant il a été montré qu'une telle inhomogénéité concernant une composante magnétique hors du plan pouvait exister dans des échantillons de Fe bcc déposé sur un substrat plat ayant une épaisseur inférieure à 10nm [31]. O'Handley *et al* montrent que la composante de l'aimantation hors du plan peut être inhomogène. Si on fait l'hypothèse qu'elle est hors du plan à la surface, l'aimantation revient dans le plan pour une valeur caractéristique de 3-4 nm ($\approx$ 25MC) dans le cas du Fe. De plus, il est mis en évidence que même sous champ magnétique appliqué dans le plan, une composante magnétique hors du plan peut persister à la surface du Fe. Ce comportement a été observé expérimentalement en 1986 par Allenspach *et al* qui, grâce à des mesures d'électrons secondaires à la surface d'un cristal de Fe massif (100), montrent que l'aimantation a une composante hors du plan dans les 5Å près de la surface [32]. En 2011, Kawauchi *et al* mettent en évidence une composante hors du plan dans les 2 nm proches de la surface au sein de films minces de $20nm$ de Fe sur des substrats plats de Si, grâce à des expériences de NRS [33].

La technique de SXRMR permet de mettre en évidence que la composante hors du plan de notre échantillon est inhomogène au sein de la couche de Fe. Cependant, contrairement aux trois papiers cités précédemment, nous observons une composante hors du plan qui est plus grande près du substrat vicinal d'Ag que près de l'interface avec l'Au. Ceci peut s'expliquer par le fait que cette composante hors du plan est due aux marches du substrat, et lorsqu'on s'éloigne des marches, celles-ci sont moins bien définies, et la composante hors du plan est plus faible. En effet, l'inclinaison des marches et les atomes de bords peuvent induire une composante hors de plan, puisqu'au bord des marches, les électrons sont plus localisés, ce qui induit une anisotropie hors du plan très forte [34, 35], même si dans nos systèmes les marches sont couvertes. Un autre phénomène à prendre en compte, est le fait que l'hybridation du Fe aux interfaces avec l'Ag et l'Au peut également induire une composante magnétique hors du plan [18, 36]. Le fait qu'on trouve que près de l'Au la

composante hors du plan n'est pas plus grande que près de l'Ag signifie que pour des épaisseurs de Fe supérieures à 5.9 MC, les marches ont une influence prédominante sur la composante hors du plan par rapport à l'anisotropie hors du plan due à l'Au. Pour vérifier de telles hypothèses, il faudrait pouvoir faire les mêmes mesures en cours de croisance, ce qui est à l'heure actuelle impossible. De plus, lorsqu'on applique le champ parallèle aux marches il n'y a plus d'aimantation hors du plan, ce qui renforce le fait que la composante de l'aimantation hors du plan est due aux marches et non aux effets d'hybridation ou d'anisotropie de surface.

C'est la première fois qu'on est sensible de manière si précise à une inhomogénéité de la composante hors du plan en fonction de la profondeur. La valeur des angles trouvés expérimentalement pourrait être reliée à des valeurs issues des théories telles que celles évoquées dans le chapitre 2 [37, 38] afin de remonter aux valeurs des constantes d'anisotropies K_i. En effet, même si le papier de O'Handley *et al* [31], pour une surface de Fe non recouverte et faisant partie d'un film semi infini, c'est à dire ne prenant pas en compte les effets d'un substrat, donne une diminution de la composante hors du plan en s'éloignant de la surface, inversement à nous, il montre qu'une variation de l'angle hors du plan d'environ 15° près de la surface et diminuant jusqu'à 0° dans une dizaine de monocouches est due à une constante d'anisotropie surfacique $K_s = 2.6 erg/cm^2$. A partir d'un modèle prenant en compte les effets d'un substrat vicinal, ainsi que notre couche protectrice d'Au, il pourrait donc être possible de remonter aux constantes d'anisotropies.

4.4.3 Composante magnétique dans le plan : domaines

A basse température et à rémanence d'un champ appliqué perpendiculairement à l'axe de facile aimantation, la présence d'une composante de l'aimantation perpendiculaire à l'axe de facile aimantation, c'est-à-dire la rotation incomplète de l'aimantation moyenne vers l'axe de facile aimantation, a été interprétée comme la présence de domaines magnétiques où l'aimantation est restée suivant l'axe de moins facile aimantation. La technique de SXRMR en condition de réflectivité spéculaire selon $\vec{Q}_z$ n'est pas sensible à des corrélations latérales dues à la présence ou non de domaines. Cependant la présence de domaines magnétiques a déjà été évoquée pour comprendre les asymétries mesurées dans un échantillon de Fe/Cu(100) [7].

Afin de visualiser ces domaines, des expériences de microscopie Kerr et de MFM ont été réalisées à l'Institut Néel sur l'échantillon coin de 2-10 monocouches (a). Néanmoins aucun domaine magnétique n'a été vu durant ces mesures à cause d'une dégradation de la surface de l'échantillon et probablement parce que la couche de protection d'Au était trop épaisse et la couche de Fe trop fine. Nos collègues du Max Planck Institut ont quant à eux effectué des mesures SPLEEM, qui mettent en évidence des domaines qui évoluent en fonction de l'épaisseur de Fe déposée, mais ce comportement a été relevé pour un échantillon n'ayant jamais subi de champ magnétique et n'étant pas recouvert d'une couche protectrice d'Au puisque les expériences se font *in-situ*. Il est donc difficile à ce jour de faire un lien direct entre la détection par imagerie de ces domaines, et la présence de domaines au sein de notre échantillon.

Une expérience de réflectivité de neutrons polarisés a également été effectuée

sur un échantillon de 11 monocouches de Fe sur un substrat vicinal d'Ag(116). Malheureusement cet échantillon n'a pas pu être recouvert d'Au mais de seulement 8 monocouches de Rh, ce qui a altéré les propriétés magnétiques attendues et donné des réflectivités très plates à cause de la faible épaisseur de la surcouche. Ces données sont présentées en annexe C.3.1, et montrent bien qu'à rémanence d'un champ magnétique perpendiculaire à l'axe de facile aimantation il y a une composante de l'aimantation qui reste selon ce champ appliqué. Cependant, les résultats sont les mêmes à température ambiante et basse température, et la rotation attendue de l'axe de facile aimantation entre basse et haute température n'a pas été observée. Les propriétés magnétiques n'étant sûrement pas les mêmes du fait de la nature différente de la surcouche, il est difficile de tenir compte de ces résultats.

A température ambiante, il n'y a plus de composantes d'aimantation perpendiculaire à l'axe de facile aimantation à rémanence car la force de l'anisotropie est réduite et donc ces domaines disparaissent. De plus, il semblerait qu'à basse température, la proportion de domaines varie avec l'épaisseur. Peut-on relier cette proportion à la force de l'anisotropie ? Cela parait difficile puisque les angles γ ne montrent pas une variation aussi forte que la variation de H_S. La présence et la proportion de domaines dépendent-elles de l'histoire magnétique de l'échantillon ? La possibilité de revenir suivant l'axe de facile aimantation peut se faire en principe suivant deux orientations équiprobables. Toutefois, si l'alignement n'est pas parfait, où à cause de défauts, il peut y avoir une préférence pour une orientation, et les domaines sont alors visibles. La présence de défauts peut également induire un phénomène de "mémoire" magnétique [39, 40]

Dans le cadre de l'étude de films minces de Fe bcc déposés sur un substrat vicinal d'Ag(116) et recouvert par une couche d'Au, la technique de XRMR a permis de dériver un profil magnétique en fonction de la profondeur, pour différentes épaisseurs de Fe. Nous n'avons pas mis en évidence l'influence des états de puits quantiques, détectés par MOKE, sur l'aimantation, mais avons montré que l'aimantation était inhomogène en norme et pouvait l'être en direction. Ceci a été possible grâce à l'utilisation de plusieurs configurations expérimentales pour un même échantillon. Ainsi, quels que soient l'épaisseur, la température, l'axe de facile aimantation et la présence ou non d'un champ magnétique extérieur, la technique de XRMR a mis en évidence que l'aimantation était augmentée de 20 à 30% dans les 2-3 monocouches près des interfaces d'Au et d'Ag. En plus de ce phénomène, lorsque l'axe de facile aimantation est perpendiculaire aux marches, à basse température, une composante magnétique hors du plan est présente de manière inhomogène dans la couche de Fe. La résolution en profondeur de la réflectivité magnétique résonante permet de montrer que cette composante hors du plan est plus grande près de l'Ag et diminue lorsqu'on se rapproche de l'Au. Enfin, pour des échantillons où l'axe de facile aimantation est perpendiculaire aux marches, à basse température,

l'utilisation de configurations expérimentales différentes s'est avérée très utile pour déceler la présence d'une composante de l'aimantation parallèle aux marches lors de mesures à rémanence d'un champ perpendiculaire à l'axe de facile aimantation. Cette composante perpendiculaire à l'axe de facile aimantation a été interprétée comme la présence de domaines magnétiques où l'aimantation serait restée selon l'axe de moins facile aimantation. Le profil d'aimantation d'un film mince de Fe sur un substrat vicinal d'Ag(116) a donc entièrement été résolu grâce à la complémentarité des différentes configurations expérimentales de la technique de XRMR. Afin de décrire l'inhomogénéité de la composante hors du plan, des calculs *ab initio* pourront être faits, tandis que pour étudier plus en détails le lien entre domaines et force de l'anisotropie, des expériences de microscopie magnétique peuvent être envisagées

Bibliographie

[1] J. Schäfer, M. Hoinkis, Eli Rotenberg, P. Blaha, and R. Claessen. Spin-polarized standing waves at an electronically matched interface detected by fermi-surface photoemission. *Physical Review B*, 75(9) :092401, March 2007.

[2] J. Li, M. Przybylski, F. Yildiz, X. D. Ma, and Y. Z. Wu. Oscillatory magnetic anisotropy originating from quantum well states in fe films. *Phys. Rev. Lett.*, 102(20) :207206, May 2009.

[3] J. Li, G. Chen, Y. Z Wu, E. Rotenberg, and M. Przybylski. Quantum well states and oscillatory magnetic anisotropy in ultrathin fe films. *IEEE Transactions on Magnetics*, 47(6) :1603–1609, June 2011.

[4] U. Bauer and M. Przybylski. Large amplitude oscillation of magnetic anisotropy engineered by substrate step density. *Phys. Rev. B*, 81(13) :134428, Apr 2010.

[5] M. Przybylski, M. Däbrowski, U. Bauer, M. Cinal, and J. Kirschner. Oscillatory magnetic anisotropy due to quantum well states in thin ferromagnetic films (invited). *Journal of Applied Physics*, 111(7) :07C102–07C102–6, February 2012.

[6] J. Li, M. Przybylski, Y. He, and Y. Z. Wu. Experimental observation of quantum oscillations of perpendicular anisotropy in fe films on ag(1,1,10). *Physical Review B*, 82(21) :214406, December 2010.

[7] C. E. ViolBarbosa, H. L. Meyerheim, E. Jal, J.-M. Tonnerre, M. Przybylski, L. M. Sandratskii, F. Yildiz, U. Staub, and J. Kirschner. Inhomogeneous temperature dependence of the magnetization in fcc-Fe on Cu(001). *Physical Review B*, 85(18) :184414, May 2012.

[8] Y. Z. Wu, C. Won, and Z. Q. Qiu. Magnetic uniaxial anisotropy of fe films grown on vicinal ag(001). *Physical Review B*, 65(18) :184419, April 2002.

[9] D. M. Schaller, D. E. Bürgler, C. M. Schmidt, F. Meisinger, and H.-J. Güntherodt. Spin reorientations induced by morphology changes in Fe/Ag(001). *Physical Review B*, 59(22) :14516–14519, June 1999.

[10] U. Bauer, M. Dabrowski, M. Przybylski, and J. Kirschner. Complex anisotropy and magnetization reversal on stepped surfaces probed by the magneto-optical kerr effect. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 323(11) :1501–1508, June 2011.

[11] H Hasegawa and Japan .Inst. for Solid State Phys., Tokyo Univ. Finite-temperature surface magnetism of fe(100). *Journal of Physics F : Metal Physics (1971-1988)*, 17(1) :165–183, 1987.

[12] C. Klein, R. Ramchal, M. Farle, and A. K. Schmid. Direct imaging of spin-reorientation transitions in ultrathin ni films by spin-polarized low-energy electron microscopy. *Surface and Interface Analysis*, 38(12-13) :1550 à 1553, 2006.

[13] M. Elsen, J. H. Gao, V. Repain, C. Chacon, Y. Girard, J. Lagoute, G. Rodary, J. Ferré, and S. Rousset. Discontinuous vs. continuous spin reorientation transition of magnetic films on vicinal surfaces. *EPL (Europhysics Letters)*, 88(2) :27006, October 2009.

[14] Jan Vogel, Alain Fontaine, Vincent Cros, Frédéric Petroff, Jean-Paul Kappler, Gérard Krill, Andrei Rogalev, and José Goulon. Structure and magnetism of Pd in Pd/Fe multilayers studied by x-ray magnetic circular dichroism at the Pd $l_{2,3}$ edges. *Physical Review B*, 55(6) :3663–3669, February 1997.

[15] C. L. Wooten, J. Chen, G. A. Mulhollan, J. L. Erskine, and J. T. Markert. Direct observation of enhanced magnetic moments in Fe/Ag(100). *Physical Review B*, 49(14) :10023–10026, April 1994.

[16] K. Amemiya, S. Kitagawa, D. Matsumura, H. Abe, T. Ohta, and T. Yokoyama. Direct observation of magnetic depth profiles of thin Fe films on Cu(100) and Ni/Cu(100) with the depth-resolved x-ray magnetic circular dichroism. *Applied Physics Letters*, 84(6) :936–938, February 2004.

[17] J. Tyson, A. H. Owens, J. C. Walker, and G. Bayreuther. Increases in magnetic hyperfine field at the surface of ultrathin epitaxial Fe film (invited). *Journal of Applied Physics*, 52(3) :2487–2489, March 1981.

[18] J. Korecki and U. Gradmann. In situ Mäussbauer analysis of hyperfine interactions near Fe(110) surfaces and interfaces. *Physical Review Letters*, 55(22) :2491–2494, November 1985.

[19] Emmanuelle Jal, Maciej Dabrowski, Jean-Marc Tonnerre, Marek Przybylski, Stéphane Grenier, Nicolas Jaouen, and Jürgen Kirschner. Magnetization profile across Au-covered bcc Fe films grown on a vicinal surface of Ag(001) as seen by x-ray resonant magnetic reflectivity. *Physical Review B*, 87(22) :224418, June 2013.

[20] S. Ohnishi, M. Weinert, and A. J. Freeman. Interface magnetism in metals : Ag/Fe(001). *Physical Review B*, 30(1) :36–43, July 1984.

[21] J. Izquierdo, A. Vega, L. C. Balbás, Daniel Sànchez-Portal, Javier Junquera, Emilio Artacho, Jose M. Soler, and Pablo Ordejón. Systematic ab initio study of the electronic and magnetic properties of different pure and mixed iron systems. *Physical Review B*, 61(20) :13639–13646, May 2000.

[22] Magali Benoit, Cyril Langlois, Nicolas Combe, Hao Tang, and Marie-José Casanove. Structural and electronic properties of the Au(001)/Fe(001) interface from density functional theory calculations. *Physical Review B*, 86(7) :075460, August 2012.

[23] J. A. C. Bland, C. Daboo, B. Heinrich, Z. Celinski, and R. D. Bateson. Enhanced magnetic moments in bcc Fe films. *Physical Review B*, 51(1) :258–272, January 1995.

[24] S. Blügel, B. Drittler, R. Zeller, and P. H. Dederichs. Magnetic properties of 3d transition metal monolayers on metal substrates. *Applied Physics A*, 49(6) :547–562, December 1989.

[25] C. L. Fu, A. J. Freeman, and T. Oguchi. Prediction of strongly enhanced two-dimensional ferromagnetic moments on metallic overlayers, interfaces, and superlattices. *Physical Review Letters*, 54(25) :2700–2703, June 1985.

[26] M. Przybylski, U. Gradmann, and K. Krop. Influence of coating materials on magnetic properties of thin iron films. *Hyperfine Interactions*, 57(1-4) :2045–2051, July 1990.

[27] 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. *Physical Review Letters*, 75(1) :152, July 1995.

[28] Z. Q. Qiu, J. Pearson, and S. D. Bader. Asymmetry of the spin reorientation transition in ultrathin fe films and wedges grown on ag(100). *Physical Review Letters*, 70(7) :1006–1009, February 1993.

[29] R. K. Kawakami, Ernesto J. Escorcia-Aparicio, and Z. Q. Qiu. Symmetry-Induced magnetic anisotropy in fe films grown on stepped ag(001). *Physical Review Letters*, 77(12) :2570, 1996.

[30] D. Wilgocka-Slezak, K. Freindl, A. Koziol, K. Matlak, M. Rams, N. Spiridis, M. Slezak, T. Slezak, M. Zajak, and J. Korecki. Thickness-driven polar spin reorientation transition in ultrathin Fe/Au(001) films. *Phys. Rev. B*, 81 :064421, Feb 2010.

[31] R. C. O'Handley and J. P. Woods. Static magnetization direction under perpendicular surface anisotropy. *Physical Review B*, 42(10) :6568–6573, October 1990.

[32] R. Allenspach, M. Taborelli, M. Landolt, and H. C. Siegmann. Surface precursor to magnetic-domain nucleation observed by secondary-electron spin polarization. *Physical Review Letters*, 56(9) :953–956, March 1986.

[33] Taizo Kawauchi, Katsuyuki Fukutani, Masuaki Matsumoto, Katsuro Oda, Tatsuo Okano, Xiao Wei Zhang, Shunji Kishimoto, and Yoshitaka Yoda. Surface magnetic canting of iron films. *Physical Review B*, 84(2) :020415, July 2011.

[34] S. Rusponi, T. Cren, N. Weiss, M. Epple, P. Buluschek, L. Claude, and H. Brune. The remarkable difference between surface and step atoms in the magnetic anisotropy of two-dimensional nanostructures. *Nature Materials*, 2(8) :546–551, August 2003.

[35] J. Geshev, A. GÃ$\frac{1}{4}$ndel, I. Zaharieva, and J. E. Schmidt. Edge atoms effects on the perpendicular anisotropy of ultrathin magnetic layers. *Applied Physics Letters*, 101(13) :132407–132407–4, September 2012.

[36] Kentaro Kyuno, Jae-Geun Ha, Ryoichi Yamamoto, and Setsuro Asano. First-principles calculation of the magnetic anisotropy energies of Ag/Fe(001) and Au/Fe(001) multilayers. *Journal of the Physical Society of Japan*, 65(5) :1334–1339, 1996.

[37] D. S. Chuang, C. A. Ballentine, and R. C. O'Handley. Surface and step magnetic anisotropy. *Physical Review B*, 49(21) :15084–15095, June 1994.

[38] M. Cinal and A. Umerski. Magnetic anisotropy of vicinal (001) fcc Co films : Role of crystal splitting and structure relaxation in the step-decoration effect. *Physical Review B*, 73(18) :184423, May 2006.

[39] M. S. Pierce, C. R. Buechler, L. B. Sorensen, S. D. Kevan, E. A. Jagla, J. M. Deutsch, T. Mai, O. Narayan, J. E. Davies, Kai Liu, G. T. Zimanyi, H. G. Katzgraber, O. Hellwig, E. E. Fullerton, P. Fischer, and J. B. Kortright. Disorder-induced magnetic memory : Experiments and theories. *Physical Review B*, 75(14) :144406, April 2007.

[40] M. S. Pierce, J. E. Davies, J. J. Turner, K. Chesnel, E. E. Fullerton, J. Nam, R. Hailstone, S. D. Kevan, J. B. Kortright, Kai Liu, L. B. Sorensen, B. R. York, and O. Hellwig. Influence of structural disorder on magnetic domain formation in perpendicular anisotropy thin films. *Physical Review B*, 87(18) :184428, May 2013.

Chapitre 5

Profil d'aimantation complexe et dépendance en température : Fe/Cu(100)

Sommaire

5.1 Le système Fe/Cu(100) : un archétype de distribution d'aimantation complexe . . . 160

5.1.1 Etat de l'art . . . 160

5.1.2 Apport des expériences SXRMR . . . 162

5.2 Expériences . . . 164

5.2.1 Préparation de l'échantillon . . . 164

5.2.2 XRMR : Conditions expérimentales et configurations . . . 164

5.2.3 Analyse qualitative . . . 166

5.3 Analyse quantitative . . . 168

5.3.1 Structure . . . 168

5.3.2 Modèle magnétique . . . 172

5.3.3 Discussion, Conclusion . . . 176

Bibliographie . . . 180

5.1 Le système Fe/Cu(100) : un archétype de distribution d'aimantation complexe

La croissance de films minces de fer sur du cuivre (100) par PLD permet en contraignant le paramètre de maille du Fe dans le plan à celui du cuivre, de stabiliser la phase γ-Fe cubique face centrée (fcc) [1]. Cependant, lorsque l'épaisseur de fer déposée sur le cuivre augmente, le paramètre de maille du fer se relaxe, modifiant ainsi la structure électronique du système, et donc les propriétés magnétiques [2]. L'orientation et la norme de l'aimantation de chaque monocouche dépendent : de leurs positions au sein de la couche, de la qualité des interfaces, de l'épaisseur globale du fer, et de la température. Les résultats obtenus pour des échantillons nominalement équivalents peuvent être complètement différents en fonction de la fabrication de ceux-ci. Cette très forte dépendance des propriétés magnétiques rend difficile des comparaisons de modèles magnétiques entre différents échantillons. Elle permet d'expliquer les désaccords sur la structure réelle des couches ultraminces de Fe/Cu(100) en fonction de leur épaisseur : ferromagnétique (FM), antiferromagnétique (AFM), paramagnétique, collinéaire, onde de densité de spin (SDW), etc., qu'on peut trouver dans la littérature existante. Après un résumé des différents modèles proposés au fil des années, nous essaierons de faire ressortir ce qui est acquis concernant l'aimantation des couches ultraminces de γ-Fe. Nous discuterons ensuite l'apport des premières expériences de réflectivité magnétique résonante de rayons X mous (SXRMR) combinées à de nouveaux calculs théoriques, sur ce système. Enfin, nous expliquerons quelles sont les questions qui restent à résoudre et les motivations d'une nouvelle expérience sur un échantillon de 6 monocouches de Fe/Cu(100).

5.1.1 Etat de l'art

Depuis le début de l'étude de films ultraminces de fer sur Cu(100) plusieurs transitions magnétiques ont été observées. Ces transitions magnétiques dépendent de l'épaisseur de Fe et de la température. Pour une épaisseur supérieure à 12 monocouches (MC) les phénomènes de relaxation induisent une structure cubique centrée (bcc) et l'épaisseur des films minces de Fe déposés sur du Cu(100) sera limitée à 10-12 MC afin de rester dans le domaine d'observation de Fe fcc. Dans ce domaine d'épaisseurs, il existe une transition de réorientation de spin en fonction de l'épaisseur [3] : l'aimantation passe d'une orientation hors du plan (O.P) à une orientation dans le plan (I.P), ou vice versa. Pappas *et al* [4] ont montré que cette transition pouvait avoir lieu entre basse et haute température, avec une orientation de l'aimantation qui passe de hors du plan à dans le plan lorsque la température augmente. Cette transition de réorientation de spin peut-être associée à la dynamique des domaines magnétiques [5, 6]. En effet, le changement d'aimantation O.P/I.P se fait de manière discontinue par propagation des parois. Cette propagation dépend de la température, de la structure et des défaults [7].

En plus de cette transition de réorientation de spin, les fortes contraintes engendrées par le substrat de Cu influent différemment la structure du Fe en fonction de son épaisseur. C'est à partir de 1992 qu'on voit apparaitre la notion de trois régions

où la structure, et donc le magnétisme sont différents [2, 8, 9, 10, 11, 12, 13]. Ces trois régions sont bien définies, et la structure de chacune d'entre elles dépend du mode de croissance des monocouches. Les différences d'épitaxies du Fe par PLD et MBE sur un substrat de Cu ont été étudiées par Jenniches *et al* [1], et les conséquences de ces différences sur le magnétisme de tels échantillons par Weilnelt *et al* [13]. Par MBE, le Fe bcc et fcc coexistent pour de faibles épaisseurs [14] tandis que par PLD cette coexistance de phases cristallographiques est plus faible [1, 14] mais un fort mélange interfacial existe [15]. Nos échantillons étant fabriqués par PLD, dans la suite, nous ne discuterons des régions magnétiques que pour ce type d'échantillons. La première région (I) concerne les films d'épaisseur inférieure à 4-5 MC. La structure est fortement contrainte par le cuivre, on parle de phase fcc tétragonalement distordue, fct. Cette gamme d'épaisseur peut être partagée en deux parties dans lesquelles l'aimantation ne varie à piori pas avec la température. L'une où l'aimantation est entièrement FM hors du plan pour une épaisseur comprise entre 0 et 2 mononcouches puis une autre où l'aimantation FM bascule dans le plan pour 3 à 4-5 MC [13]. La deuxième région (II) qui est la plus complexe et englobe les films de 4-5 MC à 10-11 MC, sera détaillée dans un paragraphe à part entière. La structure est fcc, et le profil d'aimantation dépend de l'épaisseur et de la température. Enfin la troisième région (III) inclue tous les échantillons Fe/Cu(100) qui ont une épaisseur supérieure à 10-12 MC. Comme nous l'avons déjà dit, leur structure est bcc car le fer n'est plus contraint par le cuivre et se relaxe. L'aimantation est alors comme dans un cristal massif de fer, FM dans le plan des monocouches.

De par la complexité de la structure magnétique lorsqu'on s'intéresse à des échantillons de la région II, de nombreuses études ont été réalisées. La caractéristique essentielle de cette aimantation est qu'elle présente une transition de réorientation de spin, et qu'une phase FM et AFM cohabitent (et ce quel que soit le mode de préparation). La phase FM se situe dans les deux couches supérieures, à la surface, tandis que la phase AFM se situe dans les couches internes. Bien que certains scientifiques aient cru que la phase AFM était une phase paramagnétique [2], il a été montré ensuite qu'il s'agissait bien d'une structure AFM. Cette caractéristique a été observée expérimentalement, [3, 8, 10, 11] et théoriquement [16, 9, 17]. Cependant cette phase AFM a posé de nombreuses questions.

La transition de réorientation de l'aimantation dépend beaucoup de la température et de l'épaisseur [9, 16]. L'aimantation est hors du plan à basse température et devient dans le plan à haute température [8, 13] avec une température de transition diminuant lorsque l'épaisseur diminue [2]. D'après Spisak et Hafner, [16], la complexité de la transition de phase est due à la compétition entre phase FM et AFM.

Ce qui est plus ambigü c'est la collinéarité ou non des moments magnétiques au sein des différentes couches. La proposition d'une onde de densité de spin a été faite par Qian *et al* en 2001 [10]. Cette idée est démentie l'année d'après par Spisak et Hafner [11] qui affirment qu'une onde de densité de spin est énergétiquement défavorable et instable si on mesure la densité locale de spin. Cependant cette hypothèse d'onde de densité de spin a été appuyée ensuite par les travaux théoriques de Shallcross *et al* [17] qui retrouvent bien une telle onde pour des volumes compressés. Le profil

d'aimantation interne d'un échantillon de la région 2 n'est donc pas déterminé sans ambiguité et le tableau 5.1 présente un résumé des propriétés des trois régions.

Région	**I**	**II**	**III**
Epaisseurs (en MC)	≤ 4	$5 \leq t \leq 11$	≥ 11
Structure	fct	fcc	bcc
Profil magnétique	FM	surfaces : FM (2 MC) internes : Ondes de spins ? AFM ?	FM
Orientation magnétique	O.P jusqu'à 2 MC I.P ensuite	O.P à basse température I.P à haute température	I.P

Table 5.1 – Profil d'aimantation dans les films ultraminces de Fe/Cu(100) (MC=monocouches)

5.1.2 Apport des expériences SXRMR

Dans le but de tester l'hypothèse d'une onde de densité de spin dans un film mince de Fe sur du Cu(100), des expériences de SXRMR ont été effectuées. Ces expériences ont montré qu'à basse température pour des couches de 6 et 8 monocouches, où l'aimantation peut être hors du plan, les moments magnétiques étaient effectivement non colinéaires, mais ne suivaient pas le modèle d'une onde de densité de spin [18]. Ce modèle expérimental est également valide à température ambiante pour une couche de 6 monocouches de Fe où l'aimantation est entièrement dans le plan. Comme pour les résultats précédents, l'analyse quantitative montre que les deux monocouches surfaciques de Fe sont FM puis qu'il y a ensuite une couche colinéaire à ces deux premières couches, mais avec une direction d'aimantation opposée, et enfin un empilement de couches AFM deux à deux. Pour 6 monocouches de Fe sous champ appliqué longitudinalement, à température ambiante le modèle peut-être schématisé comme sur la figure 5.1.

Ce modèle découle du fit des données expérimentales mesurées à plusieurs énergies aux seuils L_3 et L_2. La figure 5.1 montre les asymétries expérimentales obtenues pour deux énergies de 707.1 et 707.9eV, le meilleur ajustement, ainsi que les courbes calculées obtenues pour différents modèles. Cette figure illustre comment au delà de $q = 4nm^{-1}$ on peut aisément séparer le modèle décrit ci-dessus (figure 5.1) d'un modèle où tous les moments sont FM, et un modèle où tous les moments sont AFM.

La caractéristique principale de ce modèle qui permet de reproduire l'essentiel de l'asymétrie est liée aux trois couches supérieures et à un changement de signe alterné de l'aimantation des couches internes. Les calculs théoriques de Sandratski [19] permettent de montrer que l'aimantation peut être regroupée par blocs magnétiques au sein desquels les constantes de couplage d'échange intercouches sont très fortes par rapport aux constantes de couplage d'échange intercouches entre deux blocs.

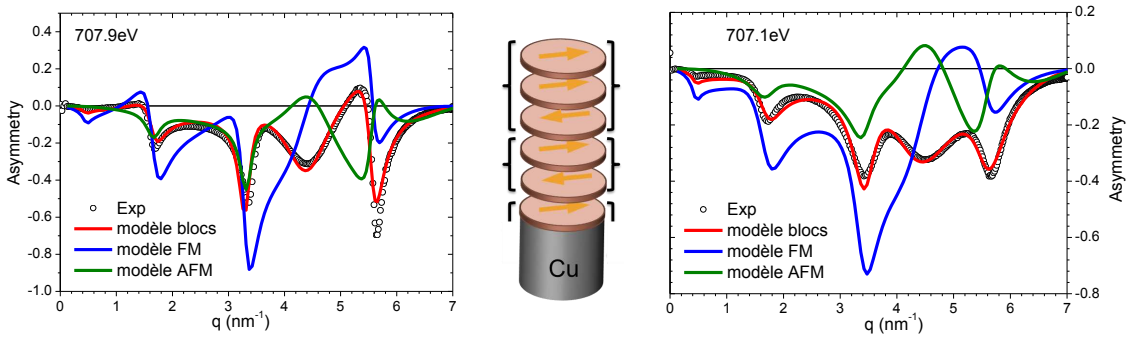


FIGURE 5.1 – Courbes expérimentales en noir et courbes théoriques obtenues pour différents modèles. Modèle FM en bleu, modèle AFM en vert et modèle de blocs présenté au milieu en rouge, pour deux énergies de 707.9eV à gauche,e t 707.1eV à droite

Le bloc supérieur contient trois couches. Les deux premières sont FM tandis que la troisième est couplée antiferromagnétiquement. Les blocs suivants contiennent deux couches AFM. Les blocs peuvent être couplés ferromagnétiquement ou antiferromagnétiquement entre eux. Ce couplage inter-blocs dépend des défauts et pourrait expliquer les nombreux modèles suggérés pour la structure magnétique en dessous des deux premières couches FM. Cette description théorique de blocs permet de décrire les asymétries expérimentales pour des films de 6 et 8 monocouches à basse température et est développée dans le paragraphe suivant.

La théorie de Sandratski [19] s'appuie sur la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT pour Density functional theory) ainsi que celle des ondes sphériques augmentées qui permettent de calculer la structure de bande. Cette théorie est appliquée à l'hamiltonien d'Heisenberg (équation 1.21) afin de calculer les constantes de couplage d'échange J_{ij} intra et inter couches en minimisant l'énergie qui prend en compte l'angle entre les moments magnétiques, c'est à dire en permettant l'apparition d'un modèle non collinéaire. Ce modèle montre que si on prend un paramètre de Fe égal à celui du Cu, il y a minimisation de l'énergie pour un modèle de blocs décrit dans le paragraphe précédent. Les blocs sont libres de tourner les uns par rapport aux autres, mais sans périodicité, et avec une aimantation parfaitement colinéaire au sein de ces blocs.

La connaissance des constantes de couplage entre les différentes couches permet de valider le modèle de blocs, mais aussi de prédire le comportement des moments magnétiques en fonction de la température. Dans l'approximation du champ moyen on peut exprimer J_{ij} en fonction des moments magnétiques m_i et m_j ainsi que de la température T.

$$\langle m_i \rangle = L\left(\frac{1}{k_B T}\sum_j J_{ij}\langle m_j \rangle\right) \text{ avec } L(a) = \coth(a) - \frac{1}{a} \tag{5.1}$$

où k_B est la constante de Boltzman et L la fonction de Langevin.

A partir de cette expression, la connaissance des J_{ij} permet de dériver le comportement des moments magnétiques en fonction de la température. Il est donc tentant de conduire une expérience permettant de mesurer l'évolution de l'asymétrie magnétique à plusieurs températures. Afin de résoudre le comportement de l'aimantation de chaque couche magnétique en fonction de la température, une nouvelle série de mesures a été effectuée sur un échantillon de 6 MC de Fe déposé sur un substrat de Cu(100). Pour une épaisseur de 6 MC, l'aimantation au sein du Fe reste dans le plan pour une large gamme de température à rémanence d'un champ appliqué dans le plan.

5.2 Expériences

L'échantillon a été élaboré au Max Planck Institut for Microstrucrurphysic par Carlos Viol Barbosa, puis recouvert d'une couche d'Au afin d'être étudié par SXRMR au synchrotron de l'institut Paul Scherrer : SLS sur la ligne de lumière SIM.

5.2.1 Préparation de l'échantillon

Dans un échantillon de Fe/Cu(100), le désaccord du paramètre de maille du Fe avec le Cu est très important, et il faut éviter au maximum les relaxations. Pour cela, une croissance couche par couche, favorisée par PLD plutôt que MBE, est effectuée.

Le dispositif de croissance utilisé est celui décrit dans le chapitre 3. Le substrat de Cu(100) a été nettoyé par des cycles de pulvérisation d'ions d'Argon suivis d'un recuit à 870K. Les images LEED et STM montrent une bonne cristallisation, et la spectroscopie Auger, une bonne composition. Les 6 monocouches de Fe sont ensuite déposées à température ambiante par PLD [1]. Les atomes éjectés vont ensuite se déposer sur le substrat de cuivre qui est à une distance de $100 - 130mm$ de la cible. L'échantillon est ensuite recouvert de $4.5nm$ d'Au afin d'éviter son oxydation lors de son passage à l'air pour effectuer des expériences de SXRMR. Grâce au MOKE in situ, nous savons que cette couche protectrice ne modifie pas les propriétés magnétiques de l'échantillon et que la température de Curie est aux environs de 308K, c'est à dire proche de la température ambiante.

5.2.2 XRMR : Conditions expérimentales et configurations

Le fer fcc a quatre axes de facile aimantation selon les directions [100], [010], [$\bar{1}$00], et [0$\bar{1}$0]. Afin d'être sensible à une possible composante non collinéaire, ou a une rotation dans le plan de l'aimantation, la direction [110] a été placée dans le plan de diffraction, et les configurations Π et Cpm ont été utilisées (figure 5.2). Etant donné qu'on ne s'intéresse qu'à l'aimantation dans le plan, et que sur le dispositif de la ligne SIM, il n'y a pas d'aimantation variable, le champ magnétique extérieur a été appliqué longitudinalement ou transversalement grâce à un aimant permanent de $\mu_0 H = 0.2T$.

Les mesures ont été faites pour 5 températures différentes : 20K, 60K, 200K, 250K et 300K (température ambiante) en utilisant les configurations $\Pi lonrem$, et

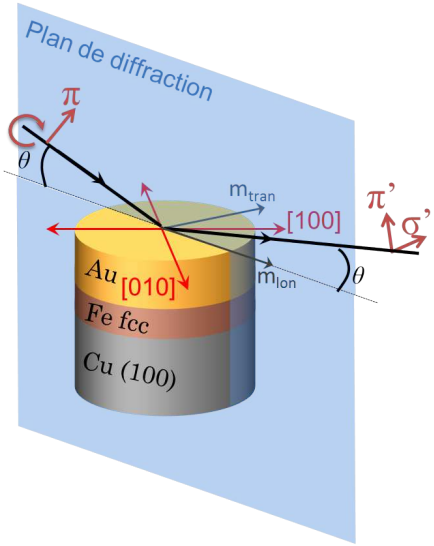


FIGURE 5.2 – Positionnement des axes cristallographiques de l'échantillon de 6 monocouches de Fe/Cu(100) par rapport au plan de diffraction, et configurations expérimentales

Cpmlonrem. Les configurations Π*tranrem* et *Cpmtranrem* n'ont pû être réalisées que pour les températures de 20K et 300K.

Afin de connaître les énergies les plus pertinentes pour faire nos mesures, un scan en énergie est effectué à température ambiante avec une polarisation circulaire à un angle $\theta = 6^\circ$ et $2\theta = 12^\circ$ (figure 5.3). Ce spectre en énergie a une forme de spectre

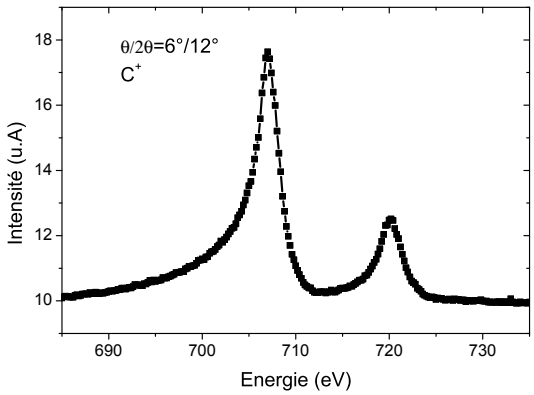


FIGURE 5.3 – Spectre en énergie obtenue en réflectivité pour $\theta/2\theta = 6^\circ/12^\circ$ à température ambiante pour une polarisation circulaire

d'absorption dans lequel les pics L_3 et L_2 sont visibles. Toutefois, la forme en pente douce qui s'étend loin sous 700eV est une indication que c'est la partie réelle qui domine. Les mesures de réflectivité ont été effectuées à des énergies de 709eV et 720eV pour toutes les températures ainsi qu'à des énergies de 707eV, 708eV, pour

20K et 300K. La figure 5.4 montre les réflectivités expérimentales obtenues à 20K avec une polarisation C^+ pour différentes énergies. La comparaison de ces différentes courbes permet d'illustrer les fortes variations de la réflectivité dues aux paramètres résonants et l'importance d'avoir une énergie bien définie.

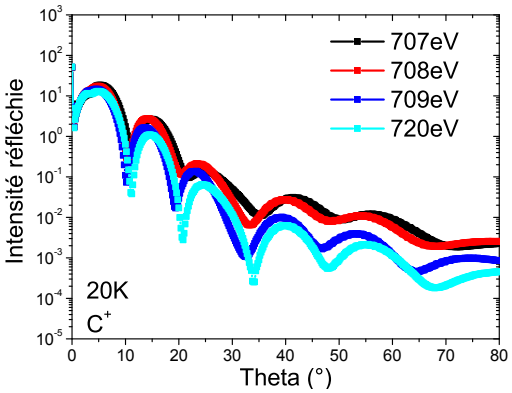


FIGURE 5.4 – Réflectivités obtenues pour plusieurs énergies à 20K avec une polarisation C^+

Aucune mesure n'a été faite loin des seuils d'absorption pour la structure car cet échantillon ayant une épaisseur unique, des expériences de réflectivité de rayons X durs ont été effectuées à l'institut Néel. Ces expériences sont beaucoup plus faciles d'accès car elles se font en laboratoire en utilisant un tube à rayons X. L'énergie des rayons X utilisés est de 8048eV (raie K_α du Cu).

5.2.3 Analyse qualitative

La courbe de réflectivité obtenue pour des rayons X durs de 8048eV présente des pics à grands $\vec{q}$ qui permettent de calculer les distances interatomiques de l'Au et du Cu (figure 5.5). En utilisant la relation de Bragg on trouve des distances interatomiques $d_{Au} = 2.3562$Å et $d_{Cu} = 1.8075$Å. Pour le Fe la distance interatomique est difficile à déterminer car le pic de diffraction du film de Fe qui présente une épaisseur inférieure à celles de l'Au et du Cu est très large et à une position proche du pic du Cu (il est donc caché sous celui du Cu). Ces données sont en accord avec les valeurs théoriques et indiquent que la couche de Fe est composée d'atomes ayant une distance interatomique similaire à celle du Cu. Les épaisseurs des couches d'Au et de Fe, qui sont assez proches, seront déterminées par l'analyse quantitative.

La figure 5.6 montre l'évolution des asymétries obtenus en configuration $Cpmlonrem$ et $\Pi lonrem$ en fonction de la température. La présence d'un signal d'asymétrie non nul quelle que soit la température dans la configuration $Hpmlonrem$ et $\Pi lonrem$ indique qu'il y a une composante d'aimantation longitudinale et transverse, respectivement, c'est-à-dire que l'aimantation a tourné dans le plan par rapport à la direction longitudinale pour s'aligner selon les axes de facile aimantation. Ces axes de facile aimantation étant équivalents, il devrait y avoir autant de domaines où l'aimantation est alignée selon l'axe [100] que de domaines où l'aimantation est alignée

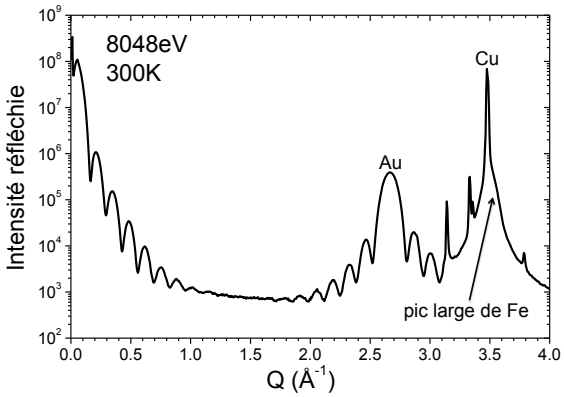


FIGURE 5.5 – Réflectivités obtenues pour des rayons X durs (8048eV), permettant de mettre en évidence des pics de diffraction dû au Cu, à l'Au et au Fe

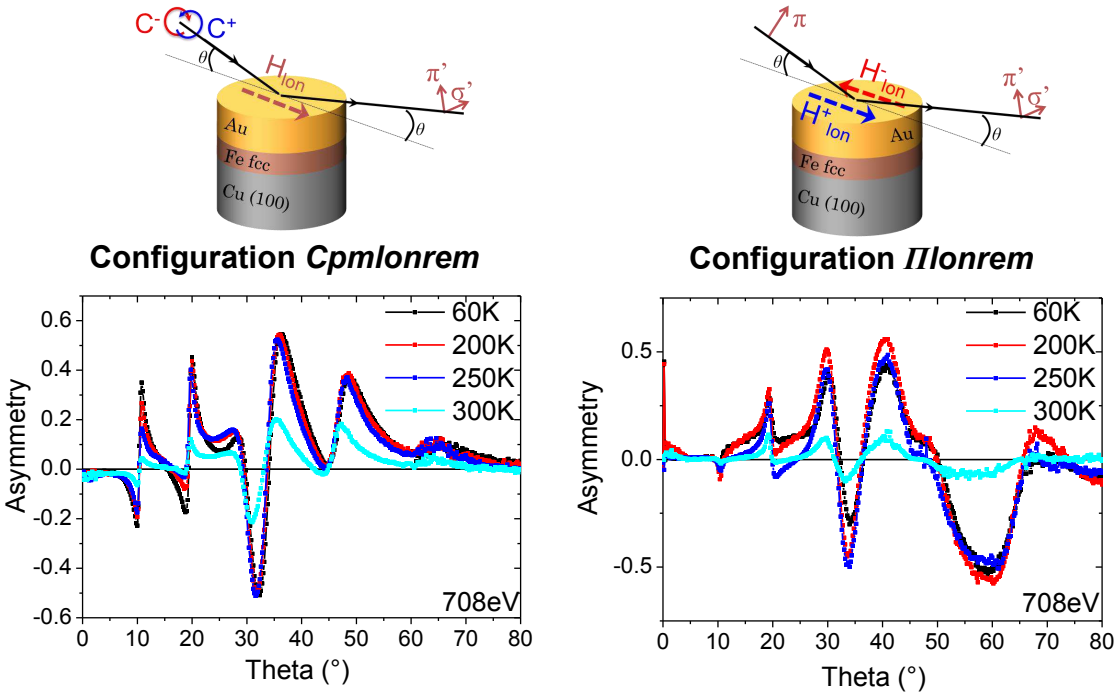


FIGURE 5.6 – Asymétries obtenues en configuration *Cpmlonrem* à gauche, et Π*lonrem* à droite, pour des températures de 60K, 200K, 250K et 300K, à une énergie de 708eV

selon l'axe [010], ce qui impliquerait que les composantes transverses s'annulent, et il ne devrait pas y avoir d'asymétrie Π*lonrem* (figure 5.8). Cependant pour des raisons d'alignement imparfait et de défauts de cristallinité de la couche, la présence d'une composante transverse de l'aimantation peut être due à une répartition inégale des domaines magnétiques.

Comparer pour chaque température la valeur du signal d'asymétrie *Cpmlonrem* et Π*lonrem* permet de remonter aux poids respectifs de ces domaines. Plus l'asymétrie

$\Pi lonrem$ est grande par rapport à l'asymétrie $Cpmlonrem$, plus un type de domaine est favorisé (si on considère qu'au sein de chaque domaine le profil en profondeur est identique). La comparaison entre les asymétries $\Pi lonrem$ et $\Pi tranrem$ permet de renforcer ce raisonnement. Comme on peut le voir sur la figure 5.7, ce rapport

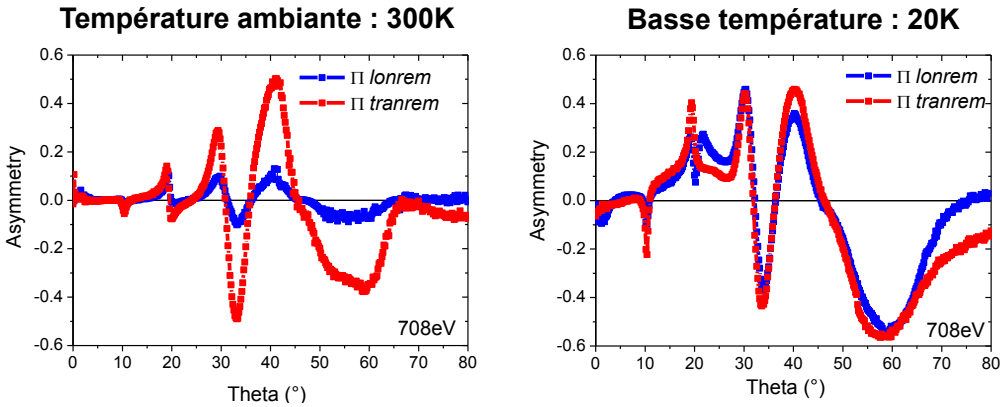


FIGURE 5.7 – Asymétries obtenues en configuration $\Pi tranrem$ et $\Pi lonrem$ à température ambiante à gauche, et basse température (20K) à droite pour une énergie de 708eV

n'est pas le même à température ambiante et basse température, et le fait que les asymétries $\Pi lonrem$ et $\Pi tranrem$ soient presque les mêmes à basse température signifie que la résultante de l'aimantation est à 45° des directions longitudinale et transverse, c'est à dire selon l'axe [100]. Cela signifie qu'il y a un domaine unique à basse température, et que le nombre de domaines augmente avec la température. En effet, à température ambiante le signal d'asymétrie $\Pi tranrem$ est bien plus fort que celui $\Pi lonrem$. Ceci peut être expliqué par le raisonnement suivant. Si on prend le cas parfait d'une équirépartition à rémanence d'un champ transverse, l'aimantation s'aligne selon les directions [100] et [0$\bar{1}$0] et la composante transverse à laquelle on est sensible en configuration Π est la même pour les deux domaines d'aimantation (figure 5.8). A rémanence d'un champ longitudinal, l'aimantation s'aligne selon les directions [100] ou [010] et pour ces deux domaines magnétiques, les composantes transverses s'annulent (figure 5.8).

L'analyse qualitative permet d'affirmer qu'il y a une évolution de l'aimantation avec la température, et qu'il y a des domaines magnétiques répartis différemment le long des axes de faciles aimantation [100] et [010] selon la température.

5.3 Analyse quantitative

5.3.1 Structure

Pour analyser les mesures faites au laboratoire avec des rayons X de 8048eV on peut utiliser un programme spécifique nommé Ref2000 [20], ou bien utiliser DYNA. La figure 5.9 montre le bon accord entre la courbe théorique et la courbe

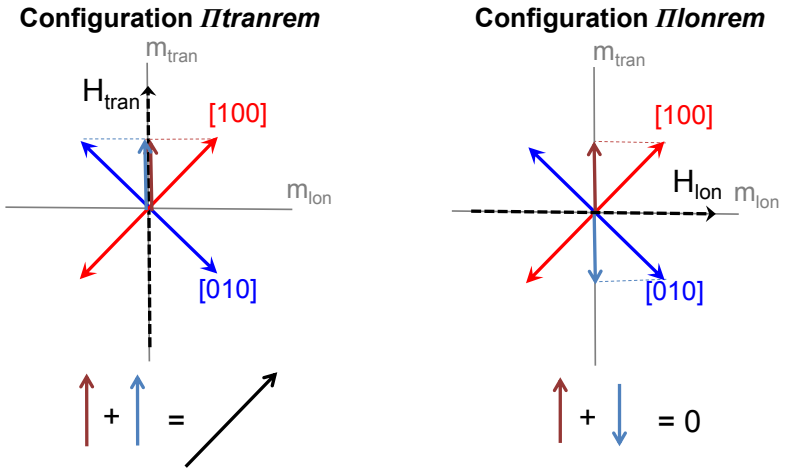


FIGURE 5.8 – Schéma des composantes transverses et longitudinales de l'aimantation à rémanence d'un champ transverse (gauche) ou longitudinal (droite)

expérimentale, et donne les paramètres structuraux qui ont permis d'obtenir ce bon ajustement.

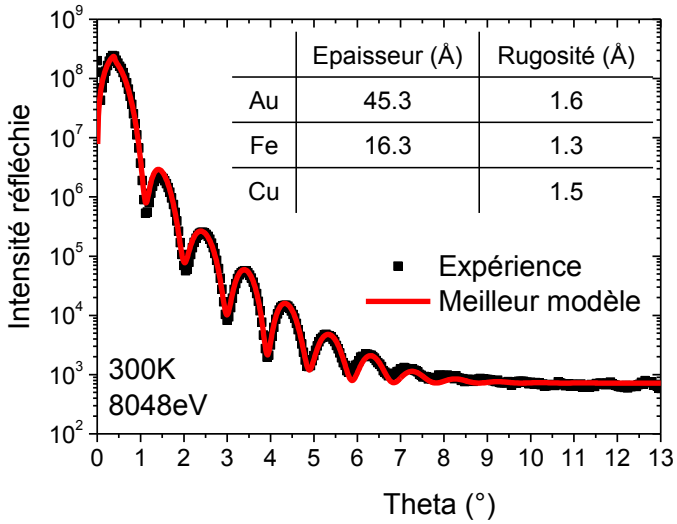


FIGURE 5.9 – Accord entre la courbe de réflectivité expérimentale obtenue à température ambiante avec des rayons X durs (8048eV) et la courbe théorique de Dyna. Insert, paramètres permettant ce bon accord

A partir de ce modèle structural, on peut simuler la dépendance en énergie d'un spectre de réflectivité réalisé afin de calibrer la ligne en énergie. Pour cela le scan en énergie, effectué expérimentalement pour un angle $\theta = 6^\circ$ et un angle $2\theta = 12^\circ$, est comparé à la courbe théorique. L'accord entre la courbe expérimentale et la courbe théorique est bon pour un décalage en énergie de 1eV$\pm$0.2 (figure 5.10). Les mesures effectuées à la SLS sur la ligne SIM ont donc des énergies théoriques décalées d'un électronvolt par rapport aux valeurs expérimentales.

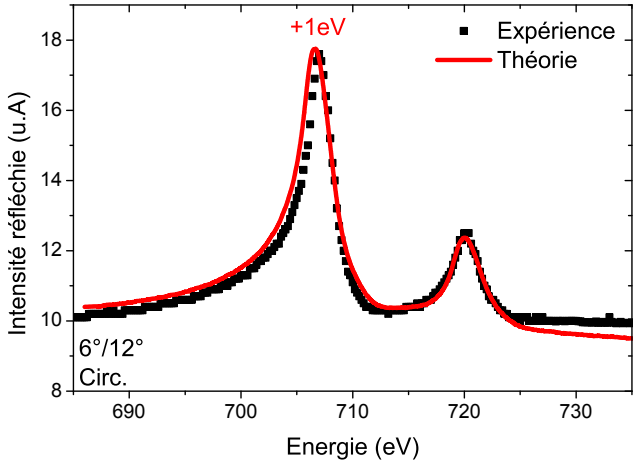


FIGURE 5.10 – Décalage en énergie de +1eV pour faire correspondre la courbe expérimentale obtenue pour un angle $\theta/2\theta = 6/12^{\circ}$ à la courbe théorique obtenue à partir du modèle structural dérivé du fit de la réflectivité à 8048eV.

Cela signifie que les mesures n'ont pas été faites à 707, 708, 709 et 720eV mais à 706, 707, 708, et 719eV. Dans la suite on emploiera uniquement les valeurs des énergies réelles.

Pour ces énergies près de la résonance, les paramètres structuraux sont obtenus en affinant la réflectivité moyenne. Le tableau 5.2 donne les moyennes des résultats extraits de l'analyse de la réflectivité collectée à plusieurs énergies et à deux températures. La figure 5.10 montre le meilleur accord trouvé pour une énergie de 708eV.

	Température ambiante	Basse température
Au, t, (Å)	45.6 +/- 0.6	45.4 +/- 0.3
Fe, t, (Å)	15.8 +/- 0.7	15.9 +/- 0.9
Au, r, (Å)	1.6 +/- 0.5	1.7 +/- 0.4
Fe, r, (Å)	1.4 +/- 0.3	1.4 +/- 0.4
Cu, r, (Å)	3.3 +/- 0.5	3.3 +/- 0.9

TABLE 5.2 – Paramètres structuraux moyennés pour différentes énergies à basse température (20K) et température ambiante. t=épaisseur, r=rugosité

Les valeurs obtenues à température ambiante et à 20K sont très proches montrant que les conditions d'expérience à basse température étaient excellentes puisqu'il n'y a pas d'effet de contamination de la surface. Ces résultats sont en très bon accord avec ceux obtenus à 8048eV. On peut toutefois noter une apparente réduction de l'épaisseur de Fe et une valeur de la rugosité à l'interface Fe/Cu plus élevée. Ces écarts sont attribués d'une part au fait que Fe et Cu ont un pouvoir diffusant très

proche (alors que celui de l'Au est plus élevé) et d'autre part que pour des mesures à la résonance le contraste entre Fe et Cu est amplifié. La réduction de l'épaisseur de Fe et l'augmentation de la rugosité vont dans le sens d'une interdiffusion à l'interface Fe/Cu importante. Ce résultat est en accord avec les études précédentes [15] pour des échantillons préparés par PLD et sera spécifiquement considéré par la suite.

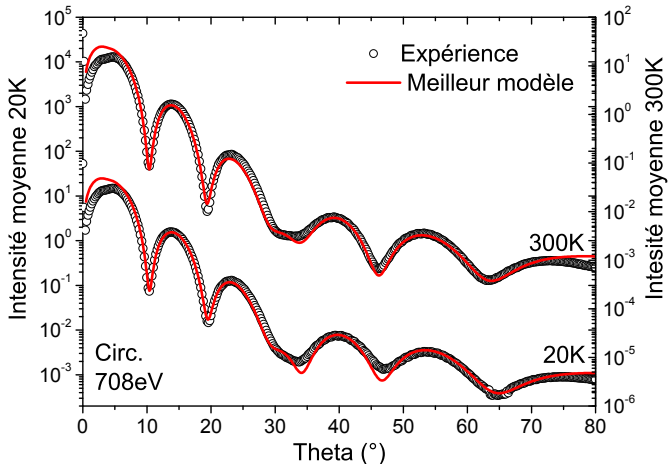


FIGURE 5.11 – Accord entre les courbes de réflectivité moyennes expérimentales obtenues à 300K et 20K à 708eV et la courbe théorique de Dyna

En effet si on compare l'épaisseur de la couche de Fe (15.8Å) avec celle attendue pour 6 MC de Fe fcc ($\approx 6 * 1.8 = 10.8$Å) on note une grande différence. Les oscillations RHEED observées au cours de la préparation indique que 6 couches de Fe ont été déposées. Il apparait donc que pour cet échantillon les premières étapes de croissance ont conduit à une couche interdiffusée épaisse. Au lieu de modéliser une rugosité entre le Fe et le Cu, on peut aussi affiner la réflectivité en considérant une couche de Fe_xCu_{1-x} entre la couche de Cu et de Fe avec des rugosités de 0 entre ces couches. Les paramètres à ajuster sont alors l'épaisseur de l'Au, les épaisseurs des 5 couches de Fe pur, l'épaisseur de la couche mixte FeCu, la rugosité Air-Au, la rugosité Au-Fe, et la mixité FeCu, c'est à dire le paramètre x. L'accord trouvé entre la courbe expérimentale et la courbe du meilleur modèle pour une énergie de 708eV est montré sur la figure 5.12 et est plutôt bon, même si le creux à $\theta = 30^\circ$ est moins bien reproduit. La moyenne des paramètres obtenus pour les différentes énergies et températures est donnée dans le tableau 5.3, et la composition de la couche FeCu est de 50%. Les tentatives pour déterminer un éventuel gradient de composition en profondeur n'ont pas amélioré le résultat.

Ce nouveau type de modèle structural, introduisant l'interdiffusion plutôt que la rugosité à l'interface Fe/Cu est celui qui sera adopté pour analyser les asymétries et dériver les propriétés magnétiques. Dès lors, nous ne chercherons pas à optimiser le nombre de tranches mais nous considèrerons un modèle de profil magnétique au plus prêt de l'empilement des couches atomiques (5 couches de Fe et une couche interdiffusée).

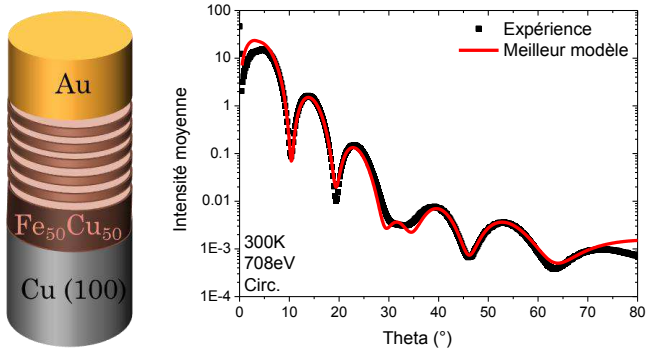


FIGURE 5.12 – Accord entre la courbe de réflectivité moyenne expérimentale obtenue à 300K pour une énergie de 708eV et la courbe théorique de Dyna pour un modèle d'interdiffusion FeCu et 5 monocouches de Fe de 1.8Å

	Densité (g/cm^3)	Epaisseur (Å)	Rugosité (Å)
Au	19.9±0.6	45.5±0.5	1.7±0.3
Fe	7.8±0.7	5 ×[1.78 à 1.82]	0.3±0.3
Fe_xCu_{1-x}		5.80±0.20	x=0.50±0.05
Cu	8.96	∞	

TABLE 5.3 – Paramètres structuraux pour le modèle d'interdiffusion du Fe et du Cu

5.3.2 Modèle magnétique

Première analyse

Cette étude est la suite d'une étude ayant montré que pour 6 monocouches de Fe/Cu(100) il fallait partager la couche de Fe en 6 couches magnétiques pour fitter les données avec un modèle par blocs [18, 19] (figure 5.1). On utilise donc ce modèle en considérant initialement des moments magnétiques ayant une valeur normalisée de $1|1|\bar{1}|1|\bar{1}|1$ de la surface (Au-Fe) au substrat. La forme de l'asymétrie calculée ressemble à la forme de l'asymétrie expérimentale et on peut ajuster ces 6 paramètres. Un premier ajustement est effectué en utilisant la configuration *Cpmlonrem* avec les angles $\varphi = \gamma = 90^\circ$. L'accord est plutôt bon, mais étant donné qu'à rémanence d'un champ longitudinal il y a aussi un signal pour une asymétrie Π*lonrem*, cela signifie qu'il y a une petite composante magnétique transverse, et donc un angle $\gamma \neq 90^\circ$. Avec les moments normalisés trouvés, on ajuste donc la courbe théorique Π*lonrem* à la courbe expérimentale en ne bougeant que l'angle γ de chaque couche. Le meilleur accord est trouvé pour un angle constant d'environ 82°±5. Avec cet angle, les 6 normes des moments magnétiques sont de nouveaux ajustées en configuration *Cpmlonrem*. L'accord entre les courbes expérimentale et théorique, ainsi que la valeur des paramètres est montré sur la figure 5.13.

Afin de s'assurer qu'un modèle plus simple ne permet pas de faire correspondre

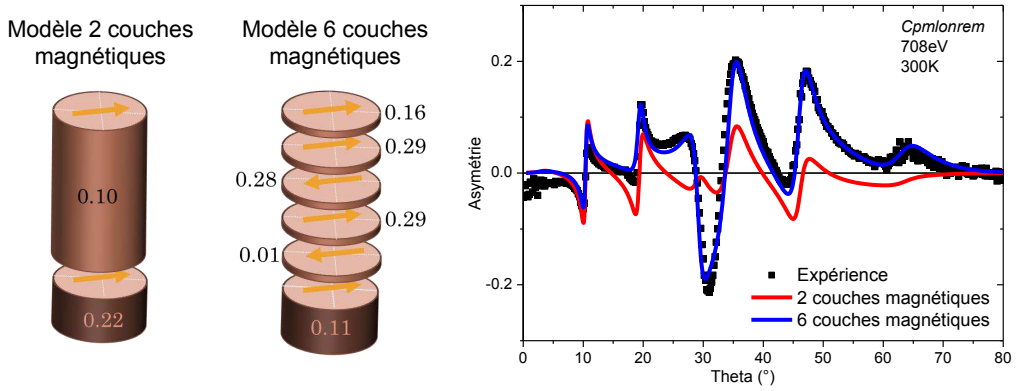


FIGURE 5.13 – Accord entre les courbes d'asymétries expérimentales obtenue à 300K pour une énergie de 708eV en configuration *Cpmlonrem* et la courbe théorique de Dyna pour deux modèles magnétiques différents

la courbe théorique aux données expérimentales, on essaie un modèle avec une seule couche magnétique de Fe pur, et une couche magnétique de FeCu (modèle 2 couches magnétiques). Comme on peut le voir sur la figure 5.13 où l'angle $\gamma = 82^{\circ}$ est toujours considéré, l'accord n'est pas bon.

De plus, pour vérifier l'unicité du modèle de 6 couches magnétiques montré sur la figure 5.13, on regarde l'accord entre les courbes théoriques obtenues en changeant uniquement la configuration et/ou l'énergie, et les courbes expérimentales obtenues à 708eV en configuration Π*lonrem* et 719eV en configuration *Cpmlonrem*. La figure 5.14 montre que la comparaison expérience/simulation pour les deux configurations est assez satisfaisante alors qu'il n'y a pas eu d'ajustement, ce qui permet de valider le modèle.

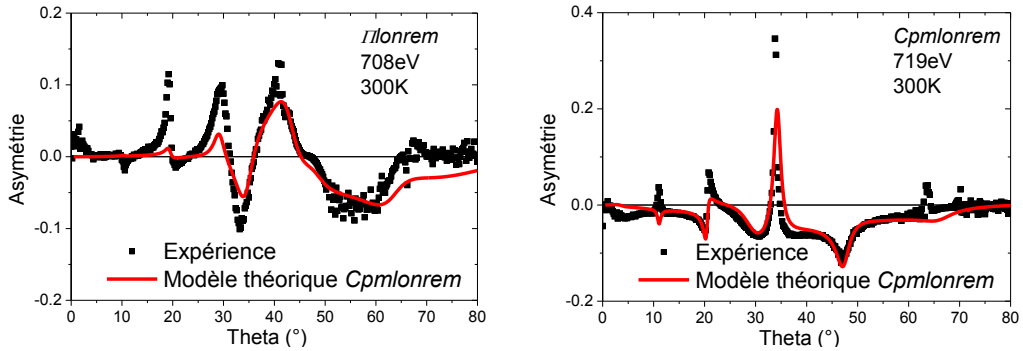


FIGURE 5.14 – Accord entre les courbes d'asymétries expérimentales obtenue à 300K en configuration Π*lonrem* à une énergie de 708eV (gauche) et *Cpmlonrem* avec une énergie de 719eV (droite) et la courbe théorique de DYNA obtenue pour le même modèle que *Cpmlonrem* à 708eV

Enfin, une dernière vérification peut être effectuée concernant l'homogénéité de l'angle γ pour les 6 couches magnétiques. Pour cela on compare des modèles dont

les angles et les *mms* n'ont pas été ajustés. Les modèles sont constitués de *mms* égaux à $1|1|\bar{1}|1|\bar{1}|1$ (de la surface vers le substrat), et de comportements d'angles γ différents. Trois modèles ont été testés en configuration Π*lonrem* à une température de 60K où le signal Π*lonrem* est le plus grand. Un modèle où tous les angles γ sont égaux (à gauche sur la figure 5.15) ; un modèle où les deux premières couches FM sont alignées selon la direction longitudinale, et les couches AFM suivantes ont tourné avec un même angle γ, modèle (a) de la figure 5.15 ; et un modèle où les deux premières couches FM sont alignées selon la direction longitudinale, et les autres couches se distribuent autour de cette axe, modèle (b) de la figure 5.15. Pour les modèles a et b, les courbes théoriques n'ont absolument pas la même forme que la courbe expérimentale, alors que le modèle γ constant donne une forme d'asymétrie semblable à la courbe expérimentale, comme on peut le voir sur la figure 5.15. Sans

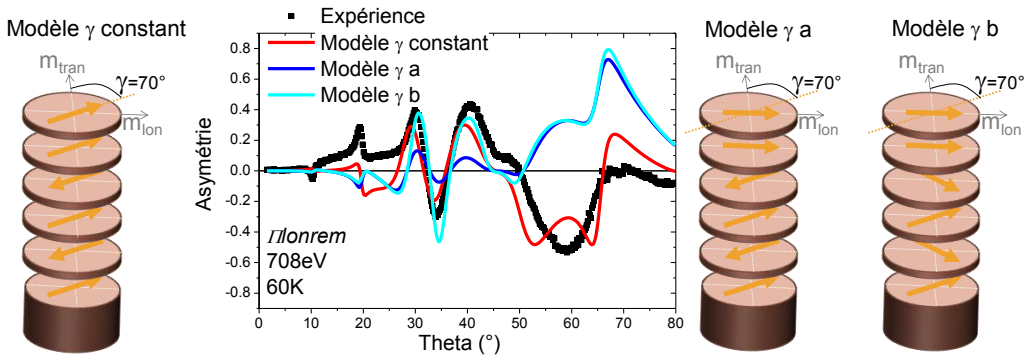


FIGURE 5.15 – Comparaison entre la courbe d'asymétrie expérimentale obtenue à 60K pour une énergie de 708eV en configuration Π*lonrem* et différents modèles d'angles gamma : constant (rouge), schéma de gauche ; modèle a (bleu) et modèle b (cyan) (voir texte)

affinement, le meilleur modèle est donc celui avec un angle γ constant. L'homogénéité de l'angle γ est donc confirmée et les ajustements effectués précédemment sont valides. L'apparition d'un angle γ constant peut être interprétée comme la présence de domaines non equirépartis, comme expliqué dans la partie analyse qualitative.

Pour les autres températures, le même raisonnement que celui qu'on vient d'effectuer à température ambiante a été mené. Un bon accord entre les courbes expérimentales et théoriques a été trouvé comme montré sur la figure 5.16 (a) pour la configuration Π*lonrem* à 708eV. L'analyse de ces donnés expérimentales permet de dériver l'angle γ correspondant à la répartition des domaines en fonction de la température (figure 5.16 (b)). A partir de la valeur de l'angle γ on peut donc remonter à la composition des domaines, et voir que plus la température diminue, plus la proportion de domaines dont l'aimantation est alignée selon la direction [100] est grand (figure 5.16 (c)).

Dans le cadre des affinements présentés sur la figure 5.16 les 6 *mms* ainsi que l'angle γ sont ajustés pour chaque température. Il est difficile de commenter les varations des *mms* de chaque couche pour les différentes températures, puisque la

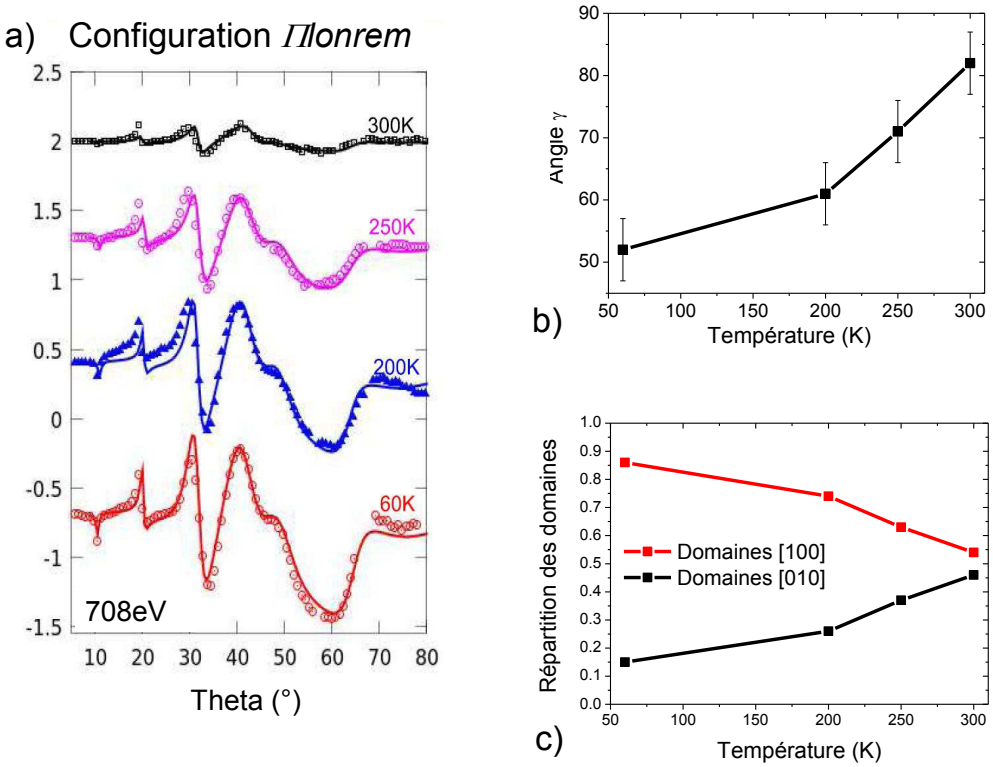


FIGURE 5.16 – Accord entre les courbes expérimentales et théoriques obtenues à 708eV en configuration Π*lonrem* pour des températures de 300K, 250K, 200K, et 60K (a). Les valeurs de γ permettant un bon accord sont données dans le graphe (b), et peuvent être interprétées comme la présence de domaines, ce qui permet de remonter à leur répartition en fonction de la température (c).

barre d'erreur est assez grande. Il faudrait donc pouvoir réaliser un fit simultané de l'ensemble des données tout en réduisant le nombre de paramètres.

Deuxième analyse : utilisation des constantes de couplage d'échange

Nous avons vu qu'une étude théorique des constantes de couplage inter-couches permet de valider le modèle de blocs, mais aussi de prédire le comportement des moments magnétiques en fonction de la température, puisque dans l'approximation du champ moyen on peut écrire :

$$\langle m_i \rangle = L\left(\frac{1}{k_B T}\sum_j J_{ij}\langle m_j \rangle\right) \tag{5.2}$$

Les constantes de couplage d'échanges d'Heisenberg J_{ij} sont indépendantes de la température et leur utilisation comme paramètres ajustables permettra d'exprimer les moments magnétiques de chaque couche en fonction de la température. Les constantes de couplage intracouches (J_{ii}) donnent le champ d'échange total à l'intérieur de la couche i. Pour plus de clarté, les couches sont numérotés de 1 pour la couche de Fe/Cu à 6 pour la couche près de l'Au. Les couplages d'échange des couches

d'interfaces c'est à dire J_{11} et J_{66} sont 2 paramètres ajustables, et les couplages d'échanges intracouches des couches de coeur sont pris égaux à un seul paramètre ajustable : $J_{22} = J_{33} = J_{44} = J_{55} = J_{22-55}$ car nous n'attendons pas de différences pour une couche de Fe au sein d'un film de Fe. A ces trois paramètres ajustables, il faut ajouter toutes les constantes de couplage intercouches : J_{12}, J_{23}, J_{34}, J_{45}, J_{56}. Ces 8 paramètres sont ajustés simultanément pour les asymétries $Cpmlonrem$ et $\Pi lonrem$ à 708eV pour les quatres températures 60K, 200K, 250K, et 300K soit 8 asymétries expérimentales, en utilisant la valeur $\langle m_i(T)\rangle$ de la formule 5.2 pour obtenir les asymétries.

Le nombre de paramètres ajustables est alors de 8 au lieu de 24 paramètres ajustables toutes températures confondues (6 mms pour chaque température, les angles γ étant fixés aux valeurs déterminées précédemment). La figure 5.17 montre le bon accord entre les courbes expérimentales et les courbes théoriques. Les valeurs des mms correspondant à chaque température, ainsi que celles des angles γ sont données à droite de ces courbes. Les valeurs des mms sont plus grandes près de l'Au à part pour 60K. L'augmentation de l'aimantation du Fe près d'une interface d'Au observée dans le chapitre précédent n'est donc pas clairement montrée ici. En effet, cette étude ayant été réalisée avant celle sur Au/Fe/Ag(116), nous n'avons pas fait attention à la présence d'une augmentation éventuelle de l'aimantation près de l'Au, notamment à basse température. Cependant il s'agit ici d'un film de Fe fcc, ce qui pourrait changer son interaction avec la couche d'Au et donc diminuer l'effet de l'Au sur l'augmentation de l'aimantation aux interfaces.

Les constantes de couplage issues du fit sont données à droite de la figure 5.17 et leurs valeurs dépendent fortement de leur position dans la couche de Fe. Les résultats des constantes d'échanges intracouches sont assez proches des prédictions théoriques de Spizak *et al* [11] et Sandratskii [19], tandis que les valeurs des constantes de couplage intercouches permettent de vérifier le modèle de blocs. En effet, le signe négatif de J_{ij} signifie que les moments sont couplés antiferromagnétiquement, et les valeurs supérieures à $25meV$ correspondent aux constantes de couplage entre des couches faisant parti d'un même bloc, tandis que les constantes de couplage ayant des valeurs inférieures à $15meV$ représentent l'échange entre les blocs. Le modèle de blocs est donc de nouveau vérifié par cette analyse utilisant directement l'ajustement des constantes de couplage plutôt que l'ajustement des moments magnétiques.

5.3.3 Discussion, Conclusion

L'analyse structurale et magnétique effectuée pour étudier la variation de l'aimantation en fonction de la température et de la position dans le film montre que l'utilisation de paramètres plus globaux que les moments magnétiques comme les constantes de couplage d'échanges du Hamiltonien d'Heinsenberg, est également possible pour tirer des conclusions physiques importantes des expériences de SXRMR [21].

Tout d'abord, à la différence de l'analyse du chapitre 4, et pour tenir compte de la spécificité d'une croissance par PLD, nous avons explicitement considéré une couche interdiffusée et trouvé une épaisseur de 5.8Å. On sait qu'à l'interface avec une couche magnétique le Cu peut être polarisé en spin [22]. Il était donc tentant

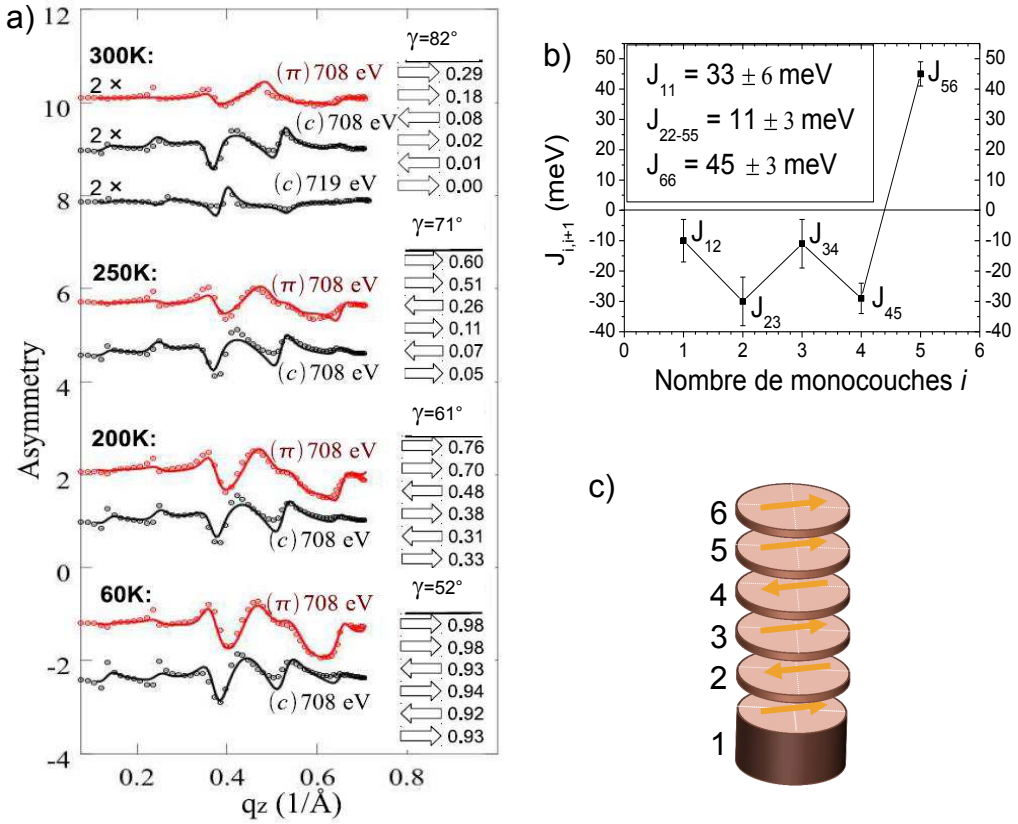


FIGURE 5.17 – Accord entre les courbes expérimentales et théoriques à 708eV en configuration *Cpmlonrem* (noir) et Π*lonrem* (rouge) ainsi que valeurs des moments magnétiques dérivés des constantes de couplage (a). Valeurs des constantes de couplage trouvées en fonction de leurs positions dans la couche de Fe (b). Schéma des sous-couches magnétiques et leur numérotations (c)

de voir si on pouvait observer pas SXRMR cette polarisation et son extension. La figure 5.18 montre la polarisation net du Cu dans un spectre en énergie à 17°(insert) ce qui nous a permis de choisir l'énergie de 933eV pour effectuer une asymétrie en angle. L'analyse de cette asymétrie magnétique à 933eV et 40K pour le Cu, et le fit des oscillations donne une extension de l'aimantation sur ≈ 5Å, en bon accord avec l'épaisseur de la couche interdiffusée.

Ensuite, nous avons montré que l'utilisation de différentes configurations expérimentales est nécessaire ici pour comprendre l'évolution de la composante transverse. Enfin, nous n'avons pas observé de non-collinéarité dans la distribution des moments magnétiques après avoir appliqué un champ à 45° des axes de facile aimantation, mais une dépendance de la distribution des domaines en fonction de la température. Il serait intéressant de coupler une technique d'imagerie pour être plus complet dans le lien entre asymétrie et distribution de domaines.

Un autre résultat important de cette analyse, est la confirmation que l'aimantation suit un modèle de blocs ayant un premier bloc composé de deux couches

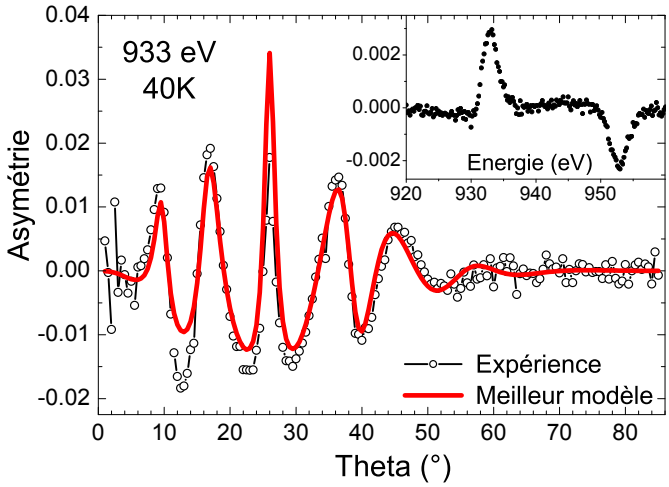


FIGURE 5.18 – Polarisation du Cu

ferromagnétiques et d'une troisième couche couplée antiferromagnétiquement, puis de la succession de blocs de 2 couches antiferromagnétiques. Ce modèle qui avait déjà été trouvé dans les expériences de Meyerheim *et al* [18] et qui trouve une explication théorique [19], est confirmé ici par une autre approche, qui consiste à utiliser les constantes de couplage d'échange qui sont des paramètres indépendants de la température.

Enfin, et c'est un résultat difficilement accessible par une autre approche, la connaissance de ces constantes de couplage, permet d'être sensible à l'évolution des moments magnétiques en fonction de la température (figure 5.19). Cette évolution dépend fortement de la position de la couche magnétique dans la couche de Fe, ce qui prouve le caractère inhomogène de la dépendance en température de l'aimantation pour des films ultraminces.

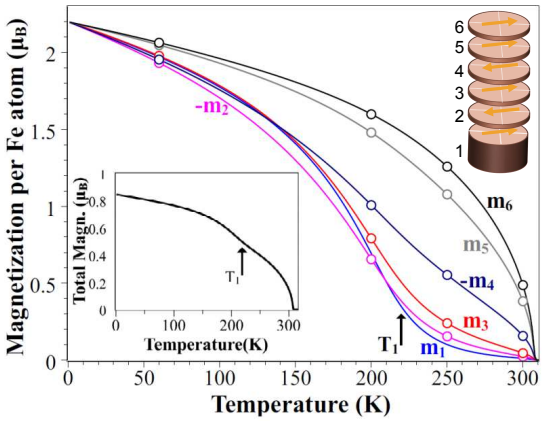


FIGURE 5.19 – Evolution des moments magnétiques en fonction de la température, et en fonction de leur positionnement dans la couche de Fe.

La forme convexe des courbes d'aimantation en fonction de la température des couches 5 et 6 près de l'Au, est due au fort couplage ferromagnétique et ressemble au comportement de l'aimantation d'un cristal massif. Les formes concaves des autres courbes d'aimantation viennent des faibles constantes de couplage intracouches. L'aimantation totale présente une marche aux environs de 220K (inset), qui a déjà été observée par MOKE par Qian *et al* [10]. Cette inhomogénéité de la dépendance en température en fonction de la position de la couche magnétique par rapport à l'ensemble du film de Fe est similaire à celle trouvée théoriquement par Sandratski, sauf pour la dépendance de la première couche FeCu, puisque nous avons pris en compte l'interdiffusion des couches, ce qui n'est pas le cas dans la théorie.

Cette étude d'un échantillon de 6 monocouches de Fe déposées sur un substrat de Cu(100) et recouvert par de l'Au, a permis de consolider le modèle de blocs antiferromagnétiques suivis par un bloc constitué de deux couches ferromagnétiques et d'une troisième d'aimantation opposée. De plus elle a mis en évidence le fait que l'aimantation était collinéaire au sein de la couche de Fe, et dépendait de la température de manière inhomogène en profondeur. L'analyse effectuée dans ce chapitre est nouvelle puisqu'elle montre qu'en utilisant comme paramètres les constantes de couplage d'échange d'Heisenberg et leur lien avec le moment magnétique dans le cadre d'une théorie de champ moyen, il est possible d'ajuster la courbe expérimentale en réduisant le nombre de paramètres libres. Cette nouvelle approche a permis de déterminer un comportement physique tel que l'évolution en température de l'aimantation de chaque couche magnétique. De plus, cette évolution en température déduite de l'expérience confirme les prévisions théoriques de Sandratski et renforce le modèle de blocs.

Bibliographie

[1] H. Jenniches, J. Shen, Ch. V. Mohan, S. Sundar Manoharan, J. Barthel, P. Ohresser, M. Klaua, and J. Kirschner. Structure and magnetism of pulsed-laser-deposited ultrathin films of Fe on Cu(100). *Phys. Rev. B*, 59(2) :1196–1208, Jan 1999.

[2] J. Thomassen, F. May, B. Feldmann, M. Wuttig, and H. Ibach. Magnetic live surface layers in Fe/Cu(100). *Phys. Rev. Lett.*, 69(26) :3831–3834, Dec 1992.

[3] Pedro A. Montano, Gayanath W. Fernando, Bernard R. Cooper, E. R. Moog, H. M. Naik, S. D. Bader, Y. C. Lee, Y. N. Darici, H. Min, and J. Marcano. Two magnetically different, closely lying states of fcc iron grown on copper (100). *Phys. Rev. Lett.*, 59(9) :1041–1044, Aug 1987.

[4] D. P. Pappas, K.-P. Kämper, and H. Hopster. Reversible transition between perpendicular and in-plane magnetization in ultrathin films. *Phys. Rev. Lett.*, 64(26) :3179–3182, Jun 1990.

[5] E. Mentz, A. Bauer, T. Günther, and G. Kaindl. Magnetization reversal and spin reorientation in Fe/Cu(100) ultrathin films. *Phys. Rev. B*, 60(10) :7379–7384, Sep 1999.

[6] G. Meyer, A. Bauer, T. Crecelius, I. Mauch, and G. Kaindl. Magnetization reversal via the formation of stripe domains in ultrathin Fe films on Cu(100). *Phys. Rev. B*, 68(21) :212404, Dec 2003.

[7] A. Enders, D. Repetto, D. Peterka, and K. Kern. Temperature dependence of the magnetism in Fe/Cu (001). *Phys. Rev. B*, 72(5) :054446, Aug 2005.

[8] Dongqi Li, M. Freitag, J. Pearson, Z. Q. Qiu, and S. D. Bader. Magnetic phases of ultrathin Fe grown on Cu(100) as epitaxial wedges. *Phys. Rev. Lett.*, 72(19) :3112–3115, May 1994.

[9] R. E. Camley and Dongqi Li. Theoretical calculation of magnetic properties of ultrathin Fe films on Cu(100). *Phys. Rev. Lett.*, 84(20) :4709–4712, May 2000.

[10] D. Qian, X. F. Jin, J. Barthel, M. Klaua, and J. Kirschner. Spin-density wave in ultrathin Fe films on Cu(100). *Phys. Rev. Lett.*, 87(22) :227204, Nov 2001.

[11] D. Spišák and J. Hafner. Magnetic structure of ultrathin γ-Fe films on Cu(001) : Spin waves versus collinear magnetic ordering. *Phys. Rev. B*, 66(5) :052417, Aug 2002.

[12] Kenta Amemiya, Soichiro Kitagawa, Daiju Matsumura, Toshihiko Yokoyama, and Toshiaki Ohta. Development of a depth-resolved x-ray magnetic circular dichroism : application to Fe/Cu(100) ultrathin films. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 15(5) :S561, 2003.

[13] C A F Vaz, J A C Bland, and G Lauhoff. Magnetism in ultrathin film structures. *Reports on Progress in Physics*, 71(5) :056501, 2008.

[14] Georg Rauchbauer, Andreas Buchsbaum, Hannes Schiechl, Peter Varga, Michael Schmid, and Albert Biedermann. Ultra-thin Fe films grown on Cu by pulsed laser deposition : Intermixing and bcc-like structures. *Surface Science*, 602(8) :1589 – 1598, 2008.

[15] H. L. Meyerheim, R. Popescu, D. Sander, J. Kirschner, O. Robach, and S. Ferrer. Layer relaxation and intermixing in Fe/Cu(001) studied by surface x-ray diffraction. *Phys. Rev. B*, 71 :035409, Jan 2005.

[16] D. Spišák and J. Hafner. Surface and interface phase transitions in thin magnetic films with frustrated exchange interactions. *Phys. Rev. B*, 56(5) :2646–2660, Aug 1997.

[17] S. Shallcross, A. E. Kissavos, S. Sharma, and V. Meded. Noncollinear order in the γ-Fe system : Generalized heisenberg approach. *Phys. Rev. B*, 73(10) :104443, Mar 2006.

[18] H. L. Meyerheim, J.-M. Tonnerre, L. Sandratskii, H. C. N. Tolentino, M. Przybylski, Y. Gabi, F. Yildiz, X. L. Fu, E. Bontempi, S. Grenier, and J. Kirschner. New model for magnetism in ultrathin fcc Fe on Cu(001). *Phys. Rev. Lett.*, 103(26) :267202, Dec 2009.

[19] L. M. Sandratskii. Stable and variable features of the magnetic structure of fcc Fe/Cu(001) films. *Phys. Rev. B*, 81(6) :064417, Feb 2010.

[20] G. Vignaud and A. Gibaud. *A Matlab routine for the simulation of specular x-ray reflectivity data with matrix technique.*

[21] C. E. ViolBarbosa, H. L. Meyerheim, E. Jal, J.-M. Tonnerre, M. Przybylski, L. M. Sandratskii, F. Yildiz, U. Staub, and J. Kirschner. Inhomogeneous temperature dependence of the magnetization in fcc-Fe on Cu(001). *Physical Review B*, 85(18) :184414, May 2012.

[22] M. G. Samant, J. Stöhr, S. S. P. Parkin, G. A. Held, B. D. Hermsmeier, F. Herman, M. Van Schilfgaarde, L.-C. Duda, D. C. Mancini, N. Wassdahl, and R. Nakajima. Induced spin polarization in Cu spacer layers in Co/Cu multilayers. *Physical Review Letters*, 72(7) :1112, February 1994.

Conclusion

L'étude de films minces de Fe par réflectivité magnétique résonante de rayons X mous (SXRMR) a permis de montrer la sensibilité de cette technique aux inhomogénéités de l'aimantation au sein d'un film mince magnétique. L'utilisation de différentes configurations expérimentales et énergies permet d'extraire un modèle robuste sensible aussi bien à la norme qu'à la direction dans les trois directions de l'aimantation de manière résolue en profondeur.

Dans le cadre de l'étude de films ultra-minces de Fe, nous avons montré qu'avec des photons ayant une énergie d'environ 707eV (seuil $L_{2,3}$ du Fe), on peut sonder l'espace réciproque jusqu'à 0.7Å^{-1} ce qui apporte une résolution de 3-4Å pour un agencement ferromagnétique. Pour du Fe cubique centré, cette épaisseur correspond à un empilement le long d'un axe (001) de deux à trois monocouches. Nous avons également montré que la SXRMR pour du Fe cubique face centrée était sensible à une alternance de moments magnétiques opposés le long de l'axe de croissance. La résolution spatiale de 3-4Å donne lieu à une résolution de 1.5 à 2 monocouches de Fe. Ce résultat associé à de nouveaux calculs théoriques nous a permis de valider un modèle de blocs basé sur une hiérarchie de constantes de couplage pour décrire l'empilement antiferromagnétique complexe au sein du film. On peut imaginer qu'avec des photons de plus hautes énergies permettant de sonder une zone de l'espace réciproque plus importante, la résolution pourrait être abaissée. Toutefois, dans le cas du Fe cela imposerait de travailler au seuil K où l'amplitude du phénomène de dichroïsme est réduite, et de disposer d'échantillons de grande qualité pour mesurer la réflectivité plus loin dans l'espace réciproque.

Dans cette étude, cette résolution nous a permis de montrer que pour un film de Fe cubique centré sur un substrat vicinal d'Ag et recouvert par une couche protectrice d'Au il y avait une augmentation de 20 à 30% en moyenne dans les deux trois premières monocouches proches des interfaces. Si la SXRMR s'est avérée très sensible à la variation relative d'amplitude, la précision sur l'amplitude absolue de l'aimantation s'est révélée insuffisante. Les barres d'erreurs obtenues sur l'amplitude de l'aimantation des couches magnétiques sont supérieures à 10%. Aussi il n'a pas été possible de détecter une variation entre l'aimantation sur une surface vicianle par rapport à une surface plane alors que des études par XMCD ont mis en évidence une grande variation du moment magnétique orbital. De même, aucune différence claire n'a été observée entre des mesures à température ambiante et basse température pour l'aimantation aux interfaces bien qu'une réduction de cette aimantation soit souvent observée aux interfaces à température ambiante. Cette

limitation quant à la détermination d'une amplitude absolue trouve peut-être son origine dans le traitement complexe de l'asymétrie qui mélange les paramètres structuraux et magnétiques. De plus, l'adéquation entre les paramètres résonants utilisés dans les simulations et ceux des expériences réalisées sur les différentes lignes, ne sont pas optimisés dans ce travail puisque qu'on utilise comme paramètres résonant de référence ceux issus des mesures d'absorption effectuées sur un film Fe cubique centré épais de 300 nm. Collecter l'absorption de l'échantillon et le signal dichroïque sur la même ligne de lumière, avec les mêmes réglages, idéalement dans le même dispositif expérimental, pourrait permettre de palier ce problème.

Pour un film mince de Fe cubique face centré sur un substrat de Cu et recouvert par une couche protectrice d'Au, la technique de SXRMR a permis de résoudre la complexité du profil magnétique. Nous avons notamment montré l'existence d'une structure antiferromagnétique en dessous des deux couches ferromagnétiques de l'interface supérieure. L'étude de la variation en température de l'asymétrie en utilisant un modèle basé sur les constantes d'échanges J_{ij} du Hamiltonien d'Heisenberg, a permis de confirmer la présence d'un empilement de blocs antiferromagnétiques faiblement liés entre eux se terminant par un bloc près de la surface de trois couches magnétiques dont les deux dernières sont ferromagnétiques. Les constantes d'échanges ne dépendant pas de la température, nous avons pu ajuster plusieurs courbes expérimentales obtenues à différentes température en utilisant un même modèle. Ce modèle montre que la dépendance en température de l'aimantation n'est pas la même selon la position de la couche magnétique en profondeur au sein du film mince de Fe.

Dans l'étude de film mince de Fe sur un substrat vicinal d'Ag(116) la technique de SXRMR a par ailleurs permis de mettre en évidence l'inhomogénéité d'une composante hors du plan. Pour des épaisseurs inférieures à 5 monocouches (MC), le signal d'asymétrie peut se décrire en utilisant une seule couche de Fe magnétique. La résolution n'est pas suffisante pour détecter une éventuelle inhomogénéité de l'angle hors du plan due aux marches. En revanche, l'inclinaison de l'aimantation dans une direction ni dans le plan, ni hors du plan, est dû à une transition de réorientation de spin continue d'une aimantation complètement hors du plan à une aimantation dans le plan perpendiculaire aux marches du substrat. L'aimantation hors du plan pour les faibles épaisseurs est due à la brisure de symétrie près des interfaces ainsi qu'au phénomène d'hybridation avec l'Au et l'Ag.

Pour des épaisseurs de Fe comprises entre 5.9 et 10.3 MC, où l'axe de facile aimantation est perpendiculaire aux marches à basse température, la faible composante hors du plan observée par effet Kerr magnéto-optique, a aussi été observée lors des mesures SXRMR, ainsi que le changement de signe de cette composante pour environ 9 MC. La SXRMR a permis de montrer en outre que l'inclinaison de l'aimantation n'est pas homogène et plus forte au niveau des marches. En effet, l'angle hors du plan d'environ $15^\circ \pm 4$ est plus important près du substrat vicinal d'Ag, et diminue lorsqu'on se rapproche de l'interface d'Au. Cet angle hors du plan est du même ordre de grandeur que celui des marches du substrat qui est de 13° par rapport à la surface de l'échantillon. A saturation d'un champ appliqué perpendiculairement aux marches cette composante hors du plan existe toujours, tandis qu'elle disparait lorsqu'on ef-

fectue des mesures à saturation d'un champ appliqué parallèlement aux marches. Ces deux remarques permettent d'affirmer que la composante hors du plan de l'aimantation provient de l'aimantation qui s'aligne dans le plan des marches et non plus selon celui de l'échantillon, c'est à dire qu'elle est directement due aux marches du substrat d'Ag, qui sont de moins en moins bien définies lorsqu'on s'éloigne du substrat. Cette influence des marches est particulièrement forte puisqu'elle surpasse l'effet d'hybridation de l'Au, et est toujours présente, même à saturation d'un champ perpendiculaire aux marches. C'est la première fois qu'une dépendance de la composante hors du plan de l'aimantation en fonction de l'épaisseur est mis en évidence pour un échantillon vicinal.

Pour des épaisseurs de Fe supérieures à 10.3 MC, l'axe de facile aimantation n'est plus forcément perpendiculaire aux marches, et lorsque celui-ci est parallèle aux marches, il n'y a plus de composante hors du plan.

Lors de nos études de l'anisotropie magnétique dans des films minces par SXRMR, l'utilisation de plusieurs configurations expérimentales et notamment celles utilisant un faisceau polarisé linéairement π a permis d'être sensible en moyenne à la rotation de l'aimantation dans le plan. Toutefois comme cette rotation ne correspond à aucun axe de facile aimantation, cette rotation a été interprétée par la présence de domaines magnétiques. Sur les deux films minces de Fe fcc et bcc étudiés, l'anisotropie n'est pas purement uniaxiale. Dans le cas d'un film mince fcc, il y a une quadruple anisotropie tandis que dans le cas d'un film bcc déposé sur un substrat vicinal, il y a un axe de facile aimantation et un axe de moins facile aimantation. Ceci implique un partage en domaines magnétiques alignés selon les différents axes de faciles (et moins facile) aimantation à rémanence d'un champ appliqué selon l'axe de difficile (et moins difficile) aimantation. La technique de SXRMR moyennant l'aimantation dans le plan sur une surface d'une centaine de micromètres, cette apparition de domaines se traduit par un angle de l'aimantation dans le plan. La variation de cet angle permet alors de remonter à la proportion des domaines magnétiques dans la couche de Fe enfouie.

Perspectives

Dans le cadre de ce travail, la SXRMR a été utilisée pour étudier les modifications des propriétés magnétiques d'une couche de Fe en fonction de l'épaisseur de la couche et de la température. La forte sensibilité aux trois composantes d'aimantation a été utilisée pour sonder l'nhomogénéité magnétique de films ultra-minces. Afin de pousser encore l'utilisation de la SXRMR, plusieurs pistes peuvent être suivies :

- Installer un système permettant de faire des mesures sous champ appliqué variable hors du plan afin d'avoir plus de capacités pour étudier les systèmes à aimantation perpendiculaire.
- Associer les mesures de SXRMR avec des mesures d'imagerie de couches enfouies pour corréler plus précisément la taille des domaines et la rotation apparente moyenne.
- Appliquer un champ électrique sur un échantillon magnétique au cours des mesures SXRMR pour suivre les effets de ce champ sur l'asymétrie et donc sur

la distribution d'aimantation d'un film mince.

- Utiliser cette technique en couplant l'analyse des données avec un modèle théorique spécifique à nos échantillons, afin de remonter aux caractéristiques magnétiques telles que les constantes d'anisotropie.
- Profiter de la sélectivité chimique de la SXRMR pour étudier des bicouches magnétiques ou des multiferroique artificiels associant une couche ferroélectrique et une couche magnétique, afin d'étudier l'extension des effets d'une couche sur l'autre.

Annexes

Table des matières

A Réflectivité Magnétique Résonante de Rayons X : XRMR **191**
A.1 Définitions 191
A.2 Principales relations 192
A.3 Relations entre l'indice optique n et le facteur de diffusion atomique f : problèmes de signes 192
A.4 Absorption et coefficients f'' et β. 193
A.5 Théorie cinématique 194
A.5.1 Base linéaire 194
A.5.2 Base circulaire 196
A.5.3 Calcul des asymétries pour différentes configurations 196
A.6 Théorie dynamique 199
A.6.1 Résolution des équations de Maxwell 199
A.6.2 Conditions aux limites, et rugosité 203
A.6.3 Matrice de Propagation 206
A.6.4 Réflectivité 206
Bibliographie 208

B Alignement de l'échantillon par rapport au faisceau synchrotron **209**

C Expérience XRMR Fe/Ag(116) **213**
C.1 Orientations des échantillons 213
C.2 Récapitulatif des propriétés pour toutes les épaisseurs 214
C.3 Autres expériences 215
C.3.1 PNR 215
C.3.2 XMCD 219

Annexe A

Réflectivité Magnétique Résonante de Rayons X : XRMR

Dans cette annexe les bases de la théorie classique des ondes électomagnétiques sont données dans le cadre de la XRMR. La première partie explicite les définitions vectorielles des grandeurs physiques utilisées par la suite. La deuxième partie donne les relations entre ces grandeurs physiques dont nous aurons besoins. La troisième et la quatrième partie donne les relations entre la "vision optique" et la "vision diffusion". La cinquième partie détaille les calculs de la théorie cinématique, et la dernière partie donne le détail de la théorie dynamique.

A.1 Définitions

Champ Electrique : $\vec{E} = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix}$

Déplacement électrique : $\vec{D} = \begin{pmatrix} D_x \\ D_y \\ D_z \end{pmatrix}$

Champ magnétique : $\vec{B} = \begin{pmatrix} B_x \\ B_y \\ B_z \end{pmatrix}$

Champ magnétisant : $\vec{H} = \begin{pmatrix} H_x \\ H_y \\ H_z \end{pmatrix}$

Vecteur d'onde : $k = \begin{pmatrix} k_x \\ k_y \\ k_z \end{pmatrix}$ avec $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ où λ est la longueur d'onde de l'onde électromagnétique.

Tenseur de permittivité diélectrique : $\hat{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & \epsilon_{xz} \\ \epsilon_{yx} & \epsilon_{yy} & \epsilon_{yz} \\ \epsilon_{zx} & \epsilon_{zy} & \epsilon_{zz} \end{pmatrix}$

Susceptibilité électrique : $\chi = \epsilon - 1$

Perméabilité magnétique scalaire : $\mu = 1$ (approximation)

Pulsation : $\omega = 2\pi\frac{c}{\lambda}$ où c est la vitesse de la lumière.

A.2 Principales relations

Le champ électrique, le vecteur de déplacement et la polarisation $\vec{P}$ sont reliés par deux expressions :

$$\vec{D} = \epsilon_0\vec{E} + \vec{P} \text{ et } \vec{P} = \epsilon_0\chi\vec{E} \tag{A.1}$$

La combinaison de ces deux expressions donne ce qu'on appelle la réponse du milieu au champ électrique, qui peut être relié au vecteur polarisation.

$$\vec{D} = \hat{\epsilon}\vec{E} = \frac{\epsilon}{\chi}\vec{P} \tag{A.2}$$

Les champs électrique et magnétique sont pris sous forme d'onde plane avec $\vec{r}$ le vecteur position et t le temps :

$$\vec{E} = \vec{E_0}e^{i(\vec{k}\vec{r}-\omega t)} \quad \text{et} \quad \vec{B} = \vec{B_0}e^{i(\vec{k}\vec{r}-\omega t)} \tag{A.3}$$

Equation de Maxwell :

$$\begin{aligned} \nabla \wedge \vec{E} = -\tfrac{1\partial\vec{B}}{c\partial t} \quad &\text{et} \quad \nabla \wedge \vec{B} = \tfrac{1\partial\vec{D}}{c\partial t} \\ \nabla \cdot \vec{E} = \tfrac{\rho}{\epsilon} \quad &\text{et} \quad \nabla \cdot \vec{B} = 0 \end{aligned} \tag{A.4}$$

Si on introduit le potentiel vecteur $\vec{A}$ on a $\vec{E} = -\frac{\partial\vec{A}}{\partial t}$ et $\vec{B} = \vec{rot}(\vec{A})$. La condition de transversalité du champ électromagnétique donne $div\vec{A} = 0$ et les équations de Maxwelle se réduisent à l'équation :

$$\Delta\vec{A} - \frac{\partial^2\vec{A}}{\partial t^2} = 0 \tag{A.5}$$

A.3 Relations entre l'indice optique n et le facteur de diffusion atomique f : problèmes de signes

Selon la convention de signe que l'on adopte pour décrire le facteur de diffusion atomique résonant, la relation entre n et f^{res} va être légèrement différente. Dans notre cas, $f^{res} = F_{c,r}.\vec{e'^*} \cdot \vec{e} - iF_{m,r}.\vec{m} \cdot (\vec{e'^*} \times \vec{e})$, avec $F_{c,r} = -f_0 - F' + iF''$. La

susceptibilité χ peut être reliée au facteur de diffusion atomique résonant par la formule [1] :

$$\chi = \frac{r_0 \lambda^2}{\pi} \sum_i \rho_i f_i^{res} \tag{A.6}$$

où ρ_i est la densité de l'élément i (c'est à dire le nombre d'atomes par unité de volumes). Les relations $\chi = \epsilon - 1$ et $\epsilon = n^2$ permettent ensuite d'exprimer l'indice optique en fonction du facteur de diffusion atomique résonant grâce à un développement limité du premier ordre :

$$n - 1 = \frac{r_0 \lambda^2}{2\pi} \sum_i \rho_i f_i^{res} \tag{A.7}$$

Cependant, la notation historique qu'on trouve dans les articles plus anciens [2, 3] donne une relation entre le facteur de diffusion atomique et l'indice optique qui est inversée en signe :

$$1 - n = \frac{r_0 \lambda^2}{2\pi} \sum_i \rho_i f_i^{res} \tag{A.8}$$

Cette différence de signe vient du fait que dans ces articles [2, 3], le facteur de diffusion atomique résonant est exprimé avec une partie magnétique positive : $f^{res} = F_{c,r}.\vec{e'^*} \cdot \vec{e} + iF_{m,r}.\vec{m} \cdot (\vec{e'^*} \times \vec{e})$, et que $F_{c,r} = f_0 + F' + iF''$, c'est à dire que F'' est pris négatif.

Il faud donc être vigilant aux définitions et plus particulièrement aux signes du facteur de diffusion atomique.

A.4 Absorption et coefficients f'' et β.

L'absorption peut être reliée à la partie imaginaire du facteur atomique de diffusion ainsi qu'à la partie imanginaire de l'indice optique. En effet, d'après la relation qui relie n a f, et si on exprime l'indice optique en fonction d'un terme de dispersion δ et d'absorption β, on obtient :

$$n - 1 = -\delta + i\beta = \frac{r_0 \lambda^2 N_{at}}{2\pi}(-f_0 - f' + if'') \tag{A.9}$$

Avec N_{at} le nombre d'atomes dans le matériaux, qui correspond aux termes $\sum_i \rho_i$. Par identification on obtient donc

$$\delta = \tfrac{r_0 \lambda^2 N_{at}}{2\pi}(f_0 + f') \tag{A.10}$$

$$\beta = \tfrac{r_0 \lambda^2 N_{at}}{2\pi} f'' = \tfrac{\lambda \mu}{4\pi} \tag{A.11}$$

où μ est l'absoption mesurée expérimentalement. On peut relier δ et β ainsi que f' et f'' par la relation de Kramers-Kronig qui est :

$$f'(E) = \frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{f''(E_1)}{E_1 - E} dE_1 \tag{A.12}$$

où P désigne la partie entière.

A.5 Théorie cinématique

Le facteur de diffusion atomique résonant dépend de la polarisation du faisceau incident et réfléchi. Si on se place dans une base de polarisation linéaire ou circulaire de dimension 2 : base $(\vec{\sigma}, \vec{\pi})$ ou $(\vec{C^+}, \vec{C^-})$, on peut alors exprimer ce facteur matriciellement.

A.5.1 Base linéaire

Si on se place dans la base $(\vec{\sigma}, \vec{\pi})$, d'après la figure 1.13 on peut décomposer les vecteurs de polarisation $\vec{\pi}$, $\vec{\sigma}$, $\vec{\pi'}$, $\vec{\sigma'}$ et $\vec{m}$ dans la base (x, y, z). Comme on ne sait pas le signe de l'aimantation, on introduit $\epsilon = \pm 1$ et on obtient :

$$\vec{\sigma} = \vec{\sigma'} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \text{ et } \vec{\pi} = \begin{pmatrix} 0 \\ \sin(\theta) \\ -\cos(\theta) \end{pmatrix} \text{ et } \vec{\pi'} = \begin{pmatrix} 0 \\ -\sin(\theta) \\ -\cos(\theta) \end{pmatrix} \text{ et } \vec{m} = \epsilon \begin{pmatrix} m_{tran} \\ m_{lon} \\ m_{pol} \end{pmatrix} \quad \text{(A.13)}$$

On peut donc calculer f^{res} pour toutes les configurations de polarisations linéaire possible, ce qui nous donnera notre matrice tenseur de diffusion atomique résonant $\hat{f}^{res}$ qui permettra d'exprimer le vecteur polarisation réfléchi $\vec{e'}$ en fonction du vecteur polarisation incident $\vec{e}$.

$$\hat{f}^{res} = \begin{pmatrix} f_{\sigma,\sigma'} & f_{\sigma,\pi'} \\ f_{\pi,\sigma'} & f_{\pi,\pi'} \end{pmatrix} \quad \text{(A.14)}$$

Le premier terme de la matrice à calculer est celui pour une polarisation incidente $\vec{\sigma}$ et réfléchie $\vec{\sigma'}$. C'est ce qu'on appellera le cannal σ, σ'. On obtient alors $f_{\sigma,\sigma'} = F^{res}_{charge}$. On effectue le même calcul, mais pour une polarisation incidente $\vec{\pi}$ et réfléchie $\vec{\sigma'}$, afin d'obtenir la valeur du canal π, σ' : $f_{\pi,\sigma'}$. Puis on recalcul f^{res} pour une polarisation incidente $\vec{\sigma}$ et réfléchie $\vec{\pi'}$ afin d'obtenir le canal σ, π' et donc $f_{\sigma,\pi'}$. Et enfin pour obtenir le dernier canal π, π' et donc $f_{\pi,\pi'}$, on calcul l'expression de f^{res} pour une polarisation incidente $\vec{\sigma}$ et réfléchie $\vec{\pi'}$. On a donc

$$\begin{aligned} f_{\sigma,\sigma'} &= F_{c,r} \\ f_{\sigma,\pi'} &= -i\epsilon F_{m,r} \left(m_{lon} \cos\theta + m_{pol} \sin\theta\right) \\ f_{\pi,\sigma'} &= -i\epsilon F_{m,r} \left(m_{pol} \sin\theta - m_{lon} \cos\theta\right) \\ f_{\pi,\pi'} &= F_{c,r} \cos(2\theta) + i\epsilon F_{m,r} m_{tran} \sin(2\theta) \end{aligned} \quad \text{(A.15)}$$

et on peut écrire f^{res} sous sa forme matricielle :

$$\hat{f}^{res} = F_{c,r} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \cos(2\theta) \end{pmatrix} - i\epsilon F_{m,r} \begin{pmatrix} 0 & m_{lon} \cos\theta + m_{pol} \sin\theta \\ -m_{lon} \cos\theta + m_{pol} \sin\theta & -m_{tran} \sin(2\theta) \end{pmatrix} \quad \text{(A.16)}$$

A partir de cette expression du facteur de diffusion atomique résonant on exprime l'intensité réfléchie en fonction de la polarisation du faisceau incident $\vec{e}$. En effet, dans la base de polarisation linéaire l'intensité réfléchie est la somme des intensités

réfléchies ayant une polarisation $\vec{\sigma'}$ et une polarisation $\vec{\pi'}$.

$$\begin{aligned} I &= I_{\sigma'} + I_{\pi'} \\ &= \left|\sum_n e^{i\vec{Q}\vec{r_n}} f_{\sigma'}^{res}\right|^2 + \left|\sum_n e^{i\vec{Q}\vec{r_n}} f_{\pi'}^{res}\right|^2 \approx \left|\sum_n e^{i\vec{Q}\vec{r_n}}\right|^2 \left(|f_{\sigma'}^{res}|^2 + |f_{\pi'}^{res}|^2\right) \\ &\propto |f_{\sigma'}^{res}|^2 + |f_{\pi'}^{res}|^2 \end{aligned} \tag{A.17}$$

Ici une approximation est faite puisqu'on découple la somme sur l'exponentielle $i\vec{Q}.\vec{r_n}$ des facteurs de diffusions atomiques. Cette approximation va modifer l'amplitude de l'intensité. Cependant comme nous sommes intéréssés seulement par la forme de l'intensité et non son amplitude, cette approximation peut être gardée. Ceci implique que les facteurs F', F'', M' et M'' utilisés ne sont pas les parties réelles et imaginaires des facteurs de structure électroniques et magnétiques comme dans le papier de Tonnerre *et al* [4], mais bien les facteurs de dispersions, et d'absorptions, électroniques et magnétiques dérivant des mesures d'absorptions.

Dans le cas le plus général, la polarisation incidente peut-être une combinaison des polarisations linéaires $\vec{\sigma}$ et $\vec{\pi}$ qu'on notera $\vec{e_\sigma}$ et $\vec{e_\pi}$ avec un décalage de phase pris en compte par l'apparition d'une partie complexe. On a donc un vecteur polarisation incidente qu'on peut écrire

$$\vec{e} = \begin{pmatrix} \delta e_\sigma \\ -ie_\pi \end{pmatrix} \tag{A.18}$$

où δ permet de prendre en compte une phase positive ou négative et est donc égal à ± 1. Pour avoir le facteur de diffusion atomique résonnant lors d'une intéraction avec un tel faisceau polarisé, il suffit de faire le produit entre la matrice de l'équation A.14 et le vecteur $\vec{e}$ de l'équation A.18. On obtient alors

$$\hat{f}_{e'}^{res} = \begin{pmatrix} \delta e_\sigma f_{\sigma,\sigma'} - ie_\pi f_{\pi,\sigma'} \\ \delta e_\sigma f_{\sigma,\pi'} - ie_\pi f_{\pi,\pi'} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} f_{\sigma'}^{res} \\ f_{\pi'}^{res} \end{pmatrix} \tag{A.19}$$

On peut donc développer l'expression de l'intensité en fonction des composantes de l'aimantation et de son signe (ϵ), de l'angle θ, et de la polarisation du faisceau incident.

$$\begin{aligned} I &\propto |f_{\sigma'}^{res}|^2 + |f_{\pi'}^{res}|^2 \\ &\propto |\delta e_\sigma f_{\sigma,\sigma'} - ie_\pi f_{\pi,\sigma'}|^2 + |\delta e_\sigma f_{\sigma,\pi'} - ie_\pi f_{\pi,\pi'}|^2 \\ &\propto |\delta e_\sigma (f_0 + F') - \epsilon e_\pi \left(m_{pol}\sin\theta - m_{lon}\cos\theta\right)) M' \\ &\quad + i\left\{\delta e_\sigma F'' - \epsilon e_\pi \left(m_{pol}\sin\theta - m_{lon}\cos\theta\right) M''\right\}|^2 \\ &\quad + |e_\pi \cos(2\theta) F'' + \epsilon e_\pi m_{tran}\sin(2\theta) M' + \delta\epsilon e_\sigma \left(m_{pol}\sin\theta + m_{lon}\cos\theta\right) M'' \\ &\quad + i\left\{-e_\pi\cos(2\theta)F' - \delta\epsilon e_\sigma \left(m_{pol}\sin\theta + m_{lon}\cos\theta\right) M' + \epsilon e_\pi m_{tran}\sin(2\theta) M''\right\}|^2 \end{aligned} \tag{A.20}$$

Or $|A + iB|^2 = A^2 + B^2$, $(a-b)^2 = a^2 + b^2 - 2ab$, et $(a+b+c)^2 = a^2 + b^2 + c^2 + 2ab + 2bc + 2ac$, et $(-a-b+c)^2 = a^2 + b^2 + c^2 + 2ab - 2bc - 2ac$. De plus les termes magnétiques d'ordre supérieur ou égal à deux sont négligés et donc si b et c sont des termes magnétiques, les formules précédentes deviennent : $(a-b)^2 = a^2 - 2ab$, et $(a+b+c)^2 = a^2 + 2ab + 2ac$ et $(-a-b+c)^2 = a^2 + 2ab - 2ac$. Si on applique cela à l'équation précédente A.21 on obtient :

$$\begin{aligned} I_\delta^\epsilon &\propto \left[e_\sigma^2 + e_\pi^2 \cos^2(2\theta)\right] |F_{c,r}|^2 \\ &+\epsilon \left\{ e_\pi^2 m_{tran} \sin(4\theta) \left[F''M' - F'M''\right] + 4\delta e_\sigma e_\pi \left(m_{lon}\cos^3\theta - m_{pol}\sin^3\theta\right)\left(F'M' + F''M''\right)\right\} \end{aligned} \tag{A.21}$$

A partir de cette intnsité il suffit de remplacer ϵ, δ, e_σ et e_π par leurs valeurs pour obtenir l'intensité I_δ^ϵ. On peut ensuite calculer les différentes asymétries.

A.5.2 Base circulaire

Le facteur de diffusion atomique résonant peut également être exprimé dans une base de polarisation circulaire et non plus linéaire. Pour cela, étant donné qu'on connait déjà la forme du facteur de diffusion atomique résonant ainsi que les vecteurs $\vec{C^+}$ et $\vec{C^-}$ dans la base linéaire, on a juste à utiliser les matrices de passage de la base linéaire vers la base circulaire et de la base circulaire vers la base linéaire.

$$P_{L\to C} = \begin{pmatrix} -1 & -i \\ 1 & -i \end{pmatrix} \text{ et } P_{C\to L}^{-1} = \begin{pmatrix} -1 & 1 \\ i & i \end{pmatrix} \tag{A.22}$$

et $\hat{f}_{circ}^{res} = P_{L\to C}\hat{f}_{lin}^{res}P_{C\to L}^{-1}$, ce qui donne après calcul :

$$\begin{aligned} \hat{f}_{circ}^{res} &= F_{c,r}\begin{pmatrix} 1+\cos(2\theta) & -1+\cos(2\theta) \\ -1+\cos(2\theta) & 1+\cos(2\theta) \end{pmatrix} \\ &-i\epsilon F_{m,r}\begin{pmatrix} -2im_{lon}\cos\theta - m_{tran}\sin(2\theta) & -2im_{pol}\sin\theta - m_{tran}\sin(2\theta) \\ 2im_{pol}\sin\theta - m_{tran}\sin(2\theta) & 2im_{lon}\cos\theta - m_{tran}\sin(2\theta) \end{pmatrix} \end{aligned} \tag{A.23}$$

Comme on peut le voir les expressions de $f_{e,e'}$ vont être plus complexe que celles obtenus dans la base linéaire (équation A.15), et donc l'expression de l'intensité sera également plus compliquée. C'est pourquoi on travaille le plus souvent dans la base linéaire bien que les vecteurs de polarisations linéaires ne soient pas des vecteurs propres de la matrice de propagation développé dans le formalisme dynamique.

A.5.3 Calcul des asymétries pour différentes configurations

Pour être sensible uniquement aux composantes magnétiques on peut soustraire deux intensités I^ϵ obtenues en renversant le champ magnétique, c'est à dire en inversant le signe de $\epsilon = \pm 1$, ou deux intensités I_δ obtenues en renversant la polarisation, c'est à dire en changeant le signe de $\delta = \pm 1$. Cette différence est normalisée par la somme pour s'affranchir le plus possible des effets de la structure. C'est ce qu'on appelle l'asymétrie A.

$$\begin{aligned} A &= \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} \text{ si on renverse le champ magnétique} \\ A &= \frac{I_+ - I_-}{I_+ + I_-} \text{ si on renverse l'hélicitié} \end{aligned} \tag{A.24}$$

Selon la polarisation du faisceau incident on va distinguer quatre configurations. Si la polarisation du faisceau incident est linéaire σ, la configuration se nomme Σ. Si cette polarisation est linéaire π alors la configuration s'appelera Π. Dans le cas d'une polarisation circulaire, on peut renverser le champ, et la configuration est alors nommée Hpm, ou bien changer l'hélicité, ce qui donne lieu à la configuration Cpm. Pour ces quatre configurations les valeurs de e_σ, e_π, ϵ et δ ne vont pas être les mêmes.

- **configuration** Σ
  On a $e_\sigma = 1$, $e_\pi = 0$, $\epsilon = \pm 1$, et $\delta = 1$ ce qui donne

$$I^\pm \propto |F_{c,r}|^2 \quad \text{et donc} \quad A^\Sigma = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} = 0 \tag{A.25}$$

  Cette configuration ne sert donc pas à sonder le magnétisme de l'échantillon, mais peut être utilisée pour déterminer la structure.
- **configuration** Π
  On a $e_\sigma = 0$, $e_\pi = 1$, $\epsilon = \pm 1$, et $\delta = 1$ ce qui donne

$$I^\pm \propto \cos^2(2\theta)\,|F_{c,r}|^2 + \pm\left\{m_{tran}\sin(4\theta)\left[F''M' - F'M''\right]\right\} \tag{A.26}$$

  et donc $A^\Pi = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-}$ devient :

$$A^\Pi \propto \frac{m_{tran}\sin(4\theta)\left[F''M' - F'M''\right]}{\cos^2(2\theta)\,|F_c|^2} \tag{A.27}$$

  Cette configuration permet d'être sensible uniquement à la composante transverse de l'aimantation. Cela signifie que si expérimentalement l'asymétrie obtenue en polarisation π est non nulle alors il y a une composante d'aimantation transverse. Si le signal est nul, cela ne signifie pas qu'il n'y a pas d'aimantation, mais celle-ci est probablement dans le plan de diffraction.
- **configuration** Hpm
  On a $e_\sigma = 1$, $e_\pi = 1$, $\epsilon = \pm 1$, et $\delta = 1$ ce qui donne :

$$\begin{aligned} I^\pm \propto\ & \left[1 + \cos^2(2\theta)\right]|F_{c,r}|^2 \\ & + \pm\left\{m_{tran}\sin(4\theta)\left[F''M' - F'M''\right] + 4\left(m_{lon}\cos^3\theta - m_{pol}\sin^3\theta\right)\left(F'M' + F''M''\right)\right\} \end{aligned} \tag{A.28}$$

  et donc $A^{Hpm} = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-}$ devient :

$$A^{Hpm} \propto \frac{m_{tran}\sin(4\theta)\left[F''M' - F'M''\right] + 4\left(m_{pol}\sin^3\theta - m_{lon}\cos^3\theta\right)\left[F'M' + F''M''\right]}{\left[1 + \cos^2(2\theta)\right]|F_c|^2} \tag{A.29}$$

  Cette configuration est sensible aux trois composantes de l'aimantation qui sont pondérées par des sinus ou des cosinus. Ainsi si on a un signal à petits angles ($< 60^\circ$) alors il y a une composante de l'aimantation longitudinale puisque m_{lon} est pondéré par $\cos^3\theta$. Si on a un signal à grands angles ($> 60^\circ$) alors il y une composante de l'aimantation hors du plan puisque m_{pol} est

pondéré par $\sin^3\theta$. Enfin m_{tran} étant pondéré par $\sin(4\theta)$, si une composante transverse de l'aimantation existe on a une asymétrie non nulle quelquesoit θ. Quoi qu'il arrive, si l'asymétrie est nulle pour cette configuration, cela signifie que l'échantillon a une aimantation nulle. Si il y a une asymétrie, selon sa forme, on peut déterminer si il y a une composante hors du plan et/ou dans le plan.

- **configuration** Cpm
  On a $e_\sigma = 1$, $e_\pi = 1$, $\epsilon = 1$, et $\delta = \pm 1$ ce qui donne :

$$\begin{aligned} I_\pm \quad \propto \quad & \left[1+\cos^2(2\theta)\right]|F_{c,r}|^2 \\ & + \left\{ m_{tran}\sin(4\theta)\left[F''M' - F'M''\right] \pm 4\left(m_{lon}\cos^3\theta - m_{pol}\sin^3\theta\right)\left(F'M' + F''M''\right)\right\} \end{aligned} \tag{A.30}$$

  et donc $A^{Cpm} = \frac{I_+ - I_-}{I_+ + I_-}$ devient :

$$A^{Cpm} \propto \frac{4\left(m_{pol}\sin^3\theta - m_{lon}\cos^3\theta\right)\left[F'M' + F''M''\right]}{\left[1+\cos^2(2\theta)\right]|F_c|^2 + m_{tran}\sin(4\theta)\left[F''M' - F'M''\right]} \tag{A.31}$$

  Cette configuration permet de n'être sensible qu'aux composantes longitudinale et hors du plan de l'aimantation et est donc le complémentaire de la configuration Π. La composante transverse qui apparait dans le dénominateur peut être négligée par rapport au terme de charge, et influe donc peu la forme de la courbe. De plus, si l'aimantation est purement transverse, le numérateur s'annule ce qui annule complètement l'asymétrie. Comme pour la configuration Hpm, si le signal d'asymétrie se situe plutôt à petits angles alors l'aimantation est longitudinale, tandis que si le signal d'asymétrie est fort à grands angles, l'aimantation a une composante hors du plan. Si l'asymétrie est nulle, cela ne signifie pas que l'échantillon n'est pas magnétique, mais seulement qu'il n'y a pas de composantes magnétique dans le plan de diffraction.

Comme montré dans le chapitre 3, paragraphe 3.4.1, l'utilisation de ces différentes configurations permet de déterminer quels sont les composantes de l'aimantation présente au sein d'un matériau. De plus on peut remarquer que les asymétries A^Π, A^{Hpm} et A^{Cpm} peuvent être reliées entre elles. En effet si on fait l'approximation :

$$A^{Cpm} \approx \frac{4\left(m_{pol}\sin^3\theta - m_{lon}\cos^3\theta\right)\left[F'M' + F''M''\right]}{\left[1+\cos^2(2\theta)\right]|F_c|^2} \tag{A.32}$$

justifiée car le terme purement de charge reste plus grand que les termes croisés, on peut exprimer A^{Hpm} en fonction de A^Π et A^{Cpm} :

$$A^{Hpm} = \frac{A^\Pi}{1 + \frac{1}{\cos^2(2\theta)}} + A^{Cpm}. \tag{A.33}$$

Ceci explique la forme très semblable du signal A^{Hpm} à A^Π à grands angles, tandis qu'il ressemble à A^{Cpm} pour des angles plus petits (figure 3.21 du paragraphe 3.4.1). On peut également noter que s'il n'y a pas de composante transverse de l'aimantation les asymétries A^{Hpm} et A^{Cpm} sont égales. En combinant ces deux configurations expérimentales, on peut donc voir "facilement" si une composante transverse de l'aimantation existe.

A.6 Théorie dynamique

Cette théorie permet de prendre en compte la réflectivité aux interfaces ainsi que la propagation des ondes électromagnétiques dans un milieu homogène. La particularité du formalisme présenté est d'être construit à partir des ondes propres. Pour cela, on résoud les équations de Maxwell, ce qui va nous donner les valeurs propres qui correspondent physiquement à l'indice optique ainsi que les vecteurs propres qui vont correspondre à la polarisation de l'onde.

Dans une première partie nous expliciterons les équations de Maxwell et trouverons l'indice de réfraction ainsi que les ondes propres, puis nous exprimerons la matrice de conditions aux limites dans une deuxième partie tout en tenant compte de la rugosité aux interfaces. La matrice de propagation sera déterminée dans une troisième partie. Enfin, la quatrième partie permettra de faire le lien entre les résultats trouvés précédemment afin d'exprimer les coefficients de réflectivités. Nous donnons ici le raisonnement et le détail des calcus qui ont permis d'arriver aux résultats du chapitre 1.4.1.

A.6.1 Résolution des équations de Maxwell

La réponse d'un matériau à un champ électromagnétique est décrite par le déplacement diélectrique $\vec{D}$ et l'induction magnétique $\vec{B}$. Ces deux grandeurs sont reliées aux champs électrique et magnétique par la permittivité diélectrique ϵ et la perméabilité magnétiqueμ. Ces deux grandeurs sont propres à chaque matériau, et sont généralement considérées comme étant scalaire et isotrope. Cependant nous avons vu que les propriétés magnétiques peuvent briser la symétrie structurale et donc créer une anisotropie. Dans ce cas-là, la permittivité et la perméabilité deviennent des tenseurs. Dans le cas d'une interaction entre un métal de transition $3d$ et une onde électromagnétique ayant une énergie proche des seuils $L_{2,3}$ on peut faire l'approximation $\mu = 1$, et $\vec{B} = \vec{H}$. La permittivité électrique quant à elle peut s'exprimer à partir du facteur de diffusion atomique résonant (annexe A.3). Si ce facteur atomique résonant est exprimé dans une base de polarisation quelconque, on a alors un tenseur de diffusion atomique résonant et donc un tenseur pour la permittivité :

$$\hat{\epsilon} = 1 + \hat{\chi} = 1 + \frac{r_0 \lambda^2}{\pi} \sum_i \rho_i \hat{f}_i^{res} \tag{A.34}$$

Le développement du facteur de diffusion atomique résonant $f^{res} = F_{c,r}.\vec{e'^*} \cdot \vec{e} - iF_{m,r}.\vec{u} \cdot (\vec{e'^*} \times \vec{e})$ dans une base quelquonque de polarisation où :

$$\vec{e} = \begin{pmatrix} e_x \\ e_y \\ e_z \end{pmatrix} \text{ et } \vec{e'} = \begin{pmatrix} e'_x \\ e'_y \\ e'_z \end{pmatrix} \tag{A.35}$$

donne :

$$\hat{f}^{res} = \begin{pmatrix} F_{c,r} & -im_{pol}F_{m,r} & im_{lon}F_{m,r} \\ im_{pol}F_{m,r} & F_{c,r} & -im_{tran}F_{m,r} \\ -im_{lon}F_{m,r} & im_{tran}F_{m,r} & F_{c,r} \end{pmatrix} \tag{A.36}$$

On peut remarquer que dans la partie précédente le facteur de diffusion était exprimé dans une base de polarisation circulaire ou linéaire de dimension 2. Cependant les vecteurs de cette base sont exprimés dans la base orthonormée (x, y, z). Dans cette base les équations A.34 et A.36 donne le tenseur de permittivité sous forme de matrice antisymétrique :

$$\hat{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon & \epsilon_{xy} & \epsilon_{xz} \\ -\epsilon_{xy} & \epsilon & \epsilon_{yz} \\ -\epsilon_{xz} & -\epsilon_{yz} & \epsilon \end{pmatrix} \tag{A.37}$$

avec

$$\begin{aligned} \epsilon &= 1 + \frac{r_0 \lambda^2 \rho}{\pi} F_{c,r} \\ \epsilon_{xy} &= -i \frac{r_0 \lambda^2 \rho}{\pi} m_{pol} F_{m,r} \\ \epsilon_{xz} &= i \frac{r_0 \lambda^2 \rho}{\pi} m_{lon} F_{m,r} \\ \epsilon_{yz} &= -i \frac{r_0 \lambda^2 \rho}{\pi} m_{tran} F_{m,r} \end{aligned} \tag{A.38}$$

En général la permittivité est reliée à l'indice de réfraction par la formule $\epsilon = n^2$. Cependant, lorsque la permittivité est anisotrope, cette relation n'est plus exacte. Il faut alors relier l'indice optique n au vecteur d'onde : $\vec{k} = \frac{2\pi}{\lambda}\vec{n}$. Si on considère le champ électrique et magnétique comme des ondes planes (équation A.3), les équations de Maxwell A.4 deviennent :
pour le champ électrique,

$$\begin{aligned} \nabla \times \vec{E} = -\tfrac{2\pi}{\lambda}\vec{n} \times \vec{E} = -\tfrac{\omega}{c}\vec{B} = -\tfrac{2\pi}{\lambda}\vec{B} \\ \Leftrightarrow \vec{E} \times \vec{n} = -\vec{B} \end{aligned} \tag{A.39}$$

et pour le champ magnétique ,

$$\begin{aligned} \nabla \times \vec{B} = -\tfrac{2\pi}{\lambda}\vec{n} \times \vec{B} = -\tfrac{\omega\epsilon}{c}\vec{E} = -\tfrac{2\pi\epsilon}{\lambda}\vec{E} \\ \Leftrightarrow -\vec{n} \times \vec{B} = \epsilon\vec{E} \end{aligned} \tag{A.40}$$

Si on combine ces deux dernières équations en effectuant $\vec{n} \times (eq.A.39)$ on obtient l'égalité :

$$\begin{aligned} \vec{n} \times (\vec{E} \times \vec{n}) = -\vec{n} \times \vec{B} = \hat{\epsilon}\vec{E} = \vec{D} \\ \Leftrightarrow \vec{n} \times (\vec{E} \times \vec{n}) - \hat{\epsilon}\vec{E} = 0 \end{aligned} \tag{A.41}$$

La seule solution possible pour résoudre cette équation revient à annuler le déterminant de la matrice $\vec{n} \times (\vec{E} \times \vec{n}) - \hat{\epsilon}\vec{E}$.

Pour des raisons pratiques il est plus simple de travailler dans le repère attaché à l'onde (x', y', z') défini dans la figure suivante, puis d'utiliser les relations $y' = \cos\theta y + \sin\theta z$ et $z' = -\sin\theta y + \cos\theta z$. Dans cette base, le vecteur $\vec{n}$ n'à qu'une

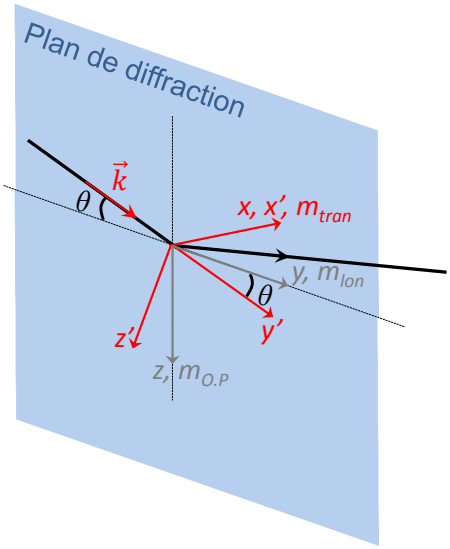


FIGURE A.1 – Changement de base entre le repère attaché à l'échantillon (x, y, z) et le repère attaché à l'onde (x', y', z'). D'après la figure on a $x' = x$, $y' = \cos\theta y + \sin\theta z$ et $z' = -\sin\theta y + \cos\theta z$.

composante selon y' qu'on notera n et l'équation A.41 devient alors :

$$\begin{pmatrix}0\\n\\0\end{pmatrix} \times \left(\begin{pmatrix}E_{x'}\\E_{y'}\\E_{z'}\end{pmatrix} \times \begin{pmatrix}0\\n\\0\end{pmatrix}\right) - \begin{pmatrix}\epsilon & \epsilon_{x'y'} & \epsilon_{x'z'}\\ -\epsilon_{x'y'} & \epsilon & \epsilon_{y'z'}\\ -\epsilon_{x'z'} & -\epsilon_{y'z'} & \epsilon\end{pmatrix}\begin{pmatrix}E_{x'}\\E_{y'}\\E_{z'}\end{pmatrix} = 0$$

$$\Leftrightarrow \begin{vmatrix} n^2-\epsilon & -\epsilon_{x'y'} & -\epsilon_{x'z'}\\ \epsilon_{x'y'} & -\epsilon & -\epsilon_{y'z'}\\ \epsilon_{x'z'} & \epsilon_{y'z'} & n^2-\epsilon\end{vmatrix} = 0 \tag{A.42}$$

$$\begin{aligned}\Leftrightarrow\ & \epsilon\left(n^2-\epsilon\right)^2 - \left(\epsilon_{y'z'}^2+\epsilon_{x'y'}^2\right)\left(n^2-\epsilon\right) + \epsilon\epsilon_{x'z'}^2 + \epsilon_{x'y'}\epsilon_{y'z'}\epsilon_{x'z'} - \epsilon_{x'z'}\epsilon_{x'y'}\epsilon_{y'z'} = 0\\ \approx\ & \epsilon\left(n^2-\epsilon\right)^2 - \left(\epsilon_{y'z'}^2+\epsilon_{x'y'}^2\right)\left(n^2-\epsilon\right) + \epsilon\epsilon_{x'z'}^2 = 0\end{aligned}$$

Etant donné qu'on néglige les termes purement magnétiques d'ordre supérieur à 1, et que l'équation ci-dessus est une équation en n du second degré, il faut supprimer tous les termes purement magnétique d'ordre supérieur ou égal à 3. Pour trouver n il suffit donc de résoudre l'équation du second degré bien connu $aX^2 + bX + c = 0$ avec $X = (n^2 - \epsilon)$. Le déterminant de cette équation est :

$$\Delta = \left(\epsilon_{y'z'}^2+\epsilon_{x'y'}^2\right)^2 - 4\epsilon^2\epsilon_{x'z'}^2 \approx -4\epsilon^2\epsilon_{x'z'}^2 \tag{A.43}$$

Comme ce déterminant est négatif, les solutions sont complexes et on trouve :

$$\begin{aligned} n^2-\epsilon &= \frac{\epsilon_{y'z'}^2+\epsilon_{x'y'}^2 \pm i\sqrt{4\epsilon^2\epsilon_{x'z'}^2}}{2\epsilon}\\ \Leftrightarrow\ n^2 &= \epsilon \pm i\epsilon_{x'z'} + \frac{\epsilon_{y'z'}^2+\epsilon_{x'y'}^2}{\epsilon}\end{aligned} \tag{A.44}$$

Le dernier terme est négligeable (puisque d'ordre 2 purement magnétique) par rapport aux autres termes d'ordre 0 ou 1 purement magnétique. On obtient donc une double solution pour l'indice de réfraction qu'on peut exprimer en fonction des éléments du tenseur de permittivité dans la base (x', y', z') ou bien du facteur de diffusion atomique à l'aide des formules de changement de base ainsi que de l'équations A.38.

$$\begin{aligned} n^{\pm} &= \sqrt{\epsilon \pm i\epsilon_{x'z'}} \\ &\quad \sqrt{1 + \frac{r_0\lambda^2\rho}{\pi}\left(F_{c,r} \mp (\cos\theta m_{lon} + \sin\theta m_{pol})F_{m,r}\right)} \\ &\approx 1 + \frac{r_0\lambda^2\rho}{2\pi}\left(F_{c,r} \mp (\cos\theta m_{lon} + \sin\theta m_{pol})F_{m,r}\right) \end{aligned} \tag{A.45}$$

Cette relation simple est obtenue en négligeant tous les termes d'ordre magnétique supérieur ou égal à deux, car dans le cas du fer la symétrie cubique et le quenching rendent ces termes quasiment nuls. On peut remarquer qu'il y a deux valeurs possibles pour l'indice optique ce qui correspond à deux valeurs propres. En effet, par définition d'une onde électromagnétique, $\vec{n}$ et $\vec{E}$ sont perpendiculaires, donc dans le repère lié à l'onde (x', y', z') l'équation A.41 devient

$$\begin{pmatrix} 0 \\ n^{\pm} \\ 0 \end{pmatrix} \times \left(\begin{pmatrix} E_{x'} \\ \\ E_{z'} \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} 0 \\ n^{\pm} \\ 0 \end{pmatrix} \right) = n^{\pm 2}\vec{E} = \vec{D} = \hat{\epsilon}\vec{E} \tag{A.46}$$

ce qui signifie que $n^{\pm 2}$ sont des valeurs propres et $\vec{E}$ un vecteur propre du tenseur permittivité. Comme on vient de le voir, le déplacement électrique est relié à n et $\vec{E}$ tel que

$$\begin{aligned} & D_{x'} = n^{\pm 2}E_{x'} = \epsilon E_{x'} + \epsilon_{x'z'}E_{z'} \\ \Leftrightarrow \quad & \epsilon E_{x'} \pm i\epsilon_{x'z'}E_{x'} = \epsilon E_{x'} + \epsilon_{x'z'}E_{z'} \\ \Leftrightarrow \quad & \frac{E_{z'}}{E_{x'}} = \pm i \\ \text{or} \quad & D_{z'} = n^{\pm 2}E_{z'} \\ \text{donc} \quad & \vec{D}^{\pm} \propto \frac{1}{\sqrt{2}}\begin{pmatrix} \mp 1 \\ 0 \\ -i \end{pmatrix} \text{ dans la base } (x', y', z') \end{aligned} \tag{A.47}$$

L'équation ci-dessus montre clairement que les ondes propres associées aux valeurs propres $n^{\pm}$ sont, dans le repère rattaché à l'onde, des ondes circulaires. Dans la base (x, y, z) la polarisation de ces ondes devient :

$$\vec{D}^{\pm} \propto \frac{1}{\sqrt{2}}\begin{pmatrix} \mp 1 \\ i\sin\theta \\ -i\cos\theta \end{pmatrix} \tag{A.48}$$

Maintenant que nous avons trouvé les ondes propres, il faut déterminer les conditions qu'elles doivent respecter pour pouvoir satisfaire les conditions de passage d'un milieu à l'autre.

A.6.2 Conditions aux limites, et rugosité

Les équations de Maxwell imposent comme conditions aux limites la continuité des composantes dans le plan du champ électromagnétiques. C'est à dire que les composantes E_x, E_y, H_x, et H_y des vecteurs $\vec{E}$ et $\vec{H}$ respectivement sont les mêmes proche de l'interface entre un milieu m et un milieu $m+1$. Pour déterminer les composantes E_x, E_y, H_x, et H_y on utilise le vecteur propore $\vec{D}^{\pm}$ et les relations A.39 et A.2, ce qui nous donne :

$$\begin{aligned} \vec{E} &= \hat{\epsilon}^{-1}\vec{D}^{\pm} \\ \vec{H} &= \vec{n}\times\vec{E} = \begin{pmatrix} 0 \\ n^{\pm}\cos\theta \\ n^{\pm}\sin\theta \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} n^{\pm}\cos\theta E_z - n^{\pm}\sin\theta E_y \\ n^{\pm}\sin\theta E_x \\ -n^{\pm}\cos\theta E_x \end{pmatrix} \end{aligned} \tag{A.49}$$

On peut calculer $\hat{\epsilon}^{-1}$ à partir de la relation A.37, ce qui donne si on néglige les termes purement magnétiques d'ordre deux :

$$\hat{\epsilon}^{-1} \approx \frac{1}{\epsilon}\begin{pmatrix} 1 & -\epsilon_{xy} & -\epsilon_{xz} \\ \epsilon_{xy} & 1 & -\epsilon_{yz} \\ \epsilon_{xz} & \epsilon_{yz} & 1 \end{pmatrix} \tag{A.50}$$

L'équation A.50 devient alors :

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} &= \frac{1}{\epsilon\sqrt{2}}\begin{pmatrix} 1 & -\epsilon_{xy} & -\epsilon_{xz} \\ \epsilon_{xy} & 1 & -\epsilon_{yz} \\ \epsilon_{xz} & \epsilon_{yz} & 1 \end{pmatrix}\begin{pmatrix} \mp 1 \\ i\sin\theta \\ -i\cos\theta \end{pmatrix} = \frac{1}{\epsilon\sqrt{2}}\begin{pmatrix} \mp 1 - i\epsilon_{xy}\sin\theta + i\epsilon_{xz}\cos\theta \\ \mp\epsilon_{xy} + i\sin\theta + i\epsilon_{yz}\cos\theta \\ \mp\epsilon_{xz} + i\epsilon_{yz}\sin\theta - i\cos\theta \end{pmatrix} \\ \begin{pmatrix} H_x \\ H_y \\ H_z \end{pmatrix} &= \frac{1}{\epsilon\sqrt{2}}\begin{pmatrix} -in^{\pm} \mp n^{\pm}\epsilon_{xz}\cos\theta \pm n^{\pm}\epsilon_{xy}\sin\theta \\ n^{\pm}\sin\theta E_x \\ -n^{\pm}\cos\theta E_x \end{pmatrix} \end{aligned} \tag{A.51}$$

et donc :

$$\begin{aligned} E_x^{\pm} &= \frac{1}{\epsilon\sqrt{2}}\left(\mp 1 - i\epsilon_{xy}\sin\theta + i\epsilon_{xz}\cos\theta\right) \\ E_y^{\pm} &= \frac{1}{\epsilon\sqrt{2}}\left(\mp\epsilon_{xy} + i\sin\theta + i\epsilon_{yz}\cos\theta\right) \\ H_x^{\pm} &= \mp in^{\pm}E_x^{\pm} \\ H_y^{\pm} &= n^{\pm}\sin\theta E_x^{\pm} \end{aligned} \tag{A.52}$$

Ces résultats sont valables pour une onde propre polarisée circulairement. Or de manière général, une onde n'est pas 100% polarisé plus ou moins. Pour tenir compte de ce phénomène on introduit les valeurs $\mathcal{D}^{+}$ et $\mathcal{D}^{-}$ qui sont les amplitudes de polarisations C^{+} et C^{-} respectivement des vecteurs $\vec{D}^{+}$ et $\vec{D}^{-}$.

De plus de manière général, à l'interface entre deux milieux m et $m+1$ il y a deux ondes dans le milieux m et deux ondes dans le milieu $m+1$. En effet, il y a une onde incidente $\mathcal{D}_m^{\searrow}$ qui est transmise $\mathcal{D}_{m+1}^{\searrow}$ ou réfléchie $\mathcal{D}_m^{\nearrow}$ et l'onde réfléchie par l'interface suivante entre le milieu $m+1$ et $m+2$: $\mathcal{D}_{m+1}^{\nearrow}$ (figure A.2).

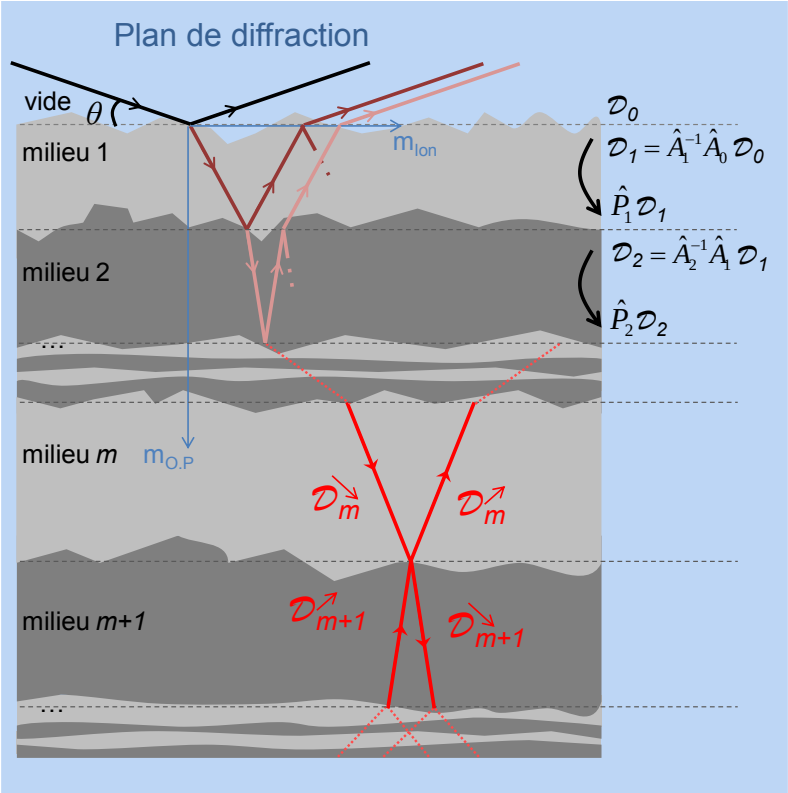


FIGURE A.2 – Schéma des ondes présentes dans un échantillon ayant plusieurs milieux et donc plusieurs interfaces.

Si on tient compte du fait que les ondes ne sont pas 100% polarisées et qu'il y a deux ondes se propageant l'une vers le bas, l'autre vers le haut, dans un même milieu, la composante E_x du milieu m, $E_{x,m}$, s'écrit comme la combinaison :

$$E_{x,m} = E_{x,m}^{+\searrow}\mathcal{D}_m^{+\searrow} + E_{x,m}^{-\searrow}\mathcal{D}_m^{-\searrow} + E_{x,m}^{+\nearrow}\mathcal{D}_m^{+\nearrow} + E_{x,m}^{-\nearrow}\mathcal{D}_m^{-\nearrow} \tag{A.53}$$

Si on effectue le même raisonnement pour les autres composantes planaires du champ électrique et magnétique, on peut alors exprimer ces conditions sous formes matricielles et introduire la matrice des conditions aux limites $\hat{A}_m$, de dimension 4 par 4, ainsi que le pseudo-vecteur $\vec{\mathcal{D}}_m$ tel que dans le milieu m :

$$\begin{pmatrix} E_{x,m} \\ E_{y,m} \\ H_{x,m} \\ H_{y,m} \end{pmatrix} = \hat{A}_m \begin{pmatrix} \mathcal{D}_m^{+\searrow} \\ \mathcal{D}_m^{-\searrow} \\ \mathcal{D}_m^{+\nearrow} \\ \mathcal{D}_m^{-\nearrow} \end{pmatrix} = \hat{A}_m\vec{\mathcal{D}}_m \tag{A.54}$$

$$\text{avec } \hat{A}_m = \begin{pmatrix} E_{x,m}^{+\searrow} & E_{x,m}^{-\searrow} & E_{x,m}^{+\nearrow} & E_{x,m}^{-\nearrow} \\ E_{y,m}^{+\searrow} & E_{y,m}^{-\searrow} & E_{y,m}^{+\nearrow} & E_{y,m}^{-\nearrow} \\ -in^{+\searrow}E_{x,m}^{+\searrow} & in^{-\searrow}E_{x,m}^{-\searrow} & -in^{+\nearrow}E_{x,m}^{+\nearrow} & in^{-\nearrow}E_{x,m}^{-\nearrow} \\ n^{+\searrow}\sin\theta E_{x,m}^{+\searrow} & n^{-\searrow}\sin\theta E_{x,m}^{-\searrow} & -n^{+\nearrow}\sin\theta E_{x,m}^{+\nearrow} & -n^{-\nearrow}\sin\theta E_{x,m}^{-\nearrow} \end{pmatrix}$$

Selon si l'onde descend ou monte c'est à dire selon si le vecteur d'onde est $\searrow$ ou $\nearrow$, l'expression de celui-ci ne va pas être la même dans la base (x, y, z) à un signe près. En effet, on n'a plus une composante positive hors du plan, mais négative. Jusqu'à présent toutes les expressions ont été déterminées pour un vecteur d'onde $\searrow$. Il suffit d'inverser le signe devant les termes en $\sin\theta$ pour obtenir les expressions correspondant au vecteur d'onde $\nearrow$.

La condition de continuité à l'interface entre les milieux m et $m+1$ s'écrit alors :

$$\hat{A}_m \vec{\mathcal{D}}_m = \hat{A}_{m+1} \vec{\mathcal{D}}_{m+1} \tag{A.55}$$

ce qui nous permet de calculer le changement de polarisation de l'onde entre les milieux m et $m+1$: $\vec{\mathcal{D}}_{m+1} = \hat{A}_{m+1}^{-1} \hat{A}_m \vec{\mathcal{D}}_m$.

Nous venons de modéliser le passage d'une onde électromagnétique d'un milieu à un autre pour une interface parfaite. Cependant la rugosité aux interfaces peut modifier grandement la réflectivité. La rugosité peut être définie comme un écart par rapport à une surface plane idéale et est caractérisée par une longueur de corrélation latérale et verticale selon z. En réflectivité spéculaire on est uniquement sensible à la rugosité selon z et on ne peut pas faire de différence entre plusieurs rugosités différentes latéralement [1]. De plus, le phénonmène d'interdiffusion sera confondu avec la rugosité selon z.

Afin de prendre en compte cette rugosité, on utilise le traitement de Debye-Waller qui modélise la rugosité par une gaussienne de largeur σ. Ce modèle est valide pour une rugosité qui peut varier latéralement, et dont l'amplitude ne doit pas dépasser l'épaisseur des couches considérées. Mathématiquement, tenir compte de la rugosité entre un couche m et $m+1$ consiste à multiplier tous les termes de la matrice $\hat{A}_{m+1}^{-1} \hat{A}_m$ par $r^{\pm} = e^{-(k_m \pm k_{m+1})^2 \sigma^2/2}$ où k_m est la norme du vecteur d'onde du milieu m projetée sur l'axe hors du plan z. On obtient ainsi le tableau suivant qui permet de multiplier chaque élément $(\hat{A}_m)_{i,j}$ par $r^{\pm}$.

$$R_{m,m+1} = \begin{bmatrix} r^- & r^- & r^+ & r^+ \\ r^- & r^- & r^+ & r^+ \\ r^+ & r^+ & r^- & r^- \\ r^+ & r^+ & r^- & r^- \end{bmatrix} \tag{A.56}$$

Il y a un choix de signe à faire dans le paramètre de rugosité car le terme $k_m \pm k_{m+1}$ correspond à la norme du vecteur $\vec{k}_m^{\nearrow} - \vec{k}_{m+1}^{\searrow}$ pour le premier bloc de 4 en haut à gauche, à la norme du vecteur $\vec{k}_m^{\searrow} + \vec{k}_{m+1}^{\searrow}$ pour le deuxième bloc de 4 en haut à droite, à la norme du vecteur $\vec{k}_m^{\nearrow} + \vec{k}_{m+1}^{\nearrow}$ pour le troisième bloc de 4 en bas à gauche, et à la norme du vecteur $\vec{k}_m^{\searrow} - \vec{k}_{m+1}^{\nearrow}$ pour le dernier bloc de 4 en bas à droite. Ces vecteurs se déduisent du calcul de la matrice $\hat{A}_{m+1}^{-1} \hat{A}_m$.

Nous venons donc d'établir les opérations mathématiques permettant de transformer l'amplitude d'une onde lorsqu'elle traverse une interface entre deux milieux m

1. Pour avoir accès à la rugosité latérale on peut effectuer des mesures de réflectivté hors spécualaire.

et $m+1$. Lorsqu'une onde rencontre une interface entre deux milieux dont au moins un magnétique, sa polarisation va donc être changée. Il faut maintenant déterminer comment cette onde se propage au sein d'un milieu.

A.6.3 Matrice de Propagation

Lorsqu'une onde électromagnétique se propage à travers un matériau, elle est atténuée et sa phase Φ est modifiée. Cette modification dépend de l'indice de réfraction du milieu $n_m^{\pm}$, de l'angle d'incidence θ ainsi que de la profondeur à laquelle se trouve l'onde c'est à dire z. On doit donc multiplier le pseudo vecteur $\vec{\mathcal{D}}_m$ par la matrice de propagation $\hat{P}_m(z)$ suivante pour connaitre les amplitudes des ondes électromagnétiques lorsqu'elles se trouvent à une épaisseur z au sein du milieu.

$$\hat{P}_m(z) = \begin{pmatrix} e^{\frac{2\pi}{\lambda} n^{+\searrow} \sin\theta z} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & e^{\frac{2\pi}{\lambda} n^{-\searrow} \sin\theta z} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e^{-\frac{2\pi}{\lambda} n^{+\nearrow} \sin\theta z} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e^{-\frac{2\pi}{\lambda} n^{-\nearrow} \sin\theta z} \end{pmatrix} \tag{A.57}$$

Cette matrice est diagonale car les expressions de l'indice de réfraction ont été dérivées à partir des interactions d'ondes propres. Maintenant que nous connaissons la matrice des conditions aux limites et la matrice de propagation, nous pouvons entièrement déterminer les amplitudes de polarisations des ondes électromagnétiques interagissant avec l'échantillon.

A.6.4 Réflectivité

Lorsqu'un champ électromagnétique de polarisation quelconque $\vec{\mathcal{D}}_0$ arrive sur un matériaux, il subit une transformation due à son passage de l'interface entre le vide et le milieu 1 et on obtient un champ électromagnétique de polarisation $\vec{\mathcal{D}}_1 = \hat{A}_1^{-1}\hat{A}_0\vec{\mathcal{D}}_0$. Ce champ se propage ensuite dans le milieu 1 ce qui le modifie, $\vec{\mathcal{D}}_1' = \hat{P}_1\vec{\mathcal{D}}_1$, jusqu'au passage de l'interface entre le milieu 1 et le milieu 2 qui modifie la polarisation du champ électromagnétique en $\vec{\mathcal{D}}_2 = \hat{A}_2^{-1}\hat{A}_1\vec{\mathcal{D}}_1' = \hat{A}_2^{-1}\hat{A}_1\hat{P}_1\vec{\mathcal{D}}_1 = \hat{A}_2^{-1}\hat{A}_1\hat{P}_1\hat{A}_1^{-1}\hat{A}_0\vec{\mathcal{D}}_0$. Si on fait ce raisonnement pour plusieurs couches, jusqu'à ce que le champ électromagnétique ne soit plus assez intense pour continuer à se propager, on peut exprimer la polarisation finale du champ électromagnétique $\vec{\mathcal{D}}_f$ en fonction des différentes matrices de passages, et de conditions aux limites ainsi que de $\vec{\mathcal{D}}_0$.

$$\vec{\mathcal{D}}_f = \hat{A}_f^{-1}\left(\prod_m \hat{A}_m\hat{P}_m\hat{A}_m^{-1}\right)\hat{A}_0\vec{\mathcal{D}}_0 = \hat{M}\vec{\mathcal{D}}_0 \tag{A.58}$$

On peut exprimer les vecteurs $\vec{\mathcal{D}}_f$ et $\vec{\mathcal{D}}_0$ en fonction de l'onde incidente, de l'onde réfléchie dans le vide, et de l'onde transmise finale. Si on prend en compte que toutes se ondes peuvent se décomposer dans la base circulaire et que dans le milieu final, il n'y a pas d'onde réfléchie, on obtient :

$$\vec{\mathcal{D}}_f = \begin{pmatrix} t_{C^+} \\ t_{C^-} \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \text{ et } \vec{\mathcal{D}}_0 = \begin{pmatrix} i_{C^+} \\ i_{C^-} \\ r_{C^+} \\ r_{C^-} \end{pmatrix} \text{ qui sont reliés par } \begin{pmatrix} t_{C^+} \\ t_{C^-} \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} = \hat{M}\begin{pmatrix} i_{C^+} \\ i_{C^-} \\ r_{C^+} \\ r_{C^-} \end{pmatrix} \tag{A.59}$$

Dans cette équation on connait entièrement $\hat{M}$, i_{C^+}, et i_{C^-}. Résoudre cette équation revient à trouver la solution d'un système de quatre équations à quatre inconnues : r_{C^+}, r_{C^-}, t_{C^+}, et t_{C^-}, ce qui est lourd, mais possible. On peut donc exprimer l'amplitude de polarisation de l'onde réfléchie, c'est à dire l'intensité réfléchie, en fonction des coefficients matriciels de $\hat{M}$. La matrice $\hat{M}$ dépend bien sûr du vecteur $\vec{m}$ et est donc directement sensible à l'aimantation pour différentes couches magnétiques, c'est à dire différentes profondeurs.

Soit M_{ij} les coefficients matriciels :

$$\hat{M} = \begin{pmatrix} M_{11} & M_{12} & M_{13} & M_{14} \\ M_{21} & M_{22} & M_{23} & M_{24} \\ M_{31} & M_{32} & M_{33} & M_{34} \\ M_{41} & M_{42} & M_{43} & M_{44} \end{pmatrix} \tag{A.60}$$

et si on déroule les calculs, on obtient :

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} r_{C^+} \\ r_{C^-} \end{pmatrix} &= \begin{pmatrix} r_{C^+C^+} & r_{C^+C^-} \\ r_{C^-C^+} & r_{C^-C^-} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} i_{C^+} \\ i_{C^-} \end{pmatrix} \\ &= \frac{1}{M_{33}M_{44} - M_{34}M_{43}} \begin{pmatrix} M_{34}M_{41} - M_{31}M_{44} & M_{34}M_{42} - M_{32}M_{44} \\ M_{43}M_{31} - M_{41}M_{33} & M_{43}M_{32} - M_{42}M_{33} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} i_{C^+} \\ i_{C^-} \end{pmatrix} \end{aligned} \tag{A.61}$$

A partir des coefficients $r_{C^\pm C^\pm}$ on peut exprimer la rotation Kerr et l'ellipticité Kerr.

Bibliographie

[1] M. Elzo, E. Jal, O. Bunau, S. Grenier, Y. Joly, A.Y. Ramos, H.C.N. Tolentino, J.M. Tonnerre, and N. Jaouen. X-ray resonant magnetic reflectivity of stratified magnetic structures : Eigenwave formalism and application to a W/Fe/W trilayer. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 324(2) :105–112, January 2012.

[2] J. B. Kortright and Sang-Koog Kim. Resonant magneto-optical properties of fe near its $2p$ levels : Measurement and applications. *Phys. Rev. B*, 62(18) :12216–12228, Nov 2000.

[3] H.A. Durr, T. Eimuller, H.-J. Elmers, S. Eisebitt, M. Farle, W. Kuch, F. Matthes, M. Martins, H.-C. Mertins, P.M. Oppeneer, L. Plucinski, Claus M. Schneider, H. Wende, W. Wurth, and H. Zabel. A closer look into magnetism : Opportunities with synchrotron radiation. *IEEE Transactions on Magnetics*, 45(1) :15–57, January 2009.

[4] J. M. Tonnerre, L. Sève, D. Raoux, G. Soullié, B. Rodmacq, and P. Wolfers. Soft x-ray resonant magnetic scattering from a magnetically coupled ag /Ni multilayer. *Physical Review Letters*, 75(4) :740–743, July 1995.

Annexe B

Alignement de l'échantillon par rapport au faisceau synchrotron

Il existe autant de manière d'aligner que de scientifiques, de diffractomètres, et de lignes synchrotron. La méthode que je propose est celle qui me parait la plus directe pour l'alignement de RESOXS sur la ligne SEXTANTS. La difficulté de l'alignement dans les mesures utilisant des rayons X est qu'on ne voit pas ces rayons X. Pour cela il faut donc effectuer des scans et regarder l'intensité en fonction du déplacement ou de la rotation de l'échantillon ou du détecteur pour définir la position de référence de l'échantillon et du détecteur.

La particularité de RESOXS, c'est que ce n'est pas une expérience fixe, elle peut être déplacée pour aller sur d'autres lignes de lumières, ou bien être remplacée par d'autres expériences spécifiques propres aux utilisateurs. Il faut donc faire un préaligment de la gamelle lorsqu'on la rebranche sur la ligne. Tout d'abord on l'incline de deux degrés, puis on utilise le faisceau à l'ordre 0, c'est-à-dire le faisceau de l'aimant de courbure qu'on observe avec les onduleurs grands ouverts et qui est légèrement bleu, pour le centrer sur la bride diamétralement opposée à l'entrée du faisceau. Pour cela il faut au préalable reculer l'échantillon pour laisser passer le faisceau. Une fois ce faisceau centré à l'oeil, on utilise un faisceau provenant des onduleurs d'une énergie et polarisation données, et on aligne en "aveugle" grâce à des scans. Les définitions des translations et des angles de rotations sont données dans le chapitre 3.3 sur la figure 3.9 et 3.17.

Le premier scan consiste à trouver le faisceau avec la photodiode lorsque l'échantillon est reculé. Ce scan en forme de créneau positif permet de centrer le détecteur. Ensuite on effectue un scan de l'échantillon dans la direction perpendiculaire au plan de diffraction x, afin de positionner l'échantillon de tel sorte qu'il coupe de moitié le faisceau direct, c'est le scan tx. Il faut ensuite s'assurer que la surface de l'échantillon est bien parallèle au faisceau. Pour cela on effectue un scan en θ de $\pm 3^{\circ}$, qui doit être symétrique par rapport à 0, c'est ce qu'on appelle le "chapeau chinois". Si celui ci a une pente négative plus forte que la pente positive, cela siginifie que le centre de rotation de la gamelle est devant le point de contact entre le faisceau et l'échantillon. Il faut donc avancer l'échantillon le long du faisceau pour mettre le centre de rotation sur cette intersection. Il faut ensuite refaire un scan tx pour que l'échantillon coupe de moitié le faisceau directe, puis effectuer un nouveau "chapeau

chinois", et itérer jusqu'à ce que simultanément on coupe le faisceau direct de moité et que le scan en θ soit symmétrique. Il faut ensuite s'assurer que l'angle χ est bien nul. Pour cela on utilise un scan δ sur le fasceau direct, qui nous donne un créneau positif correspondant à la hauteur de la fente utilisée devant la photodiode. Lorsqu'on effectue ce même scan pour un angle θ plus grand (40° par exemple), il faut que ce crénau ait la même abscisse. Si ce n'est pas le cas, il faut user de la rotation χ couplée au déplacement x (0.1° correspond à -0.7mm), et refaire le scan δ jusqu'à ce que les coordonnées des bords soient les mêmes que pour le faisceau direct. Plus ce raisonnement est fait à grands angles θ, plus l'ajustement de l'angle χ sera précis. Il faut revenir à $\theta = 0°$ pour vérifier les scans tx et le chapeau chinois qui sont en général décalés.

A ce point, la surface de l'échantillon est parfaitement perpendiculaire au plan de diffraction, et le faisceau direct est coupé de moitié, mais l'axe de rotation du goniomètre n'est pas encore totalement aligné avec le faisceau. Pour cela, il faut tourner l'échantillon de 180° (θ). Si le faisceau direct est toujours coupé de moitié, alors l'alignement est bon. Si ce n'est pas le cas, soit le faisceau est entièrement visible, soit il est complètement caché. Dans le premier cas, si le faisceau est visible, cela signifie que l'axe de rotation de la gamelle et donc la gamelle est trop vers l'anneau. Pour connaitre la déplacement en $+Tx$ à faire sur la gamelle, il faut effectuer un scan tx et regarder pour quel Δx le faisceau est coupé de moitié. Le déplacement à faire est de $+\frac{\Delta x}{2}$. Si le faisceau n'est plus du tout visible après la rotationd de 180°, la gamelle est alors trop à l'extérieur de l'anneau et il faudra se déplacer de $-\frac{\Delta x}{2}$. Il faut ensuite refaire les réglages du détetcteur (scan 2θ), de tx et du chapeau chinois. Après ces réglages à 180°, on revient à 0° pour vérifier qu'on s'est bien déplacé dans le bon sens. Il est souvent nécessaire d'effectuer 2 ou 3 fois ces mesures afin d'être le plus centré possible à cause du "backlash" des moteurs.

Une fois cette étape faite, l'axe de rotation de θ passe bien par le point d'intersection entre le faisceau et l'échantillon, et ceci quelque soit θ. De plus, la surface de l'échantillon est parfaitement perpendiculaire au plan de diffraction. L'alignement est terminé, et nous sommes dans les meilleurs conditions pour effectuer des scans de réflectivité. Cependant, les axes θ et 2θ ne sont pas totalement coaxiaux. Pour palier à ce défaut, on peut effectuer des scans θ de quelques degrés pour des angles $\theta/2\theta$, on parle de "Rocking Curve", et noter à quel angle θ le maximum d'intensité apparait. Ce décalage peut être modélisé par une courbe qu'on peut entrer lorsqu'on lance un scan $\theta/2\theta$. Dans ces conditions, la réflectivité mesurée à chaque points correspond bien au sommet de la "Rocking Curve", et les artefacts expérimentaux sont réduits au maximum.

Points principaux de l'alignement :

1. Alignement de la gamelle à l'œil avac le faisceau direct "bleu".
2. scan 2θ du faisceau direct avec l'échantillon reculé.
3. scan tx permettant de positionner l'échantillon de tel sorte qu'il coupe le faisceau direct de moitié
4. scan θ : "chapeau chinois", déplacement de l'axe de rotation le long du faisceau (z).

5. itération des points 3 et 4.
6. scan δ pour $\theta/2\theta = 0^\circ/0^\circ$, note les valeurs de disparition du faisceau.
7. scan δ pour $\theta/2\theta = 40^\circ/80^\circ$, valeurs de disparitions par rapport au point 6.
8. réglage de χ et x.
9. itération des points 7 et 8, et répétitions pour des angles $\theta/2\theta$ plus grands.
10. vérification des points 3 et 4 pour $\theta/2\theta = 0^\circ/0^\circ$.
11. tourne l'échantillon de 180° : $\theta = 180^\circ$.
12. scan tx, et déplacement de la gamelle de $\pm Tx$ selon le résultat.
13. refaire les points 2, 3, 4, et 5.
14. tourne l'échantillon de -180° : $\theta = 0^\circ$
15. refaire les points 2, 3, 4, et 5.
16. itération des points 11, 12, 13, 14, et 15.
17. "Rocking Curve" pour différents angles $\theta 2/\theta$.

Annexe C

Expérience XRMR Fe/Ag(116)

C.1 Orientations des échantillons

Pour toutes les expériences effectuées sur des échantillons coins, les marches ainsi que le coin ont été positionnés perpendiculairement au plan de diffraction, avec l'axe [110] orienté vers le haut, ou vers le bas. La figure C.1 montre l'orientation des marches par rapport au plan de diffraction pour les différents échantillons coins utilisés.

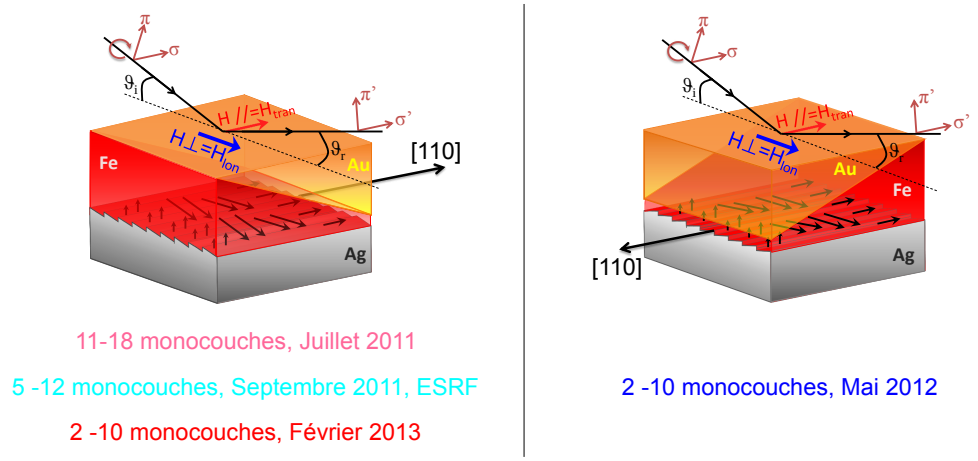
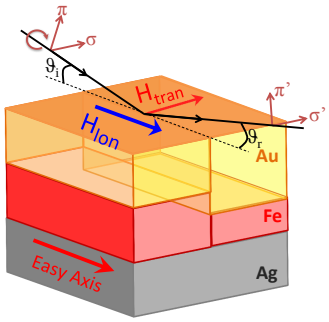
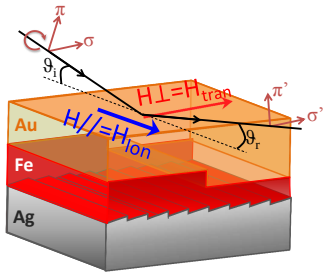


FIGURE C.1 – Orientations des différents échantillons coins par rapport au plan de diffractions. Les couleurs permettront par la suite de regrouper les épaisseurs venant d'un même échantillon

Concernant les échantillons ayant deux épaisseurs, celui de 9 et 13 monocouches sur un substrat plat d'Ag(100) n'a pas d'axe facile d'aimantation, et il suffit de mettre les terrasses parallèlement au plan de diffraction (figure C.2 gauche) tandis que celui ayant 8 et 9 monocouches de Fe sur un substrat vicinal, est orienté avec les marches dans le plan de diffraction car les deux épaisseurs sont parallèles aux marches (figure C.2 droite). Il y a donc une différence de correspondance entre parallèle/perpendiculaire, et longitudinal/transverse.



9 & 13 monocouches, Ag(100) , Octobre 2012



8 & 9 monocouches, Mai 2012

FIGURE C.2 – Orientations des différents échantillons terraces par rapport au plan de diffractions. Les couleurs permettront par la suite de regrouper les épaisseurs venant d'un même échantillon

Pour tous ces échantillons, différentes épaisseurs ont été sondées. La partie suivante, présente l'ensemble des épaisseurs étudiées en indiquant à quels échantillons elles appartiennent grâce au code couleur établit dans les figures C.1 et C.2.

C.2 Récapitulatif des propriétés pour toutes les épaisseurs

Tout échantillons confondus, 13 épaisseurs ont été étudiées. Le tableau C.6 regroupe les épaisseurs étudiées à température ambiante et donne l'orientation de l'axe de facile aimantation ainsi que le nombre de couches magnétiques et leurs épaisseurs, et enfin le nombre d'énergie proche de la résonance effectuées.

	5.9	6.4	8	8.6	9	9 p	10.3	13 p	13.5
EA	⊥	⊥	⊥	⊥	⊥		//		//
nb magn	3	3	3	3	3	3	3	5	5
t magn	2	2.1	2.6	2.9	3	3	3.2	2.6	2.7
nb E	1	1	2	1	2	2	1	3	2

TABLE C.1 – Tableau récapitulatif des différentes épaisseurs de Fe sondées à température ambiante ainsi que l'axe de facile aimantation (EA), le nombre (nb magn) et l'épaisseur (t magn en monocouches) des couches magnétiques, et le nombre d'énergie (nb E) pour lesquelles les mesures magnétiques ont été effectuées. Les épaisseurs de Fe sont données en monocouches dans les cases colorées afin de faire le lien entre les épaisseurs venant d'un même échantillon (ayant la même couleur). Le code couleur est celui donné dans les figures C.1 et C.2

Le même tableau C.2 est donné pour les mesures effectuées à basse température.

	4.2	5	5.9	6.4	7.3	8	8.6	9	9.2	10.3	13.5
EA	⊥	⊥	⊥	⊥	⊥	⊥	⊥	⊥	⊥	⊥	//
nb magn	1	1	3	3	3	3	3	3	3	3	5
t magn	4.2	5	2	2.1	2.4	2.6	2.9	3	3.1	3.2	2.7
nb E	2	2	1	1	2	2	1	2	2	1	2

TABLE C.2 – Tableau récapitulatif des différentes épaisseurs de Fe sondées à basse température ainsi que l'axe de facile aimantation (EA), le nombre (nb magn) et l'épaisseur (t magn en monocouches) des couches magnétiques, et le nombre d'énergie (nb E) pour lesquelles les mesures magnétiques ont été effectuées. Les épaisseurs de Fe sont données en monocouches dans les cases colorées afin de faire le lien entre les épaisseurs venant d'un même échantillon (ayant la même couleur). Le code couleur est celui donné dans les figures C.1 et C.2

C.3 Autres expériences

Afin de compléter notre étude par XRMR, d'autres expériences ont été réalisées. Cependant pour différentes raisons, ces expériences n'ont pû être exploitées entièrement. Cette partie présente les résultats expérimentaux d'une expérience de réflectivité de neutrons polarisés (PNR) ainsi qu'une expérience de dichroïsme magnétique circulaire (XMCD).

C.3.1 PNR

Afin de mieux comprendre comment l'aimantation est distribuée dans le plan, et notamment l'apparition de domaines, une expérience de réflectométrie de neutrons polarisés a été effectuées sur un échantillon de 11 monocouches de Fe sur Ag(116) et recouvert par 8 nm de Rh. Cet échantillon, n'est pas l'échantillon prévu initialement (Fe/Ag(116) recouvert par 20 nm d'Au) à cause de difficultés rencontrées sur le bâti de croissance à Halle. De plus, la faible épaisseur de la surcouche n'a pas permis d'optimiser la réflectivité qui est faible pour de si petites épaisseurs de Fe. Cette partie présente brièvement les résultats obtenus ainsi qu'une analyse qualitative.

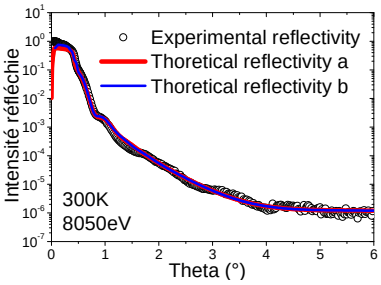
Structure

Une réflectivité de rayons X a été effectuées à 8050eV au laboratoire Léon Brillouin afin de déterminer la structure. La figure C.3 montre les réflectivités expérimentales et théoriques obtenues pour deux modèles différents a et b donnés à gauche et à droite respectivement de la figure C.3.

Comme on peut le voir sur la figure C.3, la réflectivité même avec des rayons X durs est de très mauvaises qualité et très "plate", il est donc difficile de trouver un modèle théorique unique. En effet, l'accord entre expérience et modèles théoriques

Modèle a

	Densité (mol.cm^{-3})	Epaisseur (Å)	Rugosité (Å)
Rh	0.104	66.0	2.7
Fe	0.123	23.9	14.7
Ag	0.088		12.7



Modèle b

	Densité (mol.cm^{-3})	Epaisseur (Å)	Rugosité (Å)
Rh	0.090	62.5	2.7
Fe	0.120	36.0	11.0
Ag	0.087		11.8

FIGURE C.3 – Réflectivité expérimentale (point noir) et meilleur modèle théorique (ligne rouge) pour une mesure à 8050eV à température ambiante

n'est pas bon, et le fait qu'il y ai deux modèles ayant des paramètres différents, qui permettent un accord identique, montre bien que la qualité des données n'est pas assez bonnes pour effectuer une analyse quantitative. La réflectivité est mauvaise sûrement à cause du Rh déposé qui provient de la fin d'une source d'évaporation. Les données PNR sont donc présentées ici mais n'ont pas été analysées quantitativement.

Principe de la PNR

La réflectivité de neutrons polarisés consiste à envoyer des neutrons polarisés sur un échantillon magnétique, et à regarder quelle est la polarisation des neutrons réfléchis grâce à un analyseur de polarisation. Les neutrons polarisés sont des neutrons dont le spin est orienté vers le haut "up" ou vers le bas "down" par rapport au plan de diffraction. On parle de canaux "up-up", "down-down", et "up-down" ou "down-up". L'interaction entre le spin des neutrons et le spin atomique est direct, et l'orientation de l'aimantation au sein de l'échantillon va influencer l'orientation du spin des neutrons se réfléchissant sur le film magnétique. Si l'aimantation est parallèle au spin (c'est à dire transverse) avec une orientation "up", les signaux "up-up" et "down-down" sont différents, et il n'y a pas de signaux croisés "up-down". Si l'aimantation est longitudinale (c'est à dire perpendiculaire au spin des neutrons), les signaux "up-up" et "down-down" sont égaux, et il y a un fort signal croisé "up-down".

En regardant les signaux de réfléctivités pour les 3 canaux "up-up", "down-down" et "up-down", on peut donc déterminer l'orientation de l'aimantation dans le plan.

Résultats expérimentaux

Les expériences de PNR ont été faites au laboratoire Léon Brillouin avec l'aide de Frédéric Ott sur la ligne PRISM. Sur cette expérience, le champ magnétique peut être appliqué uniquement perpendiculairement au plan de diffraction, et le faisceau de neutrons étant très large, il faut un échantillon ayant une seule et même épaisseur. C'est pour cela qu'un nouvel échantillon de Rh/Fe/Ag(116) de 11 monocouches de Fe a été fabriqué. Deux configurations expérimentales ont été utilisées : une où le champ est appliqué perpendiculairement aux marches, et une où le champ est

appliqué parallèlement aux marches. Les mesures ont été effectuées : (i) sous champ appliqué, (ii) à saturation, (iii) entre saturation et rémanence, et (iv) à rémanence.

Des cycles d'hystérésis sont effectués indiquant que l'axe de facile aimantation est le long des marches à température ambiante et basse température, contrairement à ce qu'on attendait : parallèle aux marches à température ambiante et perpendiculaire aux marches à basse température. La figure C.4 montre, pour les deux configurations, l'orientation des marches par rapport au plan de diffraction et au champ magnétique appliqué.

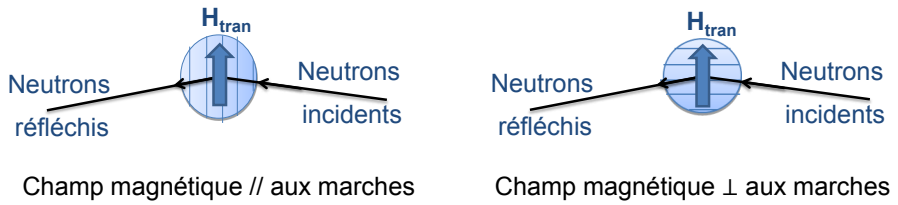


FIGURE C.4 – Configuration où le champ magnétique est appliqué parallèlement aux marches (gauche) et perpendiculairement aux marches (droite)

Champ magnétique parallèle aux marches Lorsque le champ magnétique est appliqué parallèlement à l'axe de facile aimantation, les résultats obtenus à température ambiante et basse température, saturation et rémanence sont les mêmes. La figure C.6 montre les courbes de réflectivité expérimentales obtenues à 10K et 300K (à gauche) et à 10K pour un champ appliqué de 1000G et 15G (à droite) pour les trois canaux "up-up", "down-down" et "up-down". On voit bien sur cette figure que les signaux "up-up" et "down-down" sont différents et que le signal croisé est nul, ce qui signifie que l'aimantation est entièrement selon la direction transverse, c'est à dire parallèle aux marches.

Champ magnétique perpendiculaire aux marches Pour un champ magnétique appliqué perpendiculairement à l'axe de facile aimantation, les résultats ne sont pas les mêmes pour un champ appliqué de 1000G et de 44G. La figure C.2 montre à gauche les résultats obtenus à 10K et 300K pour un champ magnétique appliqué de 44G, ainsi que les résultats obtenus à 10K pour un champ magnétique proche de la rémanence à 44G, et à saturation (1000G), à droite. A saturation, les courbes de réflectivité obtenues dans les trois canaux pour 10K, montrent que l'aimantation est entièrement transverse, puisqu'il n'y a pas de signal "up-down". En revanche, près de la rémanence (44G), les résultats ne sont pas les mêmes qu'à saturation, mais identiques pour les deux températures de 10K et 300K. Un petit signal croisé "up-down" indique qu'une composante de l'aimantation longitudinale, c'est à dire parallèle aux marches existe. Les signaux "up-up" et "down-down" sont proches mais pas identiques, ce qui signifie qu'il y a une composante de l'aimantation qui est toujours perpendiculaire aux marches.

Ces résultats signifient qu'à température ambiante et basse température, près de

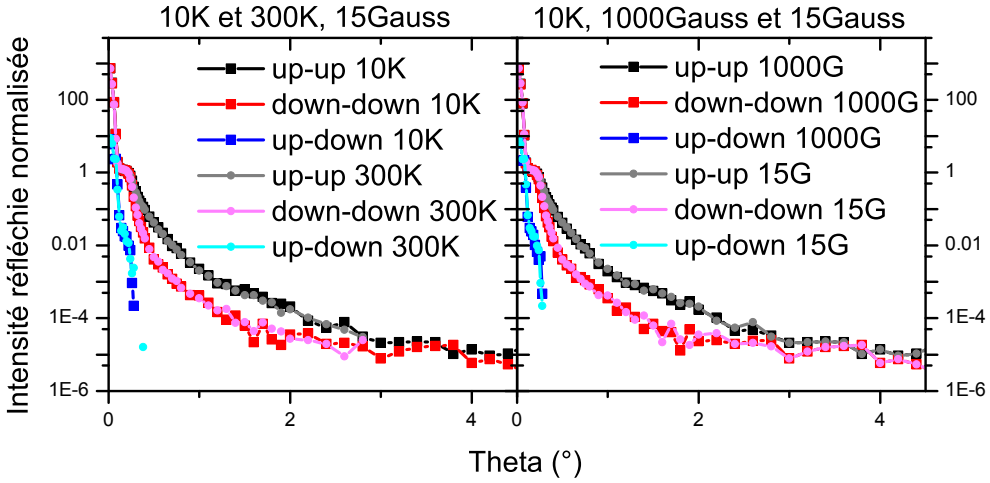


FIGURE C.5 – A gauche, courbes de réflectivité expérimentales “up-up” (noir, gris), “down-down” (rouge, rose), et “up-down” (bleu, cyan) pour 10K (point carré) et 300K (point rond) pour un champ de 15G. A droite, courbes de réflectivité expérimentales “up-up” (noir, gris), “down-down” (rouge, rose), et “up-down” (bleu, cyan) pour un champ appliqué de 1000G (point carré) et 15G (point rond) à 10K

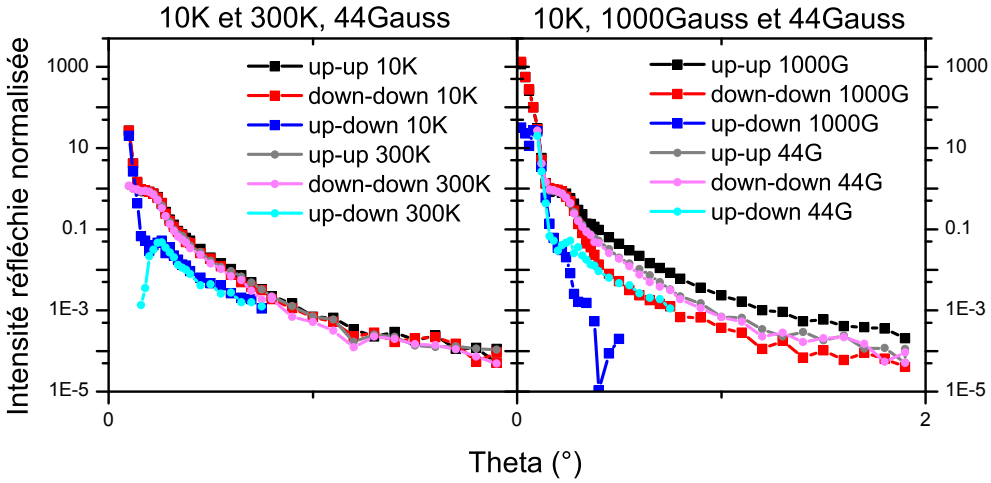


FIGURE C.6 – A gauche, courbes de réflectivité expérimentales “up-up” (noir, gris), “down-down” (rouge, rose), et “up-down” (bleu, cyan) pour 10K (point carré) et 300K (point rond) pour un champ magnétique de 44G. A droite, courbes de réflectivité expérimentales “up-up” (noir, gris), “down-down” (rouge, rose), et “up-down” (bleu, cyan) pour un champ appliqué de 1000G (point carré) et 44G (point rond) à 10K

la rémanence l’aimantation ne revient pas totalement selon l’axe de facile aimantation.

Conclusions

L'échantillon étudié présente des propriétés magnétiques moins intéressantes qu'attendues, et n'est pas de très bonne qualité pour faire de la réflectivité puisque les intensités réfléchies sont très faibles et que les courbes sont très "plates". L'analyse qualitative des donnés permet d'affirmer que lorsque le champ est appliqué selon l'axe de facile aimantation, l'aimantation est bien selon cet axe, et ceci même proche de la rémanence. En revanche proche de la rémanence après avoir appliqué un champ perpendiculairement aux marches, l'aimantation ne tourne pas complètement selon l'axe de facile aimantation. Cela pourrait confirmer la présence de domaines observés en XRMR.

C.3.2 XMCD

Idéalement, lorsqu'on effectue des mesures de réflectivités magnétiques, il faudrait dans le même temps effectuer une mesure XMCD afin d'avoir accès aux facteurs résonants F', F'', M' et M'', qui dépendent de la structure du film mince magnétique. Cependant sur RESOXS, cette mesure n'est pas possible à l'heure actuelle bien qu'on puisse récupérer un courant sur l'échantillon, et qu'un projet de placer un "channel tronc" à côté de l'échantillon pour récupérer les électrons de fluorescences soit en cours. Pour les analyses, on prend donc les valeurs des facteurs résonants mesurés sur des échantillons de référence qui sont souvent massiques. Une approximation est donc faite sur ces facteurs résonants qui ne sont sûrement pas les mêmes que ceux de notre échantillon.

Afin de pouvoir analyser nos résultats avec des facteurs résonants au plus proche de notre système de Au/Fe/Ag(116), des mesures XMCD ont pût être réalisées sur la ligne DEIMOS à SOLEIL grâce à Edwige Otero sur l'échantillon terrace de 8 et 9 monocouches sur Ag(116). La figure C.7 présente les quatre facteurs résonants pour les tables que nous utilisons de C. T. Chen (en noir) et pour les données récoltées pour 8 monocouches de Fe (en rouge) et 9 monocouches (en bleu). Pour les 4 facteurs résonants, les trois courbes sont très semblables, même si une différence d'intensité des pics près de la résonance est assez marquée pour F' et F''. De plus pour ces deux facteurs résonants optiques, vers 720eV, il y a une bosse, qui est due au pic d'absorption du seuil M_1 de l'Ag (719eV). On ne peut donc pas renormaliser les courbes correctement en unité d'électrons. Ceci montre qu'il faudrait refaire les mêmes mesures pour un substrat d'Ag(116) sans rien au dessus afin de soustraire ces données aux données que nous avons prises. Ceci pourrait jouer dans la renormalisation des données et donc modifier les intensités maximums.

Les facteurs résonants F', F'', M', et M'' mesurés ne peuvent donc pas être corrigés correctement, et ne seront donc pas utilisés dans l'analyse. Cependant, si nous utilisons ces données pour un modèle thèorique permettant un bon accord entre expérience et théorie avec les données du Fe massif, il y a très peu de différence, et l'hypothèse d'utiliser des données pour les facteurs résonants du Fe massif est donc valide.

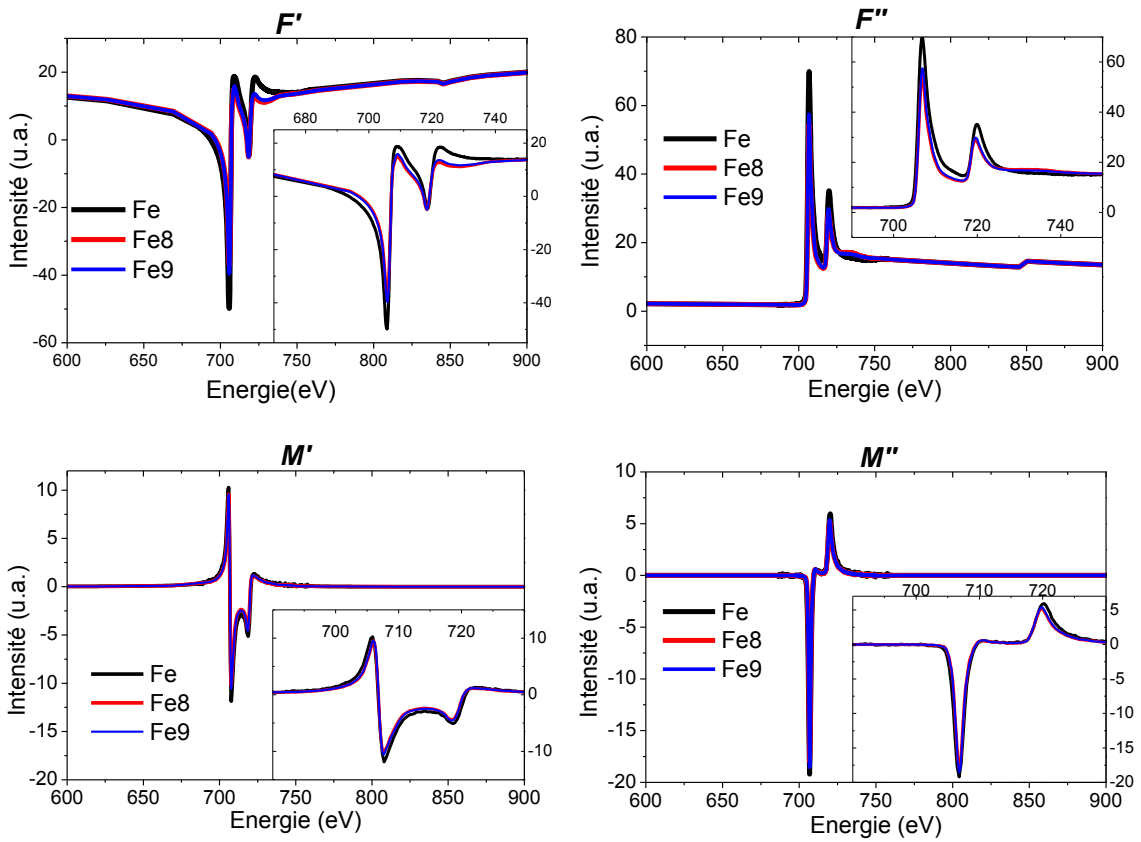


FIGURE C.7 – Facteurs résonants F' en haut à gauche, F'' en haut à droite, M' en bas à gauche et M'' en bas à droite pour un échantillon massif de Fe (noir) un échantillon de 8 monocouces de Fe sur Ag(116) recouvert par 17 monocouches d'Au (rouge) et un échantillon de 9 monocouches de Fe sur Ag(116) recouvert par 17 monocouches d'Au (bleu)

Résumé

Cette thèse traite de l'étude de films ultra minces de Fe par réflectivité magnétique résonante de rayons X mous (SXRMR). La technique de SXRMR associe les effets magnéto-optiques aux propriétés de diffusions des rayons X, ce qui permet sonder les propriétés magnétiques avec une résolution spatiale en profondeur. Un profil magnétique résolu en profondeur est donc dérivé des expériences, permettant d'étudier les effets des interfaces sur l'homogénéité des propriétés magnétiques.

Dans un premier temps nous présentons l'étude d'un film mince de Fe sur un substrat vicinal d'Ag(116) recouvert par de l'Au. Cette étude révèle que l'aimantation est augmentée de 20 à 30% dans les deux à trois monocouches proches des interfaces d'Au et d'Ag, quelque soit la température et l'épaisseur de la couche de Fe. Nous avons également mis en évidence une inhomogénéité de la composante hors du plan à basse température pour des échantillons ayant un axe de facile aimantation perpendiculaire aux marches : la composante de l'aimantation hors du plan est de plus en plus grande lorsqu'on se rapproche du substrat vicinal d'Ag.

Dans un deuxième temps, nous présentons l'étude d'un film mince de six monocouches de Fe sur du Cu(100) et recouvert par de l'Au. En utilisant une approche originale de contrainte sur les paramètres magnétiques, nous avons pû mettre en évidence que la dépendance de l'aimantation en fonction de la température n'était pas la même selon la position de la monocouche dans le film mince de Fe.

Abstract

This thesis deals with depth resolved magnetic profile of ultrathin Fe layers studied by soft X-ray Resonant Magnetic Reflectivity (SXRMR). This SXRMR technique combines magneto-optic effects to X-ray scattering, allowing the sensitivity to depth resovled magnetic properties. The derived magnetic profile allows to probe the homogeneity of magnetic properties and to reveal interfacial effect.

First, we present the study of a thin Fe film grown on a Ag(116) vicinal substrate and covered by Au. This study unreveal a magnetization enhancement of 20 to 30% in the two to three monolayers near both interfaces, whatever the Fe thickness. We have also evidence an inhomogeneity of the out of plane magnetic component at low temperature for sample where the easy magnetization axis is perpendicular to the steps : the out of plane magnetic component is decreased with Fe layer away from the vicinal substrate of Ag.

Second, we present the study of a six monolayers thin film of Fe grown on a Cu(100) substrate and covered by Au. Using a new approach to constrain the magnetic parameters, we have highlighted that the temperature dependance of the magnetization is not the same depending ont the position of the monolayer inside the Fe thin film .