

PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES DE NANOSTRUCTURES DE COBALT ADSORBÉES

THÈSE N° 2980 (2004)

PRÉSENTÉE À LA FACULTÉ SCIENCES DE BASE

Institut de physique des nanostructures

SECTION DE PHYSIQUE

ÉCOLE POLYTECHNIQUE FÉDÉRALE DE LAUSANNE

POUR L'OBTENTION DU GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES

PAR

Nicolas WEISS

ingénieur physicien diplômé EPF
et de nationalité française

acceptée sur proposition du jury:

Prof. H. Brune, directeur de thèse
Dr F. Charra, rapporteur
Dr O. Fruchart, rapporteur
Prof. M. Gijs, rapporteur

Lausanne, EPFL
2004

Abstract

This thesis reports results on magnetic properties of supported cobalt nanostructures. The nanostructures were grown on single crystal metal surface by Molecular Beam Epitaxy in an Ultra High Vacuum chamber. Our experimental setup is based on two *in situ* measurement techniques. The first is the Scanning Tunneling Microscope (STM) allowing to investigate the nanostructure morphology. The second, called Surface Magneto-Optical Kerr Effect (SMOKE), probes the magnetism of the nanostructures. By combining the data obtained with both techniques we were able to investigate the magnetism of 2D nanoparticles down to the atomic level.

The first aim of the thesis consisted in disclosing the role played by the differently coordinated atoms in determining the Magnetic Energy Anisotropy in 2D nanostructures. To this purpose, we performed experiments on the Co/Pt(111) system, chosen as a model system since the Pt surface is well known to increase the out-of-plane uniaxial anisotropy as well as the magnetic moment of the Co islands. A preliminary work has been devoted to the growth of the Co islands as a function of the deposition and annealing temperatures. As a result, we learned to grow three different island's shapes : ramified, compact and double-layer islands. We then concentrated on the magnetism of these islands. Due to the nonlinear relationship between perimeter length and surface area, we were able to distinguish the different contributions to the anisotropy energy of surface and perimeter atoms. We found that the magnetic anisotropy in 2D Co nanostructures is predominantly due to the low-coordinated edge atoms, for which the anisotropy energy can be as large as 20 times the bulk value. This finding opens new possibilities to separately tune the anisotropy and moment of nanostructures. To exemplify this, and to illustrate once more the role of perimeter atoms, we produced Co island with a non-magnetic Pt core. As expected, these bimetallic islands have identical anisotropy and lower magnetic moment to their equally shaped pure Co counterpart.

The second aim we focused on was the investigation of the magnetic properties of ultra-high density arrays of nanostructures created by self-assembly. We chose Co/Au(788) as a model system since the nanoscopic Co dots were found to have a very narrow size distribution and to be placed onto a lattice which is phase coherent on a macroscopic length scale. Moreover,

the array has a density of 26 Tdot/in² which allows the investigation of inter-particle interaction in ultra high density arrays. We showed that the narrow size distribution of the dots corresponds to an unprecedented narrow Magnetic Anisotropy Energy distribution with 35% width at half of the maximum. Moreover, we demonstrated the weak magnetic coupling between the Co dots despite their high density.

In parallel to these fundamental researches, we developed a new experimental setup that will replace the current one. We designed a UHV chamber equipped with a homemade variable temperature STM combined with a SMOKE experiment. A quadrupole, focused on the sample, generates a 0.35 T magnetic field. This field is one order of magnitude larger than the present one and can be uniformly rotated in the plane of the quadrupole. Furthermore, the design of the new chamber allows STM imaging in this magnetic field. In this report, we present the adopted solutions as well as the first tests of the components (STM, SMOKE, cryostat).

⁰Rem : this thesis is available in pdf format at <http://library.epfl.ch/theses/>

Version abrégée

Ce projet de thèse a porté sur l'étude des propriétés magnétiques de nanostructures de cobalt adsorbées sur une surface cristalline métallique. Les nanostructures sont fabriquées par croissance par jet moléculaire (MBE) dans une enceinte ultra haut vide (UHV). Nous avons utilisé conjointement deux techniques expérimentales *in situ*. La première est le microscope à effet tunnel (STM) à température variable qui permet d'obtenir des images précises des nanostructures et ainsi de caractériser leur morphologie. La deuxième permet de sonder le magnétisme des nanostructures et se nomme : Surface Magneto-Optical Kerr Effect (SMOKE). Grâce aux informations obtenues par ces deux techniques, il est possible de corrélérer les propriétés magnétiques des nanostructures à leur forme et d'étudier à l'échelle atomique le magnétisme de nanoparticules 2D .

Dans un premier temps, nous avons cherché à révéler les origines de l'anisotropie magnétocristalline des nanostructures 2D en mettant en valeur le rôle de la coordination atomique dans la valeur de l'énergie d'anisotropie magnétique. Pour cela, nous avons effectué nos recherches sur le système modèle Co/Pt(111). En effet, la surface Pt(111) est reconnue pour favoriser l'anisotropie uniaxiale hors-plan et augmenter le moment magnétique des îlots de Co. Un travail préliminaire, porté sur la croissance des îlots de Co en fonction de la température du dépôt et du recuit, nous a permis de créer des îlots de morphologies différentes : des îlots ramifiés, compacts ou bi-couches. En confrontant les mesures de susceptibilité magnétique $\chi(T)$ de ces échantillons à des modèles théoriques, nous avons pu mettre en évidence le rôle prépondérant que jouent les atomes du bord de l'îlot (en comparaison à ceux du centre) dans la valeur positive de l'anisotropie magnétique. Cette découverte ouvre de nouvelles possibilités pour ajuster séparément le moment magnétique et l'anisotropie de l'îlot. Comme illustration, et pour démontrer encore une fois le rôle des atomes de la périphérie, nous avons produit des îlots de Co comportant un cœur non-magnétique de Pt. Comme prévu, ces îlots bi-métalliques ont une anisotropie identique et un moment inférieur aux îlots de Co purs de forme comparable.

Dans un deuxième temps, nous nous sommes intéressés aux propriétés magnétiques d'îlots mono-disperses arrangés selon un réseau de très forte densité. Pour cette étude nous avons utilisé un cristal Au(788). Cette sur-

face vicinale permet de créer par auto-assemblage un réseau rectangulaire périodique de plots de Co. La distribution en taille très piquée de ces îlots se reflète naturellement dans l'uniformité de leurs propriétés magnétiques. Par exemple, nous avons pu mesurer une distribution d'énergie d'anisotropie ayant une largeur à mi-hauteur de seulement 35%. Cette valeur est deux fois plus petite que la meilleure mesure effectuée sur d'autres systèmes. C'est ainsi que nous détenons le record mondial d'homogénéité des propriétés magnétiques de nanostructures auto-assemblées. Nous avons aussi pu démontrer que, malgré leur très forte densité de $26 \text{ T}\cdot\text{in}^{-2}$, l'interaction magnétique entre les îlots de Co est quasiment nulle.

En plus de ces travaux de recherche fondamentale, nous avons développé une nouvelle expérience qui doit remplacer l'expérience actuelle. Le développement a consisté à construire une enceinte UHV complète, un STM à température variable et un système de mesure Kerr. Le champ magnétique est créé par un quadropôle et permet d'atteindre 0.35 T. Ce champ est un ordre de grandeur plus élevé que le champ actuellement disponible et peut être orienté continûment dans tout le plan du quadropôle. De surcroît, la conception de l'enceinte permet de faire des images STM dans ce champ magnétique. Dans ce rapport, nous présentons les solutions techniques que nous avons adoptées ainsi que les premiers tests réalisés sur les divers composants (STM, SMOKE, cryostat).

⁰Rem : cette thèse est disponible au format pdf à l'adresse <http://library.epfl.ch/theses/>

Table des matières

Abstract	i
Version abrégée	iii
Introduction	1
1 L'effet Kerr	9
1.1 Introduction	9
1.2 Origines des effets Magneto-Optiques (MO)	11
1.3 Description théorique des effets MO	12
1.3.1 Equation de propagation, modes propres	12
1.3.2 Théorie de l'effet Faraday	15
1.3.3 Théorie de l'effet Kerr	15
1.4 Discussion : Effet Kerr pour les configurations simples	18
1.5 Notions fondamentales d'optique	19
1.5.1 Polarisation elliptique	19
1.5.2 Biréfringence	21
1.5.3 Réflexion de la lumière sur une surface	21
2 Microscope à effet tunnel	25
2.1 Principes du STM	26
2.2 Description du STM	28
2.2.1 Résonance du microscope	29
2.2.2 Isolation des vibrations mécaniques	31
2.2.3 Description de la construction	32
2.2.4 Premières mesures STM : Ru(0001)	35
3 Le système expérimental	39
3.1 Description de l'enceinte	39
3.1.1 La chambre UHV	39
3.1.2 Le porte-échantillon	39
3.1.3 Préparation de l'échantillon	40
3.2 Le Kerr (SMOKE)	41
3.2.1 Principe de la mesure Kerr	41

3.2.2	Les bobines magnétiques	43
3.2.3	La source de lumière	44
3.2.4	La détection de lumière	44
3.2.5	Procédure de mesure	45
4	Fabriquer des nanostructures	47
4.1	Introduction à la théorie de la nucléation	48
4.2	Croissance auto-organisée	52
5	Le superparamagnétisme	55
5.1	Introduction au superparamagnétisme	56
5.2	Anisotropie	58
5.3	Modélisation du superparamagnétisme	59
5.3.1	Cas limite, $K \rightarrow \infty$: modèle d'Ising	59
5.3.2	Cas limite, $K = 0$: modèle de Langevin	60
5.3.3	Modèle du superparamagnétisme pour les îlots	61
6	Etude du système Co/Pt(111)	65
6.1	Etude de la croissance du Co sur Pt(111)	67
6.1.1	Préparation de la surface de Pt(111)	67
6.1.2	Dépôt du Co	68
6.2	Propriétés magnétiques en fonction de la forme des îlots de Co sur Pt(111)	75
6.3	Propriétés magnétiques d'anneaux de Co	83
6.3.1	Fabrication des anneaux de Co	83
6.3.2	Propriétés magnétiques d'anneaux de Co	85
7	Etude du système Co/Au(788)	89
7.1	Croissance Co/Au(788)	90
7.1.1	Croissance Co/Au(111)	90
7.1.2	Surface Au(788)	92
7.1.3	Dépôt du Co sur Au(788)	93
7.2	Propriétés magnétiques des îlots de Co/Au(788)	97
7.3	Réseau de piliers de Co	100
8	Développement de la nouvelle expérience	105
8.1	L'enceinte UHV	106
8.2	Le système de mesure Kerr	107
8.2.1	L'électroaimant	107
8.2.2	Le système optique	111
8.3	Le bloc central	112
8.3.1	Le porte-échantillon	112
8.3.2	Le porte-porte-échantillon	113
8.3.3	Le système d'amortissement	115

8.4	Le cryostat	116
8.5	Le STM	118
8.5.1	Construction	118
8.5.2	Fonctionnement du programme	120
8.5.3	Premiers tests du STM	123
	Conclusion	127
	Bibliographie	130
	Remerciements	137
	Curriculum vitae	139

Introduction

Depuis quelques décennies, les recherches visant à produire, comprendre et utiliser des nanostructures ne cessent de s'intensifier. C'est ainsi que l'on a vu apparaître de nouvelles disciplines, telles les nanosciences et nanotechnologies, faisant progresser leurs sœurs aînées du monde *micro*, d'une étape de plus vers l'infiniment petit. Les nanosciences se basent sur le fait que les propriétés des matériaux changent en fonction de leurs dimensions physiques et les nanotechnologies tirent parti de ces nouvelles propriétés pour exploiter le potentiel prometteur offert par les nanostructures. Ces propriétés originales proviennent du fait que les objets de taille nanométrique contiennent un nombre d'atomes intermédiaire entre les objets micro- ou macroscopiques ($>10^6$ atomes) et les petites molécules (<10 atomes). C'est ainsi, que l'aspect de la densité d'états électroniques des objets nanométriques se situe entre celle des objets macroscopiques (continuum) et celle des molécules (niveaux d'énergies discrets). A cela s'ajoutent de nouveaux phénomènes directement reliés à la dimensionnalité de l'objet qui modifie le confinement quantique des électrons, depuis les points quantiques à 0D jusqu'aux gros agrégats 3D en passant par les fils quantiques (1D) et plans quantiques (2D) [1]. Les nanostructures se voient ainsi conférer de nouvelles propriétés mécaniques [2, 3], optiques [4, 5], thermodynamiques [6, 7], électriques [8] ou magnétiques et ouvrent la voie à de fascinantes recherches fondamentales ainsi qu'à des applications technologiques toujours plus performantes.

Bien que le magnétisme soit connu et abondamment utilisé depuis l'Antiquité, les phénomènes magnétiques à l'échelle atomique, tels l'interaction d'échange [9–12], l'interaction avec le champ cristallin [13] ou le couplage spin-orbite relativiste [14, 15] ont été découverts durant la première moitié du XX^{ième} siècle et sont aujourd'hui exploités, par exemple pour produire des aimants permanents intermétalliques de haute performance ($\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ ou SmCo_5). D'autres phénomènes liés au magnétisme ont encore vu le jour plus récemment, comme la Magnéto-Résistance Tunnel découverte en 1975 [16] ou la Magnéto-Résistance Géante (GMR) observée pour la première fois en 1988 [17]. Cet effet est d'ailleurs massivement utilisé depuis plusieurs années par l'industrie dans les têtes de lecture de nos disques durs. Les fabricants ont, en effet, exploité les propriétés remarquables de la GMR pour concevoir une nouvelle génération de têtes beaucoup plus sensibles et performantes

que les précédentes têtes inductives.

Aujourd'hui encore, les moyens de stockage utilisant le magnétisme sont largement majoritaires et ont une place privilégiée dans l'audio, la vidéo et les disques durs des ordinateurs. Le premier disque dur a vu le jour en 1956 chez IBM avec une capacité de 5 Mo pour une densité de 2 Kb/in². Depuis l'utilisation de ces supports magnétiques, la quantité d'informations à stocker n'a cessé de croître poussant les constructeurs à sans cesse augmenter la densité de leur support. C'est ainsi que la densité d'informations des disques durs actuels double chaque année et affiche environ 100 Gb/in² (cf. fig. 1).

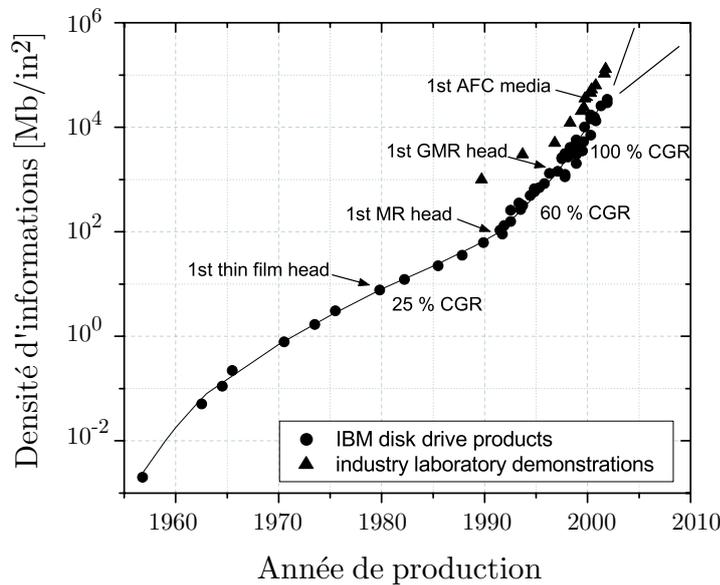


FIG. 1: Evolution de la densité d'informations des disques durs depuis leur invention en 1956 par IBM. Actuellement la densité est de l'ordre de 100 Gb/in² et continue de doubler chaque année. [Source : [18]]

La couche sensible des disques durs conventionnels est constituée d'un film amorphe continu composé de petits agrégats magnétiques (CoPtCrB) faiblement couplés entre eux (cf. fig. 2). L'aimantation de chacun de ces agrégats est parallèle à la piste (enregistrement longitudinal). Toutefois, la forme aléatoire et irrégulière des grains et le champ démagnétisant qui règne aux interfaces de grains possédant des aimantations opposées ne permettent pas de parfaitement garantir la direction de leur aimantation. Afin de conserver un rapport signal/bruit acceptable lors de la lecture, un bit d'information doit par conséquent être composé d'environ 100-200 grains. Dès lors, l'augmentation de la densité passe par la diminution de la taille des bits et donc du diamètre des agrégats. Cette réduction du volume des grains a cependant pour effet d'amoinrir la stabilité magnétique vis-à-vis des fluctuations ther-

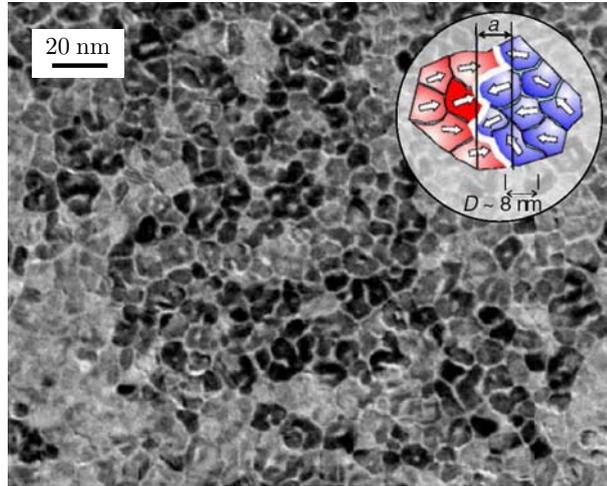


FIG. 2: Image en transmission électronique (TEM) de la couche magnétique présente dans les disques durs modernes. Un bit est constitué d'environ une centaine de grains magnétiques de CoPtCrB. L'aimantation est dans le plan de la couche parallèle à la piste. En encart : illustration des problèmes de frustrations qui apparaissent à la frontière de chaque bit. [Source : [18]]

miques, ce qui peut conduire à la perte de l'information inscrite, c'est ce que l'on appelle la limite superparamagnétique. Les matériaux utilisés actuellement ont une énergie d'anisotropie volumique de l'ordre de $3 \cdot 10^5 \text{ J/m}^3$. Si l'on exige qu'un bit conserve son information pendant 10 ans à température ambiante, il faut que le diamètre des grains qui le composent soit supérieur à 8 nm. Avec des agrégats sphériques de cette taille, la densité atteinte est d'environ 80 Gb/in^2 . Aujourd'hui, le diamètre moyen des grains est déjà inférieur à 10 nm et c'est grâce à de nouveaux procédés astucieux, comme par exemple le couplage antiferromagnétique (AFC) [19] et l'amélioration des codes de correction d'erreurs (ECC), que la limite superparamagnétique a pu être repoussée. Toutefois, pour franchir la barrière des 500 Gb/in^2 , de nouvelles générations de disques durs devront être développées.

La première évolution va être d'employer un système où l'aimantation est orthogonale à la surface (enregistrement perpendiculaire, cf. fig. 3). Cette configuration devient, en effet, très favorable pour les fortes densités car le champ démagnétisant entre bits a un rôle stabilisateur (contrairement à l'enregistrement longitudinal où le champ démagnétisant affaiblit la stabilité des bits et crée une zone de transition magnétique plus large). De plus, la forme allongée hors-plan des grains entraîne une meilleure homogénéité de la direction d'aimantation ce qui accroît substantiellement le rapport signal/bruit [20]. Pour poursuivre la progression vers de plus hautes densités, il sera ensuite nécessaire d'utiliser des surfaces structurées, pour lesquelles un bit est contenu dans une seule nanostructure et est spatialement isolé

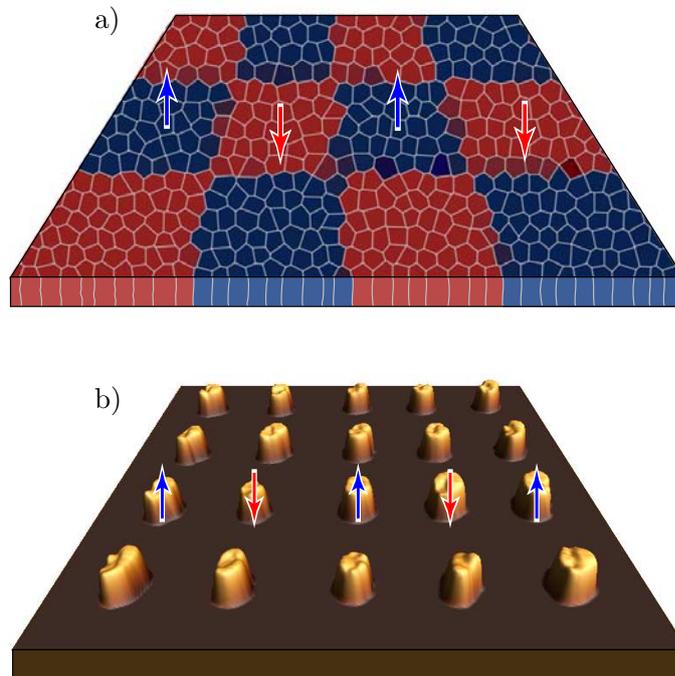


FIG. 3: Dans l'enregistrement perpendiculaire l'aimantation est orthogonale à la surface. Cette technique permet d'augmenter la densité de bits par rapport à l'enregistrement longitudinal. L'enregistrement perpendiculaire devrait apparaître dans un premier temps sur des films granulaires continus (a) puis sur des surfaces nanostructurées périodiques où les bits sont isolés les uns des autres et ne contiennent qu'un seul grain (b).

des bits environnants, le tout étant organisé selon un réseau périodique pour permettre une lecture et une écriture automatiques et régulières. Les recherches sont actives dans ce domaine car de nombreuses voies sont encore ouvertes pour la fabrication des nanostructures ainsi que celle du réseau. Bien que très prometteuses, les techniques de lithographies standards, dites "top-down", n'ont pas encore la résolution suffisante pour créer des objets nanométriques sur des surfaces macroscopiques de plusieurs cm^2 . Pour réaliser de tels réseaux, les procédés "bottom-up" (par exemple par voie chimique (cf. fig. 4) ou par croissance par jet moléculaire) consistant à assembler des atomes ou des molécules pour former les nanostructures, se multiplient et laissent déjà entrevoir des possibilités prometteuses.

Au niveau de la physique, de nombreuses questions fondamentales restent encore en suspens. Par exemple, l'influence du substrat sur les propriétés de la nanostructure, l'origine de l'anisotropie magnétique ou les effets de la dimensionnalité sur la température de Curie sont autant de sujets qui doivent être clarifiés. Répondre à ces problèmes est essentiel pour la compréhension

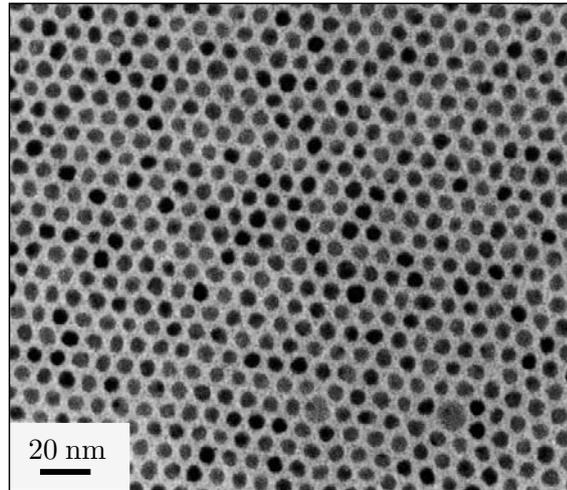


FIG. 4: Image TEM de nanoparticules de FePt de 6 nm de diamètre, synthétisées par voie chimique, formant par auto-assemblage un cristal de plusieurs dizaines de nanomètres d'épaisseur. [Source : S. Sun *et al.* [21]]

de la physique des nanostructures magnétiques et sont une étape essentielle pour l'optimisation des performances des technologies les utilisant.

Durant ce projet de thèse, nous nous sommes intéressés aux propriétés magnétiques de nanostructures 2D déposées sur une surface métallique. En particulier, nous nous sommes concentrés sur deux problématiques fondamentales :

1. Comprendre, au niveau atomique, l'origine de l'anisotropie magnéto-cristalline, grandeur qui assure la stabilité de l'aimantation contre l'agitation thermique.
2. Créer et étudier un réseau ultra-dense de nanostructures, caractérisées par des propriétés magnétiques homogènes (c'est-à-dire qui possèdent un même axe d'aimantation facile et une même énergie d'anisotropie).

Cette thèse rapporte les résultats obtenus à propos de ces deux problèmes. De surcroît, elle présente les notions expérimentales et théoriques utilisées pour obtenir, analyser et comprendre les résultats. L'organisation de ce rapport est présentée ci-dessous.

Le principe de mesure que nous avons utilisé pour sonder le magnétisme de nos nanostructures utilise l'effet Kerr dans la technique SMOKE (Surface Magneto-Optical Kerr Effect). Le **chapitre 1** décrit la théorie et la phénoménologie de cet effet ainsi que les principes d'optiques utiles à la compréhension des mesures et des artefacts. Grâce à cette technique nous

avons pu mesurer la susceptibilité magnétique de nanostructures (ne contenant que quelques centaines d'atomes) en fonction de la température.

Les images de nos nanostructures ont été réalisées grâce à un microscope à effet tunnel (STM). Cet appareil est en effet le seul à pouvoir imager des objets nanométriques avec une résolution inférieure à 0.01 nm. Il est ainsi possible de parfaitement caractériser la forme, le volume et la densité surfacique des nanostructures que nous fabriquons. Le **chapitre 2** explique le mode de fonctionnement du STM et donne aussi la description du premier STM que nous avons construit et employé pendant ce projet.

La fabrication des nanostructures ainsi que leur caractérisation par les techniques SMOKE et STM ont été obtenues dans une enceinte ultra haut vide (UHV). Cette condition est nécessaire pour éviter toute forme de pollution et oxydation qui modifie les propriétés des nanostructures magnétiques. Dans le **chapitre 3** nous décrivons notre installation expérimentale.

Pour fabriquer nos nanostructures nous avons employé la technique de croissance par jet moléculaire (MBE). Cette dernière est couramment utilisée dans les laboratoires de recherche pour produire les nanostructures suivant un procédé "bottom-up". Un rappel sur cette technique est donné dans le **chapitre 4**.

La théorie modélisant la dynamique de l'aimantation d'une nanostructure magnétique est explicitée au **chapitre 5**. Les résultats de cette théorie nous permettent d'exprimer l'évolution de la susceptibilité magnétique en fonction de la température et ainsi de vérifier la validité des modèles expliquant l'origine de l'anisotropie magnétique.

Dans le **chapitre 6**, nous présentons les résultats obtenus pour des îlots de Co déposés sur une surface de Pt(111). A partir des mesures magnétiques et des données morphologiques nous avons pu valider rigoureusement les modèles décrivant les courbes magnétiques obtenues. Grâce à la grande dispersion en taille et en périmètre de ces nanostructures, nous avons pu mettre en évidence le rôle prépondérant que jouent les atomes de la périphérie dans l'énergie d'anisotropie totale. C'est ainsi que nous avons pu conclure que la stabilité magnétique des îlots est exclusivement due à l'anisotropie fournie par les atomes du bord de l'îlot. Nous avons pu confirmer cet effet en réussissant à former des anneaux de Co de 10 nm de diamètre et en constatant qu'ils ont la même anisotropie que les îlots pleins. Par conséquent, en modifiant uniquement la longueur du périmètre il est possible de changer l'énergie d'anisotropie totale sans modifier l'amplitude de l'aimantation (qui dépend du volume magnétique). Cette expérience est une avancée dans le domaine de la croissance de nano-objets par MBE et ouvre la porte sur de

nouvelles possibilités dans la nanotechnologie.

Dans le **chapitre 7**, nous présentons les résultats obtenus pour des îlots de Co déposés sur la surface vicinale Au(788). L'intérêt de ce système est que les nanostructures sont monodisperses en taille et arrangées selon un réseau périodique rectangulaire. Cette étude expose la faisabilité de créer des réseaux périodiques par auto-organisation tout en gardant un contrôle rigoureux sur l'homogénéité des propriétés magnétiques des îlots. La densité de nanostructures de ce système est de 26 Tdot/in^2 soit 260 fois plus que les disques durs actuels. Nous avons aussi mis en évidence l'absence d'interactions magnétiques entre les îlots, même à une densité aussi élevée.

Parallèlement aux expériences réalisées, une grande partie de ce projet de thèse a été consacrée à la conception et la mise en place d'une nouvelle enceinte UHV comprenant un STM à température variable et un système de mesure Kerr. Par rapport à l'expérience existante, elle devrait permettre une plus grande sensibilité des mesures magnétiques grâce à l'utilisation d'un champ magnétique 7 fois plus intense (0.35 T). De plus, elle offre la possibilité d'acquérir des images STM sous champ magnétique (pour, par exemple, des mesures STM polarisé en spin) ainsi que de pouvoir changer et transférer les échantillons sans ouvrir l'enceinte à vide. Le **chapitre 8** décrit le montage expérimental et les éléments les plus importants que nous avons conçus ainsi que les premiers tests effectués. Nous décrivons aussi dans ce chapitre le deuxième STM fabriqué, le principe de fonctionnement du programme temps réel qui le pilote ainsi que les premières images obtenues.

Chapitre 1

L'effet Kerr

Au cours de ce travail nous avons étudié les propriétés magnétiques d'objets 2D, déposés sur une surface cristalline, qui contiennent moins de 10000 atomes. Les mesures magnétiques ont été faites en exploitant l'effet Kerr dans une technique nommée Surface Magneto-Optical Kerr Effect (SMOKE). Cette technique a déjà fait ses preuves dans l'étude de multicouches magnétiques et peut être optimisée pour parvenir à sonder le faible moment magnétique des nano-objets. D'autre part, elle est compatible avec les restrictions imposées par une expérience UHV puisqu'elle ne nécessite qu'une diode laser, des polariseurs et une photodiode qui peuvent être placés à l'extérieur de l'enceinte. Nous reviendrons sur le montage expérimental au chapitre 3. Ce présent chapitre décrit la physique de l'effet Kerr et les notions fondamentales d'optiques permettant une bonne compréhension des mesures et des artefacts observables.

1.1 Introduction

On qualifie de phénomènes Magnéto-Optiques (MO) tout effet induit par un matériau magnétique sur de la lumière. Par exemple, l'effet Zeeman décrit la variation de fréquence de la lumière émise par des atomes placés dans un champ magnétique. Les effets Faraday, Cotton-Mouton et Voigt sont d'autres effets MO que nous allons brièvement décrire.

Le premier effet MO fut décrit par Michael Faraday en 1845 [22]. Il constate qu'en envoyant de la lumière polarisée linéairement au travers d'un échantillon magnétique, aimanté selon la direction de propagation de la lumière, le plan de polarisation de la lumière émergente subit une rotation d'un angle θ_F . Cet angle dépend de l'épaisseur de l'échantillon d et de son aimantation M , $\theta_F = k_V M d$, avec k_V la constante de Verdet. L'inversion du sens de M conduirait à une rotation opposée. A cette rotation de la polarisation s'ajoute une ellipticité croissante avec d . Ces deux observations se décrivent

commodément en traitant la propagation d'ondes polarisées circulairement, droite et gauche. Ces modes constituent des modes propres auxquels sont associés des indices de réfraction complexes et différents.

La rotation Faraday résulte du fait que l'une des polarisations circulaires se propage un peu plus vite que l'autre, ce qui se traduit par la différence des parties réelles de ces indices. La partie imaginaire des indices décrit l'absorption du matériau et engendre une ellipticité car une composante circulaire sera plus atténuée que l'autre. L'effet Faraday n'est autre qu'une *biréfringence magnétique circulaire*.

Les effets Voigt et Cotton-Mouton ont été découverts en 1902 et 1907. Le premier s'applique au cas où la lumière passe à travers un milieu gazeux et le second un milieu liquide. A la différence de l'effet Faraday, ces derniers apparaissent quand le champ magnétique appliqué \mathbf{B} est orthogonal au trajet de la lumière. Tous deux sont assimilables à une *biréfringence magnétique linéaire quadratique*. Linéaire car ils affectent de façon différente les deux états propres de polarisation linéaire de la lumière et quadratique car l'effet est proportionnel à B^2 . Ces effets sont donc insensibles au sens de \mathbf{B} .

L'effet Kerr, connu sous le nom de Magneto-Optical Kerr Effect (MOKE) a été découvert par J. Kerr en 1876 [23, 24], soit environ 30 ans après les découvertes de Faraday. Dans la configuration Kerr, la lumière polarisée linéairement est envoyée sur un échantillon magnétique et réfléchi par ce dernier. On distingue trois géométries fondamentales suivant l'orientation du champ magnétique par rapport à la surface de l'échantillon et au plan de la lumière : polaire, longitudinale et transverse (cf. fig. 1.1).

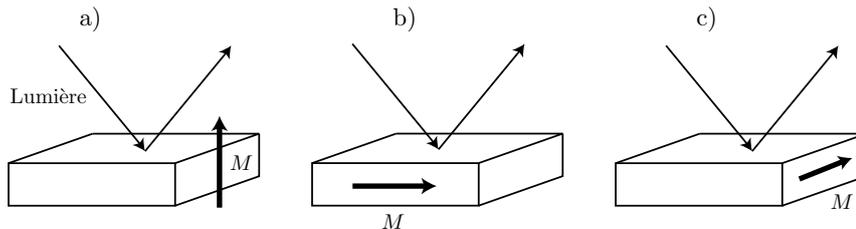


FIG. 1.1: Configurations Kerr typiques : a) configuration polaire, b) configuration longitudinale et c) configuration transverse.

Dans le Kerr polaire, l'aimantation \mathbf{M} est perpendiculaire à la surface. Dans le Kerr longitudinal, l'aimantation est parallèle à la surface et dans le plan de la lumière. Après réflexion, l'axe de la polarisation (déterminée par \mathbf{E}) a tourné d'un angle θ_t et une ellipticité η_t est apparue. Les origines de cet effet sont doubles. D'une part, l'effet Kerr participe en apportant une contribution $(\theta_K(\mathbf{M}, \phi_0); \eta_K(\mathbf{M}, \phi_0))$, dépendante de l'aimantation de l'échantillon et de l'angle d'incidence ϕ_0 de la lumière. D'autre part, pour

une lumière polarisée linéairement, la réflexion sur l'échantillon induit aussi une composante $(\theta_r(\phi_0); \eta_r(\phi_0))$ indépendante de \mathbf{M} . Dans le Kerr transverse, l'aimantation est parallèle à la surface et perpendiculaire au plan de la lumière. Pour une polarisation s , aucun effet n'est observé. Pour une polarisation p , on observe uniquement une variation de l'intensité $\Delta I(\mathbf{M})$ de la lumière réfléchie.

Dans le cas d'études portant sur le magnétisme de couches minces déposées sur un substrat non-magnétique cette technique de mesure par effet Kerr est rebaptisée Surface Magneto-Optical Kerr Effect (SMOKE). Elle fut utilisée pour la première fois en 1985 afin d'étudier des monocouches de fer épitaxiées sur une cristal d'Au(111) [25]. Il est à noter que la longueur de pénétration de la lumière dans un métal est typiquement comprise entre 150 et 200 Angstroms [26]. Ainsi lorsque l'épaisseur des couches magnétiques est très inférieure à la longueur de pénétration de la lumière, la polarisation subit un double effet Faraday (une fois quand la lumière arrive sur l'échantillon et pénètre les couches et une autre fois quand elle en ressort) [27]. Par conséquent, l'amplitude du changement de la polarisation (rotation et ellipticité) est proportionnelle ¹ à l'épaisseur des couches magnétiques. Ainsi, pour des échantillons magnétiques massifs, θ_K est typiquement inférieur au degré alors que pour des films sub-monocouche θ_K est de l'ordre du centième de degré. On comprend bien la difficulté expérimentale qu'il va falloir résoudre, lorsque l'on s'intéressera à sonder le magnétisme des très faibles recouvrements, afin d'être à même de mesurer des variations angulaires inférieures au centième de degré.

1.2 Origines des effets Magneto-Optiques (MO)

Macroscopiquement, les propriétés optiques d'un milieu sont déterminées par un tenseur diélectrique ϵ qui est lui-même déterminé par le mouvement des électrons dans ce milieu. Les effets MO que nous avons cités proviennent du fait que ϵ est antisymétrique. Microscopiquement, les effets MO apparaissent car les électrons du milieu ne modifient pas de la même manière les ondes électromagnétiques polarisées circulairement droite (CD) ou gauche (CG) qui composent le faisceau de lumière incident.

D'un point de vue classique, la lumière qui traverse le milieu va modifier la trajectoire des électrons via la force de Lorentz. Sans champ magnétique extérieur il est évident qu'une onde CD (respectivement CG) va induire sur les électrons un mouvement circulaire à droite (à gauche). Le rayon de ces orbites circulaires sera naturellement le même. Puisque le moment électrique dipolaire est proportionnel au rayon des orbites circulaires, les constantes

¹Pour les couches ultra-minces, c'est toutefois une approximation car la structure de bande dépend de l'épaisseur d .

diélectriques pour les ondes CD et CG seront aussi les mêmes. En conséquence, aucun effet Faraday ne sera présent et l'état de polarisation de la lumière n'aura pas changé après avoir interagité avec le milieu. En appliquant un champ magnétique parallèle au faisceau lumineux, on ajoute une nouvelle force de Lorentz sur les électrons du milieu. Cette force est radiale à l'orbite circulaire des électrons interagissant avec la lumière. En outre, le sens de cette force dépend du sens de rotation des électrons. Elle sera, par exemple, centrifuge pour les électrons tournant à droite et centripète pour ceux tournant à gauche. Ainsi les orbites des premiers seront agrandies et celles des seconds réduites. Il en découle que les constantes diélectriques pour les ondes CD et CG seront différentes. Un effet Faraday sera alors visible sur la lumière émergente. En résumé, c'est la force de Lorentz créée par le champ magnétique qui induit l'effet Faraday.

Une description quantique est toutefois nécessaire afin d'expliquer les effets MO anormalement élevés que l'on rencontre pour des matériaux ferromagnétiques. Les premières hypothèses proposaient l'existence d'un champ effectif, de l'ordre de 10^7 Oe, à l'intérieur du milieu ferromagnétique, capable d'engendrer une importante rotation Faraday. Ce champ effectif est du même ordre de grandeur que le champ de Weiss postulé pour expliquer la physique des ferroaimants. La nature du champ de Weiss demeura inexpiquée jusqu'à ce que Heisenberg développe la théorie qui relie les origines du magnétisme à l'interaction d'échange entre les électrons. Bien que cette interaction d'échange explique le fait que les spins des électrons préfèrent s'aligner comme s'ils étaient plongés dans un champ effectif, elle ne permet pas de décrire les effets MO. En effet, elle n'est pas corrélée au mouvement des électrons qui détermine les propriétés diélectriques du matériau. La difficulté fut levée en 1932 par Hulme [28] qui montra que c'est l'interaction spin-orbite qui couple le spin \vec{S} des électrons à leur mouvement et engendre une grande rotation Faraday dans les ferroaimants. Le couplage spin-orbite $\vec{L} \cdot \vec{S}$ est proportionnel à $(\vec{E} \times \vec{p}) \cdot \vec{S}$ et résulte de l'interaction du spin de l'électron avec le champ magnétique qu'il perçoit. Ce dernier est induit par le mouvement de l'électron (d'impulsion \vec{p}) lui-même gouverné par le champ électrique \vec{E} de la lumière incidente. Cette interaction couple bien le moment magnétique de l'électron avec son mouvement et permet la connexion entre les propriétés magnétiques et optiques des ferroaimants.

1.3 Description théorique des effets MO

1.3.1 Equation de propagation, modes propres

Il est bien connu que la propagation de la lumière dans un milieu anisotrope peut être décrite par les équations de Maxwell couplées à celles de la matière décrivant les propriétés macroscopiques de ce milieu. La propagation

de la lumière dans un ferroaimant est décrite de la même façon que pour un cristal anisotrope. Les propriétés macroscopiques du milieu sont spécifiées par le tenseur de perméabilité diélectrique ϵ donné par :

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \epsilon \cdot \mathbf{E}$$

où \mathbf{D} est le vecteur de déplacement électrique, ϵ_0 la perméabilité diélectrique du vide et \mathbf{E} le champ électrique de la lumière. Par simplicité, considérons un matériau de symétrie cubique avec une aimantation \mathbf{M} orientée selon la direction z .

Au-dessus de la température de curie T_C l'aimantation est nulle et le tenseur ϵ est purement diagonal. Le milieu apparaît donc isotrope pour la lumière et aucun effet MO n'est visible. En-dessous de T_C , M est non nul et change la symétrie du milieu ce qui se traduit par l'apparition de termes hors diagonaux dans le tenseur ϵ . Ce dernier prend la forme :

$$\epsilon = \begin{bmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & 0 \\ -\epsilon_{xy} & \epsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{bmatrix} \quad (1.1)$$

Les termes du tenseur ϵ sont complexes, *i.e.* $\epsilon_{kl} = \epsilon'_{kl} + i\epsilon''_{kl}$ et dépendent de M et de la pulsation ω de la lumière. Ils satisfont à la relation d'Onsager [29, 30] :

$$\epsilon_{kl}(M, \omega) = \epsilon_{lk}(-M, \omega) \quad (1.2)$$

qui signifie que les termes diagonaux sont pairs avec l'aimantation M et les termes hors-diagonaux sont impairs avec M . Ce sont ces derniers qui induisent l'anisotropie optique.

Les équations de Maxwell de notre problème s'écrivent :

$$\begin{aligned} \nabla \times \mathbf{E} &= -\mu_0 \boldsymbol{\mu} \cdot \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \\ \nabla \times \mathbf{H} &= \epsilon_0 \epsilon \cdot \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \end{aligned} \quad (1.3)$$

avec $\boldsymbol{\mu}$ le tenseur de perméabilité magnétique relative du milieu. Cependant, l'aimantation du milieu étant limitée, dans sa réponse au champ magnétique, à des fréquences de l'ordre des fréquences de relaxation paramagnétique, aux fréquences optiques, elle ne peut plus suivre, et la perméabilité magnétique $\boldsymbol{\mu}$ est toujours égale à l'unité $\mathbb{1}$.

Nous considérons une onde électromagnétique plane incidente, de vecteur d'onde \mathbf{k} , de la forme :

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &= \mathbf{E}_0 e^{i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})} \\ \mathbf{H} &= \mathbf{H}_0 e^{i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})} \end{aligned}$$

Les équations 1.3 deviennent alors :

$$\begin{aligned}\mathbf{k} \times \mathbf{E} &= \omega\mu_0\mathbf{H} \\ \mathbf{k} \times \mathbf{H} &= -\omega\epsilon_0\boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{E}\end{aligned}$$

En remplaçant la \mathbf{H} dans la seconde équation à partir de la première on arrive à :

$$\mathbf{k} \times (\mathbf{k} \times \mathbf{E}) = -\omega^2\mu_0\epsilon_0\boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{E}$$

et finalement :

$$\mathbf{k}(\mathbf{k} \cdot \mathbf{E}) - k^2\mathbf{E} + \omega^2\mu_0\epsilon_0\boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{E} = 0 \quad (1.4)$$

Soit $\mathbf{k}_0 = \omega^2\mu_0\epsilon_0\hat{\mathbf{k}}$ le vecteur d'onde de la lumière dans le vide ($|\hat{\mathbf{k}}| = 1$). On peut alors définir l'indice de réfraction complexe $N = n + i\kappa$ du milieu par $\mathbf{k} = N\mathbf{k}_0$. L'éq. 1.4 prend la forme :

$$\begin{bmatrix} N^2 - \epsilon_{xx} & -\epsilon_{xy} & 0 \\ \epsilon_{xy} & N^2 - \epsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & N^2 - \epsilon_{zz} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix} = 0 \quad (1.5)$$

Ici nous ne considérons que le cas où \mathbf{k} est parallèle à \mathbf{M} c'est à dire que la lumière se propage selon z . Ainsi $D_z = \epsilon_{zz}E_z = 0$ soit $E_z = 0$ et l'éq. 1.5 accepte une solution non triviale quand le déterminant de la matrice est nul, c'est-à-dire quand :

$$(N^2 - \epsilon_{xx})^2 + \epsilon_{xy}^2 = 0 \quad (1.6)$$

Les solutions de cette équation sont :

$$N_{\pm}^2 = \epsilon_{xx} \pm i\epsilon_{xy} \quad (1.7)$$

En injectant ces valeurs propres dans l'éq. 1.5 on trouve les vecteurs propres associés :

$$\pm iE_x = E_y \quad (1.8)$$

Ce qui veut dire que E_x et E_y ont le même module mais qu'ils sont déphasés de $\pm\frac{\pi}{2}$. Finalement on trouve que les modes propres de la lumière sont :

$$D_+ = \epsilon_0 N_+^2 (E_x + iE_y) \quad (1.9)$$

$$D_- = \epsilon_0 N_-^2 (E_x - iE_y) \quad (1.10)$$

C'est à dire des ondes polarisées circulairement à gauche (-) et droite (+) avec chacune un indice de réfraction complexe qui lui est propre N_- et N_+ .

1.3.2 Théorie de l'effet Faraday

Une lumière polarisée linéairement, se propageant selon z parallèlement à \mathbf{M} dans un ferromagnétique, peut être décomposée en deux ondes circulaires droite (CD) et gauche (CG). D'après l'éq. 1.7, à chacune de ces ondes est associé un indice de réfraction complexe $N_{\pm} = n_{\pm} + i\kappa_{pm}$. Après avoir traversé une épaisseur l , du fait que $n_+ \neq n_-$ les ondes CD et CG n'ont pas voyagé à la même vitesse et une différence de phase est apparue. Ceci implique que l'axe de polarisation de la lumière émergente a tourné d'un angle θ_F :

$$\theta_F = \frac{l\omega}{2c} \cdot (n_+ - n_-) \quad (1.11)$$

D'autre part, le fait que $\kappa_+ \neq \kappa_-$ signifie que les ondes CD et CG ne sont pas absorbées de la même manière dans le milieu. Ceci crée une ellipticité η_F :

$$\eta_F = -\frac{l\omega}{2c} \cdot (\kappa_+ - \kappa_-) \quad (1.12)$$

En utilisant l'éq. 1.7 et en posant les définitions : $n = \frac{(n_+ + n_-)}{2}$ et $\kappa = \frac{(\kappa_+ + \kappa_-)}{2}$ on peut exprimer θ_F et η_F en fonction des termes du tenseur diélectrique :

$$\theta_F = \frac{l\omega}{2c} \cdot \frac{\kappa\epsilon'_{xy} - n\epsilon''_{xy}}{n^2 + \kappa^2} \quad (1.13)$$

$$\eta_F = -\frac{l\omega}{2c} \cdot \frac{n\epsilon'_{xy} + \kappa\epsilon''_{xy}}{n^2 + \kappa^2} \quad (1.14)$$

1.3.3 Théorie de l'effet Kerr

Considérons le cas simple où la lumière polarisée linéairement arrive en incidence normale sur la surface. Elle se propage selon z parallèlement à \mathbf{M} . Ce cas correspond à la configuration du Kerr polaire en incidence normale. Les coefficients complexes de réflexion r_+ et r_- associés aux ondes CD et CG sont déduits de l'équation de Fresnel [31]. Ainsi :

$$r_+ = \frac{N_+ - 1}{N_+ + 1} \quad \text{et} \quad r_- = \frac{N_- - 1}{N_- + 1} \quad (1.15)$$

Tout comme le développement effectué pour l'effet Faraday, il est possible de déduire une expression pour θ_K et η_K [32]. Cependant l'expression mathématique est beaucoup plus lourde et n'apporte pas de nouveautés pour la compréhension. En outre, dans les expériences effectuées, le faisceau lumineux arrive sur l'échantillon avec un angle ϕ_0 non nul et l'aimantation peut éventuellement avoir une direction quelconque, conduisant alors à d'autres équations.

Dans la pratique, et sans perte de généralité, il devient alors plus avantageux de travailler avec les ondes polarisées linéairement s (polarisation \perp

au plan d'incidence de la lumière) et p (polarisation // au plan d'incidence). Il est alors possible de définir la matrice de réflectivité reliant le champ électrique de la lumière réfléchie à celui de la lumière incidente :

$$\begin{bmatrix} E_p^{ref} \\ E_s^{ref} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} r_{pp} & r_{ps} \\ r_{sp} & r_{ss} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_p^{inc} \\ E_s^{inc} \end{bmatrix} \quad (1.16)$$

Les coefficients r_{ij} correspondent à des rapports d'amplitudes particuliers et sont définis comme :

$$r_{ij} = \left. \frac{E_i^{ref}}{E_j^{inc}} \right|_{E_{j^*}^{inc}=0} \quad \text{avec } (i, j) = s \text{ ou } p \quad (1.17)$$

l'astérisque indiquant de prendre l'autre polarisation (ie : $s^* \doteq p$ et $p^* \doteq s$) Ils indiquent la proportion de la polarisation incidente dans l'état j qui sera transformée en polarisation i après réflexion. Les calculs des termes r_{ij} sont très lourds.

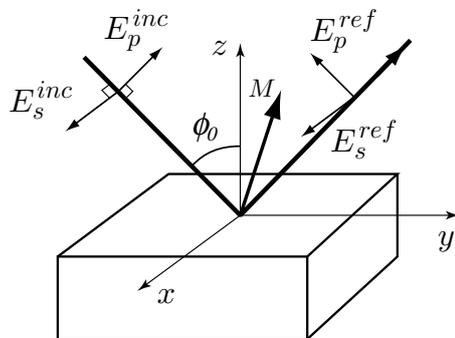


FIG. 1.2: Configuration Kerr dans le cas général. La lumière est polarisée linéairement et arrive sur l'échantillon avec un angle ϕ_0 . L'orientation de l'aimantation \mathbf{M} de l'échantillon est quelconque.

Nous donnons ci-dessous une expression [33, 34] dans le cas général où la lumière est incidente avec un angle ϕ_0 et l'aimantation \mathbf{M} de l'échantillon a une orientation quelconque et est parallèle au vecteur unitaire $\mathbf{m} = (m_x, m_y, m_z)$. L'échantillon magnétique est placé dans le vide et est considéré comme épais (*i.e.* son épaisseur est supérieure à la longueur de pénétration de la lumière). Il est caractérisé par un indice de réfraction complexe N connu.

$$r_{pp} = \frac{N \cos \phi_0 - \gamma}{N \cos \phi_0 + \gamma} + \frac{2im_x Q \cos \phi_0 \sin \phi_0}{N \cos \phi_0 + \gamma} \quad (1.18)$$

$$r_{ss} = \frac{\cos \phi_0 - N\gamma}{\cos \phi_0 + N\gamma} \quad (1.19)$$

$$r_{ps} = -\frac{iQ \cos \phi_0 (m_y \sin \phi_0 + m_z N\gamma)}{\gamma(N \cos \phi_0 + \gamma)(\cos \phi_0 + N\gamma)} \quad (1.20)$$

$$r_{sp} = \frac{iQ \cos \phi_0 (m_y \sin \phi_0 - m_z N\gamma)}{\gamma(N \cos \phi_0 + \gamma)(\cos \phi_0 + N\gamma)} \quad (1.21)$$

Où nous avons défini :

$$\gamma = \sqrt{1 - \frac{\sin^2 \phi_0}{N}}$$

Nous avons fait intervenir la constante magnéto-optique complexe $Q = Q(\mathbf{M})$ qui relie les termes hors diagonaux du tenseur ϵ aux termes diagonaux. Par exemple, dans l'expression 1.1 on a : $\epsilon_{xy} = iQ\epsilon_{xx}$.

Maintenant que nous avons les coefficients de Fresnel r_{ij} , nous allons trouver une relation entre les grandeurs (θ, η) et r_{ij} . Nous allons tout d'abord supposer que l'onde incidente est purement p ou s . Dans cette situation, nous pouvons écrire la relation suivante pour une onde j :

$$\frac{r_{j^*j}}{r_{jj}} = \frac{E_j^{ref}}{E_j^{ref}} \quad (1.22)$$

Ce rapport des amplitudes du champ électrique est aussi la définition du nombre complexe ζ (équ. 1.26) caractérisant de façon univoque l'ellipticité de l'onde réfléchie. D'après l'équ. 1.30, et à condition que les grandeurs Kerr θ et η soient petites, nous pouvons conclure :

$$\begin{aligned} \frac{r_{sp}}{r_{pp}} &\doteq K_p \approx \theta_p + i\eta_p \\ \frac{r_{ps}}{r_{ss}} &\doteq K_s \approx \theta_s + i\eta_s \end{aligned} \quad (1.23)$$

avec θ_j l'angle de rotation de la polarisation et η_j l'ellipticité induite sur l'onde j ($j = s$ ou p). L'équ. 1.23 est une équation très importante car elle relie les propriétés magnétiques de l'échantillon (au travers des coefficients r_{ij}) aux grandeurs mesurables expérimentalement (θ, η) . Comme nous l'avons déjà précisé, ces formules sont calculées pour un échantillon magnétique épais. D'autres dérivations ont été faites pour des films minces [33, 35] ou des multicouches magnétiques [36]. En outre, on peut préciser que les composantes (θ, η) sont linéairement proportionnelles à l'aimantation de l'échantillon.

1.4 Discussion : Effet Kerr pour les configurations simples

Dans ce paragraphe nous allons discuter des équations 1.18-1.21 pour les trois configurations Kerr les plus simples : polaire, longitudinale et transverse.

La configuration polaire correspond à $\mathbf{m} = (0, 0, 1)$. Dans ce cas, les coefficients hors diagonale de la matrice de réflectivité sont égaux, *i.e.* $r_{sp} = r_{ps}$, ce qui signifie que les valeurs de l'effet Kerr ($\theta_K; \eta_K$) ne dépendent pas de la direction de la polarisation incidente. D'autre part, ces coefficients sont maximums pour une incidence normale, *i.e.* pour $\phi_0 = 0$. C'est donc en incidence normale que la configuration polaire est la plus sensible

La configuration longitudinale correspond à $\mathbf{m} = (0, 1, 0)$. Dans ce cas, les coefficients hors diagonale sont égaux mais de signe opposé, *i.e.* $r_{sp} = -r_{ps}$, et s'annulent en incidence normale. Ces coefficients sont maximums pour un angle d'incidence proche de l'angle d'incidence principal, *i.e.* pour $\phi_0 \approx 60^\circ$.

La configuration transverse correspond à $\mathbf{m} = (1, 0, 0)$. Dans ce cas, les coefficients hors diagonale sont nuls, $r_{sp} = r_{ps} = 0$. Le coefficient r_{ss} est indépendant de \mathbf{M} . Seul r_{pp} dépend de \mathbf{M} au travers de la constante magnéto-optique complexe Q . Ainsi, l'effet Kerr se manifeste par une variation ΔI de l'intensité de la lumière polarisée p réfléchie.

La fig. 1.3 représente l'amplitude de l'effet Kerr en fonction de l'angle d'incidence, pour les trois configurations simples. Dans la pratique, on utilise souvent conjointement les configurations polaire et transverse afin de sonder le magnétisme hors et dans le plan de l'échantillon. Pour des angles d'incidence $\phi_0 < 80^\circ$, la configuration polaire est assurément la plus sensible.

Expérimentalement, il existe plusieurs techniques pour implémenter une expérience Kerr. Les montages les plus compliqués permettent de mesurer directement les composantes ($\theta_K; \eta_K$) par des techniques d'ellipsométrie [37]. Ces techniques sont longues et délicates à mettre en oeuvre mais ont l'avantage de permettre des comparaisons quantitatives directes entre les échantillons. D'autres techniques moins sophistiquées permettent toutefois de sonder le magnétisme de l'échantillon, mais donnent des résultats moins quantitatifs. Elles sont, en outre, beaucoup plus faciles à utiliser. C'est d'ailleurs ce genre de techniques que nous avons utilisé dans nos expériences (cf. § 3.2).

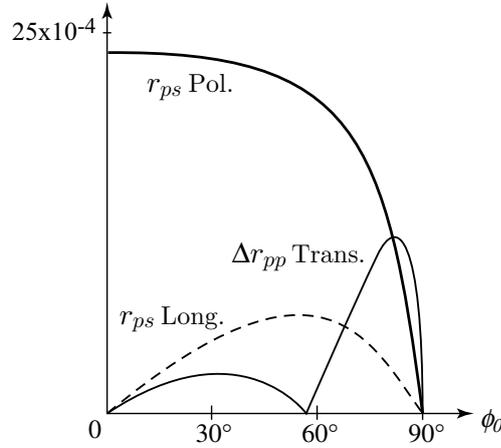


FIG. 1.3: Dépendance angulaire de l'amplitude de l'effet Kerr pour les trois configurations simples : polaire, longitudinale et transverse. Ici, l'échantillon est du Permalloy massif. [Source : R. P. Hunt [38]]

1.5 Notions fondamentales d'optique

Ce chapitre a pour but de rappeler certaines notions d'optique permettant d'utiliser correctement une expérience Kerr et de comprendre l'origine des artefacts souvent observés lors des mesures expérimentales.

1.5.1 Polarisation elliptique [39]

L'état de polarisation le plus général d'une onde électromagnétique est l'état de polarisation elliptique, les polarisations linéaire et circulaire pouvant être vues comme des polarisations elliptiques particulières. Le champ électrique \mathbf{E} d'une onde elliptique est caractérisé par la dépendance temporelle de ses composantes, en notation réelle :

$$\mathbf{E} = \begin{cases} E_x(t) = A_x \cos \omega t \\ E_y(t) = A_y \cos (\omega t - \phi) \end{cases} \quad (1.24)$$

Pour des raisons pratiques, on adopte toutefois la notation complexe, le champ électrique complexe \mathbf{E}^c prenant alors la forme :

$$\mathbf{E}^c = \begin{cases} E_x^c(t) = A_x e^{-i\omega t} \\ E_y^c(t) = A_y e^{i\phi} e^{-i\omega t} \end{cases} \quad (1.25)$$

avec ϕ le déphasage responsable de l'ellipticité et A_x, A_y des amplitudes réelles.

La fig. 1.4 schématise une polarisation elliptique et définit les paramètres

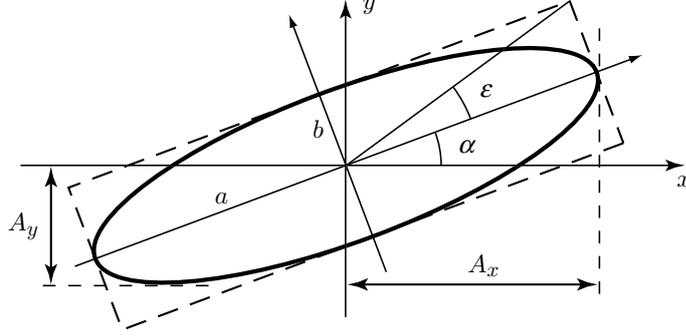


FIG. 1.4: Représentation d'une polarisation elliptique et définition des paramètres géométriques la caractérisant.

de l'ellipse. Définissons le nombre complexe ζ :

$$\zeta = \frac{E_y^c}{E_x^c} = \frac{A_y}{A_x} e^{i\phi} \quad (1.26)$$

Ce nombre contient toutes les informations caractérisant de façon univoque l'ellipse. En effet, ζ peut s'exprimer en fonction des paramètres de l'ellipse (α, ϵ) par :

$$\zeta = \zeta_r + i\zeta_i = \frac{\tan \alpha (1 - \tan^2 \epsilon)}{1 + \tan^2 \alpha \tan^2 \epsilon} + i \frac{\tan \epsilon (1 + \tan^2 \alpha)}{1 + \tan^2 \alpha \tan^2 \epsilon} \quad (1.27)$$

avec α l'angle entre un axe de l'ellipse et \mathbf{e}_x , s'exprimant par :

$$\tan(2\alpha) = \frac{2A_x A_y}{A_x^2 - A_y^2} \cos \phi \quad (1.28)$$

et ϵ l'ellipticité, définie par le rapport des axes de l'ellipse, $\tan \epsilon = a/b$, et qui s'exprime comme :

$$\sin(2\epsilon) = \text{sign}(\phi) \sin\left(\frac{2A_y}{A_x}\right) \sin \phi \quad (1.29)$$

Dans le cas particulier où α et ϵ sont très petits, l'équation 1.27 se simplifie beaucoup, et nous donne :

$$\zeta \approx \alpha + i\epsilon \quad (1.30)$$

C'est cette approximation que l'on utilise dans l'équ. 1.23 pour relier les grandeurs de l'effet Kerr (θ, η) aux coefficients r_{ij} .

1.5.2 Biréfringence

Lorsque le dispositif Kerr est placé en dehors de la chambre UHV, il est nécessaire d'utiliser des hublots afin de permettre au faisceau lumineux d'atteindre l'échantillon. Le fait de serrer les hublots sur les flasques génère des contraintes internes. Or, tout matériau (même initialement isotrope caractérisé par un unique indice de réfraction N) acquiert une anisotropie optique lorsqu'il est soumis à des contraintes mécaniques. On peut définir un ellipsoïde des indices de réfraction $\mathbf{N} = (N_x, N_y, N_z)$, fonction de la contrainte locale, en tout point du matériau. En outre, les axes $\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y$ et \mathbf{e}_z de l'ellipsoïde sont alignés avec ceux de la contrainte. Cet effet porte le nom de biréfringence accidentelle.

Des indices de réfraction différents impliquent une vitesse de propagation différente pour les composantes du vecteur $\mathbf{E} = (E_x, E_y, E_z)$ de la lumière, projeté sur les axes de l'ellipsoïde. Les composantes E_i se retrouvent donc déphasées à la sortie du hublot, induisant une modification de l'état de polarisation incidente, par exemple une rotation de l'axe de polarisation et une ellipticité pour une lumière incidente polarisée linéairement. On remarque toutefois qu'en choisissant une lumière polarisée suivant un des axes de l'ellipsoïde (par exemple $\mathbf{E} = E\mathbf{e}_x$) la biréfringence n'a plus lieu. Malheureusement, cette astuce n'est pas utilisable dans une expérience Kerr car (sauf cas hasardeux) : 1) la lumière doit traverser deux hublots dont les ellipsoïdes sont différents 2) la lumière doit impérativement arriver sur l'échantillon avec une polarisation s ou p (c.f § 1.5.3), ce qui impose définitivement l'axe de polarisation. Ainsi, pour compenser la biréfringence des hublots on peut utiliser une lame 1/4 d'onde taillée pour la longueur d'onde de la lumière utilisée ou mieux encore un compensateur de Soleil-Babinet [27].

1.5.3 Réflexion de la lumière sur une surface

i) Surface diélectrique

Considérons une onde EM polarisée linéairement, incidente avec un angle ϕ_0 sur une surface diélectrique. Les équations de Maxwell permettent de calculer le vecteur $\mathbf{E} = (E_p^{ref}, E_s^{ref})$ de la lumière réfléchie. Ainsi, on peut déterminer le coefficient de réflexion r_i et le déphasage δ_i subi par l'onde i ($i = s$ ou p) après la réflexion. Les figures 1.5(a) et 1.5(b) illustrent la dépendance de r et δ en fonction de ϕ_0 .

A partir de la fig. 1.5(a), on remarque qu'une onde s subit un déphasage de $\delta_s = \pi$ après une réflexion, quelque soit l'angle ϕ_0 . Une onde p ne subit pas de déphasage, pour ϕ_0 inférieur à l'angle de Brewster ϕ_B . Au-dessus de cet angle δ_p est constant et vaut π . On en conclue que pour les angles $\phi_0 < \phi_B$, une onde incidente polarisée linéairement voit son axe de polarisation symétrisé par rapport au plan d'incidence de la lumière après réflexion. Pour les angles $\phi_0 > \phi_B$, l'axe de polarisation ne changera pas.

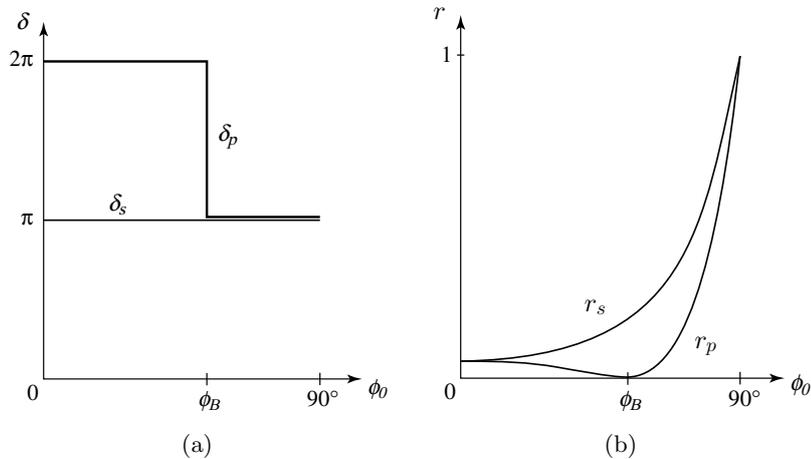


FIG. 1.5: Réflexion sur une surface métallique : (a) Déphasage et (b) réflectivité pour les ondes s et p .

La fig. 1.5(b) nous apprend que les ondes s et p n'ont pas le même coefficient de réflexion (hormis dans les cas particuliers d'incidence normale et rasante). On remarque aussi que $r_p = 0$ lorsque $\phi_0 = \phi_B$. Si l'onde incidente est une superposition des polarisations s et p , le fait que $r_s \neq r_p$ va générer une rotation de l'axe de polarisation pour la lumière réfléchie mais pas d'ellipticité.

En conclusion, nous pouvons dire qu'une surface diélectrique ne crée pas d'ellipticité sur une onde incidente polarisée linéairement. En outre, l'axe de polarisation ne sera pas modifié si l'onde incidente est purement s ou p .

ii) Surface métallique

Considérons maintenant le cas où la surface est métallique. La figure 1.6(a) représente la variation du déphasage δ subi par des ondes incidentes s et p après réflexion. On constate que $\delta_s \neq \delta_p$ et $(\delta_s - \delta_p) \neq \pi$ si $0 < \theta < 90^\circ$. Ce déphasage entre les ondes s et p est la source d'une ellipticité pour l'onde réfléchie.

La fig. 1.6(b), illustrant les réflectivités pour les métaux, ressemble beaucoup à celle présentée pour les isolants (fig. 1.5(b)). La différence majeure tient dans le fait que les coefficients r ne s'annulent pour aucun angle θ et qu'ils sont très proches de l'unité. Ainsi, puisque $r_p \neq r_s$, nous pouvons tirer les mêmes conclusions que celles évoquées pour les isolants.

En conclusion, nous pouvons dire qu'une onde polarisée purement s ou p ne subit pas de modification de son état de polarisation après avoir été réfléchie par un métal. Dans tous les autres cas, une rotation de l'axe de polarisation et une ellipticité apparaîtront.

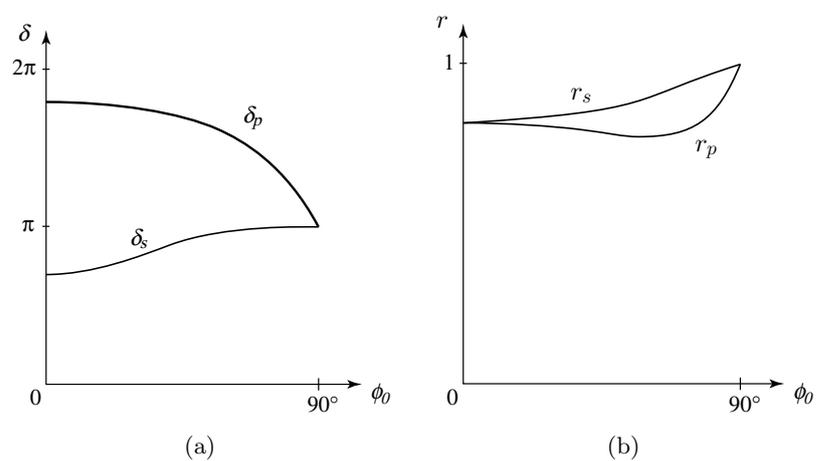


FIG. 1.6: Réflexion sur une surface métallique : (a) Déphasage et (b) réflectivité pour les ondes s et p .

Chapitre 2

Microscope à effet tunnel

Afin de connaître la forme des nanostructures que nous fabriquons, nous utilisons dans nos expériences un microscope à effet tunnel (STM, *Scanning Tunneling Microscope*). Les données recueillies par cette technique sont très précieuses et riches en informations. Elle nous permet de directement visualiser nos nanostructures et nous pouvons ainsi élargir notre domaine de caractérisation des nanostructures en corrélant leurs propriétés magnétiques à leur morphologie.

Le STM a été inventé en 1982 par Binnig et Rohrer à Zurich [40, 41]. Par rapport aux techniques d'investigation de surface utilisées jusque-là, le STM révolutionne la science des surfaces en fournissant des images dans l'espace réel avec une résolution sub-atomique. Comme son nom l'indique, le STM fonctionne en exploitant un effet d'origine quantique : l'effet tunnel.

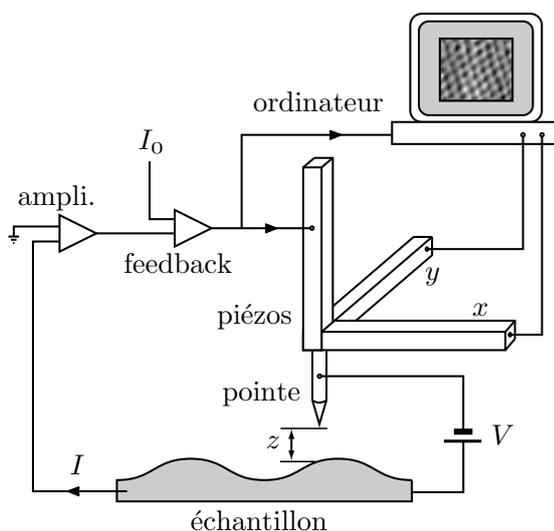


FIG. 2.1: Schéma simplifié illustrant le fonctionnement d'un STM.

2.1 Principes du STM

La fig. 2.1 illustre le principe du fonctionnement d'un STM. Une pointe métallique est amenée très près ($\approx 5\text{-}10 \text{ \AA}$) de la surface de l'échantillon. La position latérale de la pointe, x et y , ainsi que la distance z entre la pointe et la surface sont contrôlées avec une précision de l'ordre du picomètre, en appliquant des tensions adéquates sur des céramiques piézoélectriques. La distance pointe-échantillon est suffisamment petite pour permettre aux électrons de traverser la barrière de potentiel par effet tunnel. A cause de la symétrie de la configuration lorsque $V = 0$, les électrons tunnellent aussi bien dans les deux directions. Le courant total est donc nul. En imposant une différence de potentiel V entre les deux électrodes, on brise la symétrie et un courant $I(V)$ s'instaure. La direction du courant dépend naturellement du signe de V . Comme la probabilité de tunneler décroît exponentiellement avec la hauteur de la barrière, ce sont les électrons avec l'énergie la plus élevée qui ont le plus de chance de la traverser. Ainsi, ce sont les électrons proches du niveau de Fermi de l'électrode négative qui contribuent majoritairement au courant tunnel. Le courant tunnel décroît exponentiellement avec la distance z . Dans le mode à courant constant, la pointe balaie la surface et une boucle de régulation ajuste en permanence la distance z afin de garder le courant I constant, à une valeur I_0 prédéfinie (typiquement $0,5\text{-}5 \text{ nA}$). On enregistre le signal envoyé au piézo- z en fonction de la position latérale. On obtient ainsi une carte topographique de la surface $z(x, y)|_{I, V}$. Plus précisément, on obtient en fait une carte de la densité locale des états électroniques (LDOS). Cette dernière est corrélée à la topographie mais dépend aussi de la nature et de l'environnement chimique des atomes de la surface, de la tension V ainsi que des états électroniques de la pointe.

Une description théorique du processus tunnel dans un STM nécessiterait : la connaissance du potentiel électronique 3D dans la région séparant la pointe de l'échantillon, la description des états électroniques de la pointe et de la surface ainsi que l'extension de la fonction d'onde des électrons dans le vide. Le manque de symétrie du système, le fait de ne rien savoir sur la géométrie de la pointe employée et la difficulté à décrire l'interaction pointe-échantillon rendent la description théorique du STM très difficile. La plupart des théories se basent sur une description perturbative de l'hamiltonien de transfert, formalisme introduit par Bardeen pour décrire un effet tunnel entre deux électrodes planes séparées par un isolant [42]. En négligeant les interactions entre les deux électrodes, le courant tunnel peut être calculé à partir du recouvrement des fonctions d'onde de la pointe (Ψ_μ) avec l'échantillon (Ψ_ν), tous deux considérés comme des systèmes isolés [43] :

$$I(V) = \frac{2\pi e}{\hbar} \sum_{\mu, \nu} f(E_\mu)(1 - f(E_\nu + eV)) |M_{\mu, \nu}|^2 \delta(E_\mu - E_\nu) \quad (2.1)$$

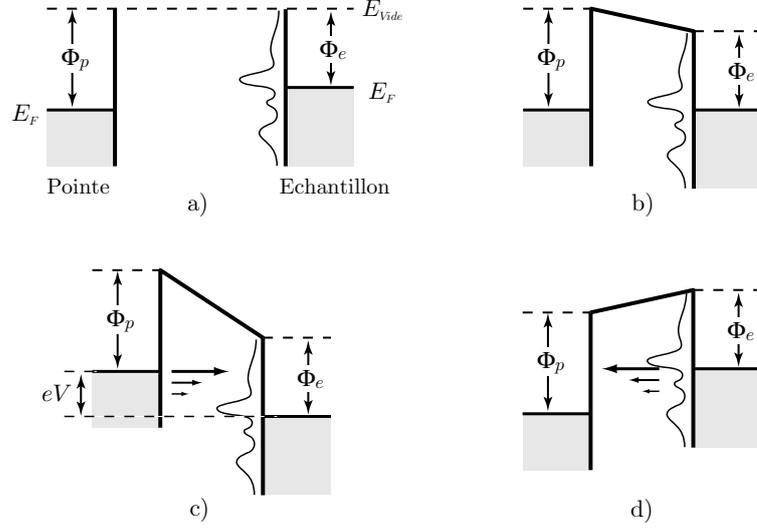


FIG. 2.2: Diagrammes d'énergie de la pointe et de l'échantillon : a) lorsque la distance les séparant est grande ; b) lorsque la distance les séparant est petite et que les niveaux de Fermi se sont équilibrés, mais sans tension de polarisation ; c) en appliquant une tension V , un courant tunnel s'établit ; d) en inversant le signe de V , le sens du courant change.

avec

$$M_{\mu,\nu} = -\frac{\hbar^2}{2m_e} \int_{S_0} d\mathbf{S} \cdot (\Psi_\mu^* \nabla \Psi_\nu - \Psi_\nu \nabla \Psi_\mu^*) \quad (2.2)$$

Dans l'équ. 2.1 la somme s'effectue sur tous les états quantiques μ de la pointe et ν de l'échantillon, tous deux non-perturbés. Aux états μ et ν sont associées les énergies propres E_μ et E_ν . La distribution de Fermi-Dirac f donne l'occupation électronique des états quantiques en fonction de l'énergie et de la température T . La fonction delta assure que l'effet tunnel soit élastique. L'intégrale 2.2 donne les éléments de matrice tunnel $M_{\mu,\nu}$ et doit être évaluée sur une surface S_0 qui s'étend dans la région séparant la pointe de la surface. La difficulté dans cette approche est de pouvoir calculer $M_{\mu,\nu}$. Tersoff et Hamann ont drastiquement simplifié le problème en assimilant le bout de la pointe à une sphère de rayon R placée en \mathbf{r}_0 . Ils utilisent ainsi une onde à symétrie sphérique (onde s) pour décrire la fonction d'onde de la pointe solution de l'équation de Schrödinger [43]. Dans cette approximation, et pour une faible tension V , le courant tunnel prend alors une forme très simple, où il ne dépend que de la LDOS de la surface ρ_S , au niveau de Fermi E_F , évaluée en \mathbf{r}_0 :

$$\begin{aligned} I(V) &\propto eV \rho_S(\mathbf{r}_0, E_F) \\ &\propto \exp(-2kz) \end{aligned} \quad (2.3)$$

où z est la distance pointe-surface et k est reliée à la hauteur moyenne de la

barrière tunnel et définie par :

$$k = \frac{\sqrt{2m_e(\bar{\Phi} - eV/2)}}{\hbar} \quad (2.4)$$

avec $\bar{\Phi} = (\Phi_e + \Phi_p)/2$ la moyenne des travaux de sortie de l'échantillon et de la pointe.

De l'équ. 2.3, on constate bien la décroissance exponentielle du courant tunnel en fonction de z . Dans ce modèle, les images STM à courant constant représenteraient directement les propriétés électronique de l'échantillon exprimées par $\rho_S(\mathbf{r}_0, E_F)$ et non pas celles du système complexe pointe-échantillon.

2.2 Description du STM

Le STM que nous utilisons dans nos expériences est un STM à température variable de type Beetle [44, 45]. Dans notre cas, tout le STM est à température ambiante et l'échantillon est mis à la température désirée. Ce type de microscope est constitué d'une tête métallique supportée par trois piézos périphériques auxquels sont collées des billes de saphir. Ce tripode est posé sur une pièce circulaire en molybdène comportant trois quartiers d'hélice, l'échantillon à étudier étant fixé au centre de cette pièce. Le dénivelé de la rampe est de 0,4 mm. Au centre de la tête est collé le tube piézo qui supporte la pointe. Ce piézo central est monobloc mais composé de 5 secteurs qui lui permettent d'effectuer le balayage en x et en y et la topographie z . En imposant les bons signaux électriques sur les trois piézos, il est possible, grâce au mouvement "slip-stick", de déplacer la tête STM sur les rampes, afin d'approcher la pointe de la surface et ainsi établir une jonction tunnel. Une petite douille métallique est collée au bout du piézo central, elle permettra d'y accrocher une petite bobine pour retourner l'aimantation d'une pointe magnétique. Ceci peut servir dans des mesures de courant tunnel polarisé en spin.

Dans le Beetle standard, les piézos du tripod sont des tubes, d'environ 16 mm de long, divisés en 4 secteurs électriques. Il faut alors 12 fils électriques pour commander les deux mouvements de translation et la rotation de la tête. Dans le STM que nous avons développé, nous avons remplacé chaque piézo-tube par un empilement de trois piézos de cisaillement (shear-piézos). Ces piézos sont des disques de 0,5 mm d'épaisseur qui se cisailent dans une direction particulière lorsqu'une tension est appliquée entre leurs faces. Les avantages de ce concept sont les suivants :

1. la hauteur de l'empilement des shear-piézos est 10 fois inférieure à la longueur des piézos-tube du Beetle standard. Ceci doit rendre la tête STM plus stable mais permet aussi de concevoir une tête extrêmement compacte. Dans notre cas, elle ne fait que 21 mm de diamètre et 35 mm de haut.

2. la constante de rigidité k est plus élevée et permet d'avoir une tête plus lourde tout en conservant des fréquences de résonances élevées. De plus le contact entre les billes et les rampes est meilleur.
3. pour la connexion électrique, seuls 4 fils sont nécessaires. Et moins de fils connectés sur la tête impliquent moins de vibrations mécaniques transmises ainsi qu'un plus faible risque de panne liée à la casse d'un fil ou d'une soudure.

2.2.1 Résonance du microscope

Les vibrations mécaniques ainsi que le mouvement du piézo peuvent exciter des modes de déformation de la tête et perturber l'acquisition des images STM. L'approche générale pour éviter ces problèmes est de construire une tête très rigide afin de déplacer les fréquences propres de résonance vers les hautes fréquences. Les fig 2.3 et 2.4 représentent le spectre fréquentiel de notre tête STM posée sur les rampes dans deux cas : 1) l'excitation sinusoïdale est appliquée sur l'électrode x^- du piézo central et la mesure est faite sur sa contre-électrode x^+ , 2) l'excitation sinusoïdale est appliquée sur l'électrode x^- du piézo central et la mesure est faite sur le shear-piézo "y" situé au milieu de l'empilement des trois shear-piézos.

Le premier cas nous donne les fréquences propres de résonance du piézo central, à savoir 10000 Hz, 12800 Hz et 13500 Hz. Ces fréquences sont bien supérieures à la fréquence de balayage (< 30 Hz) et à la bande passante de la boucle de rétroaction (1 – 3 kHz). La fréquence propre d'un tube de longueur l , de masse m auquel est fixée une masse M est donnée par [46] :

$$\omega^2 \doteq (2\pi f)^2 = \frac{IE}{l^3} \frac{37.07}{3m + 12.35M} \quad (2.5)$$

avec $I = \frac{\pi}{4}(R^4 - r^4)$ le moment d'inertie du tube ($R = 3.17$ mm et $r = 2.67$ mm étant ses rayons extérieur et intérieur, $l = 15.49$ mm, $E = 8.1 \cdot 10^{10}$ N/m², $m = 1.0$ g et $M = 0.35$ g), on trouve $f \simeq 10600$ Hz. Cette fréquence théorique est en accord avec ce que nous avons mesuré.

Le deuxième cas reflète les fréquences propres de toute la tête STM posée sur les rampes. La structure de la courbe est donc beaucoup plus complexe car elle dépend de la géométrie complexe de la tête mais aussi de la qualité du contact des billes sur les rampes (nommé "rattling motion"). On constate que la plus basse fréquence de résonance apparaît vers 3500 Hz. Lorsque nous effectuons cette même mesure avec la tête STM déconnectée des rampes, nous n'observons plus ces pics de résonance. Ceci tend à confirmer qu'ils proviennent essentiellement du contact entre les billes et les rampes ainsi que du système complexe tête-rampes.

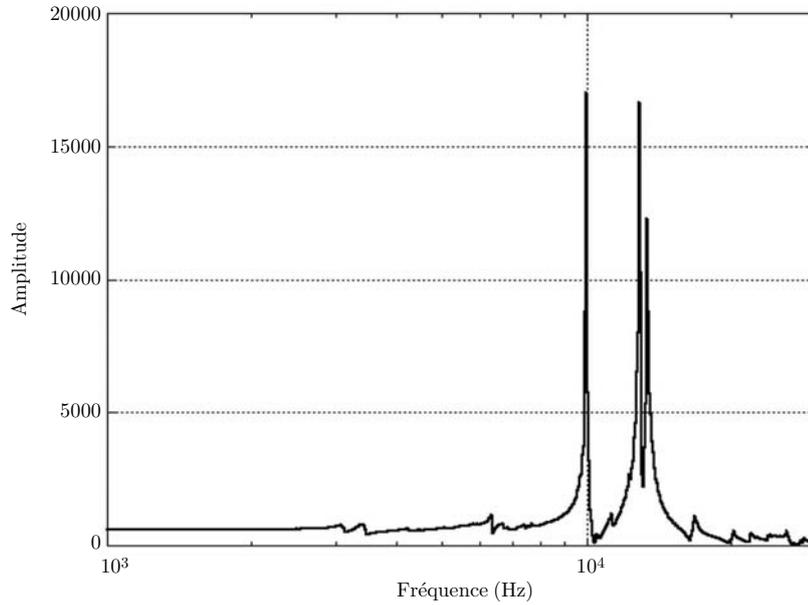


FIG. 2.3: Réponse en fréquence du piézo central dans la direction de balayage x . Une tension sinusoïdale d'excitation est appliquée sur l'électrode x^- , l'amplitude de vibration est mesurée sur la contre-électrode x^+ .

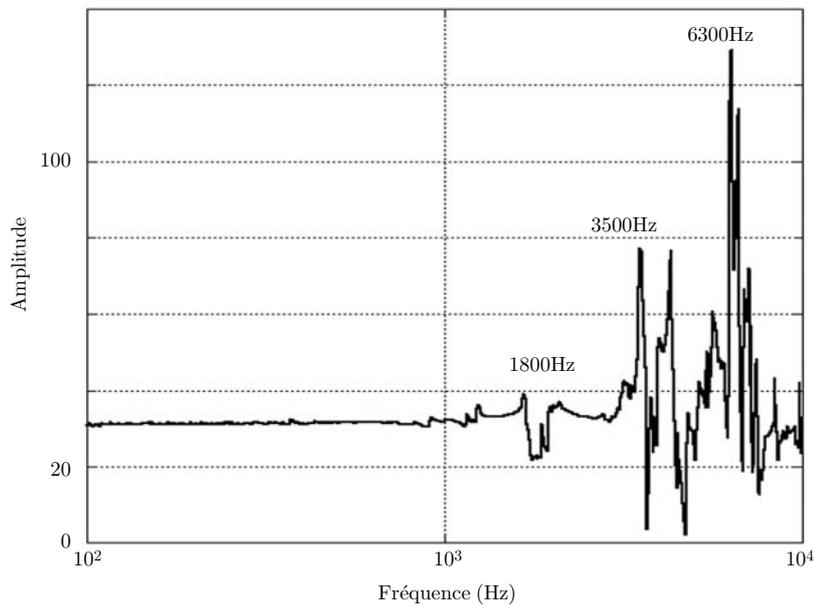


FIG. 2.4: Réponse en fréquence de la tête STM posée sur les rampes. Une tension sinusoïdale d'excitation est appliquée sur l'électrode x^- du piézo central, l'amplitude de vibration est mesurée sur le shear-piézo "y" situé au milieu de l'empilement.

La fig. 2.5 est un spectre de puissance en fréquence du courant tunnel. Pour cela nous plaçons le STM en contact tunnel mais arrêtons le balayage $x - y$ ainsi que la boucle de rétroaction. Le courant tunnel est ici de 10 nA pour une tension de polarisation de 500 mV. La mesure est faite grâce à une carte d'acquisition qui enregistre une tension proportionnelle au courant tunnel. La fréquence d'échantillonnage est de 60 kHz pour une durée de mesure de 5 s. Ces conditions nous permettent de sonder les fréquences comprises entre 1 Hz et 30 kHz. A partir de ces mesures temporelles, nous calculons le spectre de puissance. Sur ce spectre, nous pouvons aisément observer le bruit électrique de 50 Hz ainsi que le bruit mécanique de la turbo vers 850 Hz. Les pics à basse fréquence sont dûs aux vibrations mécaniques dans le laboratoire. Ceux à haute fréquence sont associés aux modes propres de vibration de l'ensemble tête-rampes.

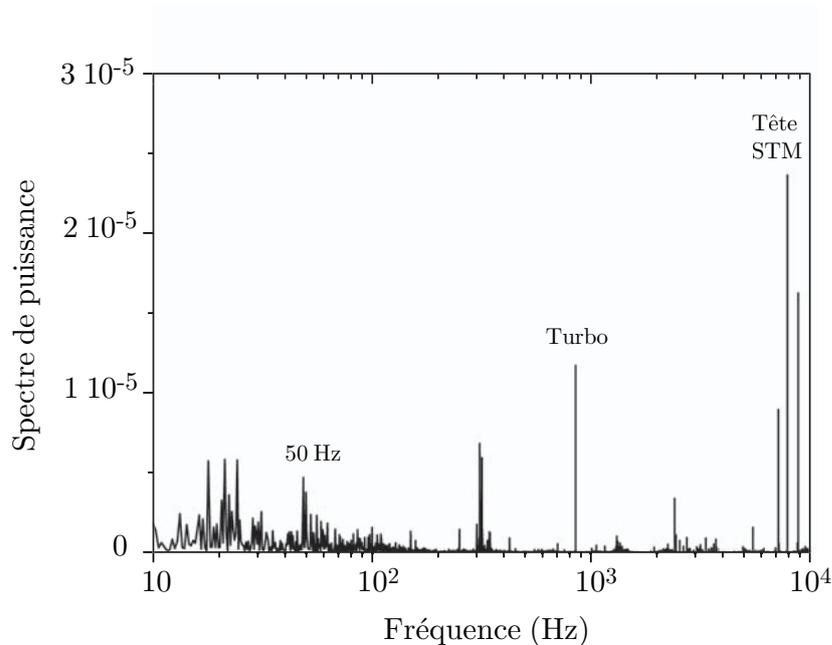


FIG. 2.5: Spectre fréquentiel du courant tunnel du STM.

2.2.2 Isolation des vibrations mécaniques

Pour obtenir des images STM avec une résolution atomiques il est nécessaire que la distance pointe-échantillon ne soit pas modifiée par des vibrations mécaniques. Le porte-échantillon doit donc être isolé mécaniquement. La technique utilisée consiste à poser le porte-échantillon sur un empilement de plaques métalliques de masses différentes séparées par des morceaux de

viton en forme de U. On obtient une série d'oscillateurs amortis ayant chacun une fréquence propre différente. Ce système permet de couper efficacement les fréquences supérieures à 50 Hz. Pour supprimer les fréquences inférieures, il est nécessaire de poser toute l'expérience sur des pieds pneumatiques. La fréquence de coupure de l'ensemble pieds-enceinte est d'environ 1 Hz. D'autre part, tous les fils arrivant sur le haut de la tête sont aussi fixés à des étages d'amortissement de cuivre accrochés à la flasque du STM. Ceci a pour objectif de diminuer les vibrations transmises par les fils électriques.

2.2.3 Description de la construction

Toutes les connexions électriques arrivant sur la tête sont des fils de cuivre de $50\mu\text{m}$ recouverts de kapton. A chaque extrémité du fil, une fiche mâle dorée est sertie, la fiche femelle étant collée sur la tête et isolée électriquement par une céramique. Cette méthode facilite les opérations de montage-démontage du STM.

Le bon blindage du fil du courant tunnel doit être assuré en permanence. Les courants mesurés étant de quelques nA, tout couplage avec les autres signaux (balayages, signal-z, bruit électromagnétique...) rendrait le STM inutilisable. Entre la flasque supportant le STM et le premier connecteur, on utilise un câble souple recouvert d'une tresse métallique. Ensuite, ce sont les pièces mécaniques en cuivre, entourant le fil, qui assurent le blindage jusqu'à la pointe.

Entre chaque étage de shear-piézos, une électrode (découpée au laser dans une plaque de tantale de 0.2 mm) est collée (colle époxy conductrice Epotek 27D recuite à 150°C pour polymériser). Elle relie électriquement les shears-piézos du même étage. Un disque de céramique Al_2O_3 est collé entre la bille de saphir et la première électrode afin d'éviter une dérive thermique, les billes étant refroidies lorsque le STM est posé sur les rampes en molybdène. Le collage de l'empilement des shear-piézos doit respecter certaines règles pour que le mouvement slip-stick fonctionne bien : 1) il ne faut pas déposer trop de colle, 2) il faut serrer mécaniquement le montage lors du recuit. Ces deux règles garantissent un montage rigide de l'empilement des shear-piézos.

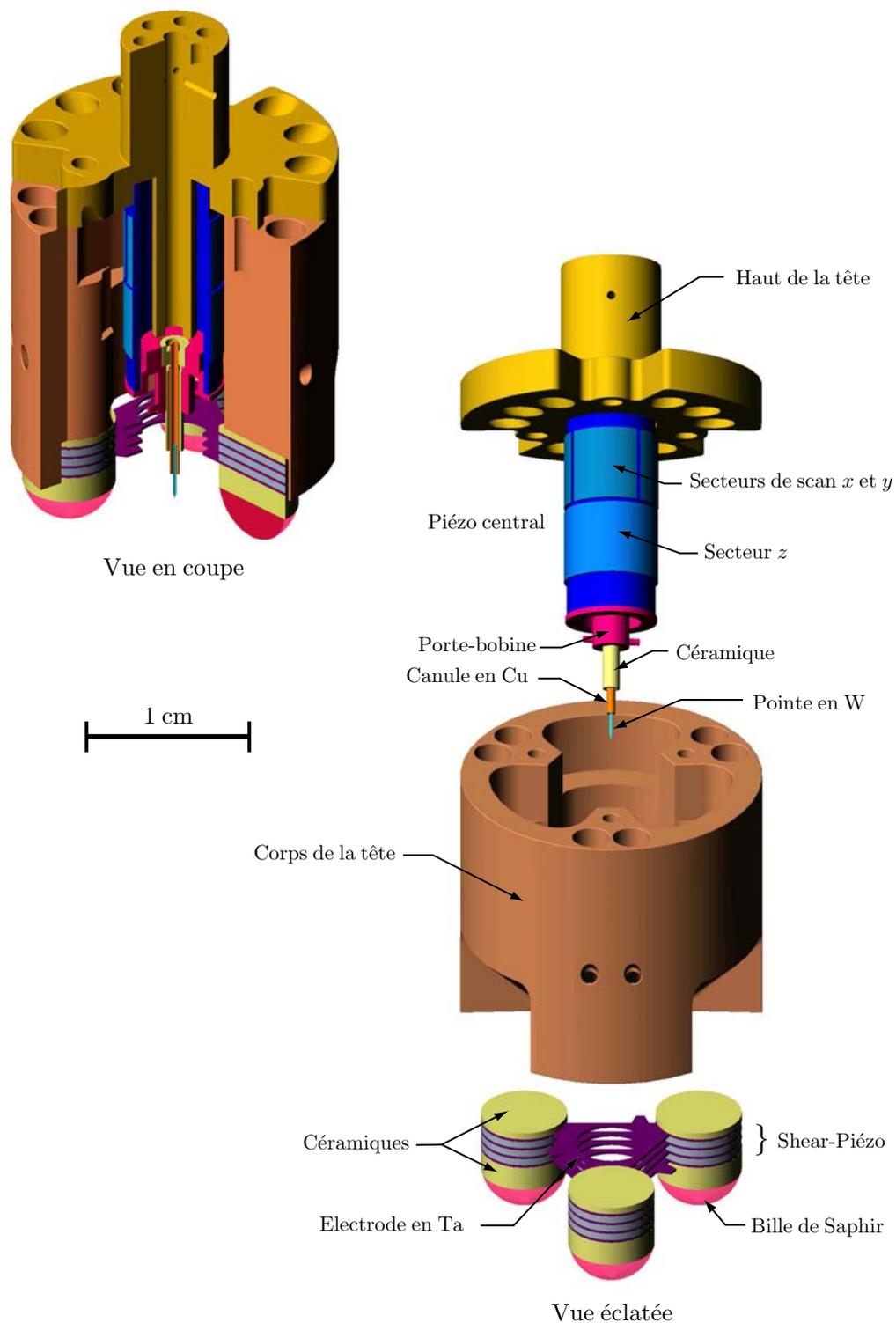


FIG. 2.6: Tête STM : vue en coupe et vue éclatée.

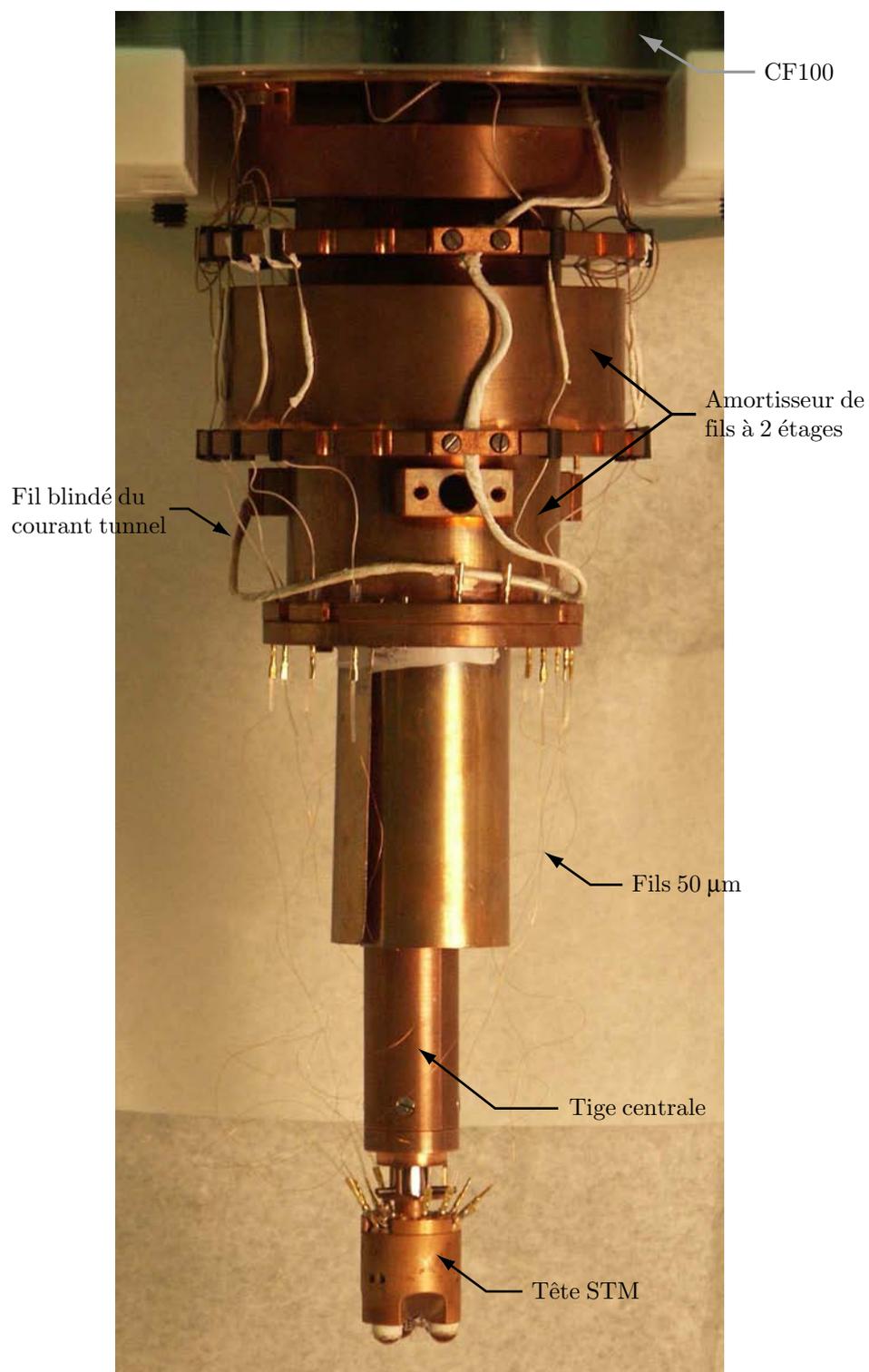


FIG. 2.7: STM monté au complet sur la flasque CF100. Les fils arrivant de l'extérieur sont fixés à deux étages d'amortissement pour réduire les vibrations mécaniques.

2.2.4 Premières mesures STM : Ru(0001)

Les premières images STM ont été réalisées sur un cristal de Ru(0001). La préparation du Ru débute par un bombardement à l'argon à température ambiante, puis à 900K, suivi d'un recuit à 1100K sous une pression de 10^{-7} mbar d'oxygène. Finalement, le cristal est chauffé à 2000K pour former de grandes terrasses. A cause de ce recuit, la préparation du Ru est assez délicate et nécessite un porte-échantillon capable de résister aux hautes températures.

L'échantillon que nous avons utilisé n'avait jamais servi auparavant. Après avoir effectué des cycles de préparation pendant plusieurs jours, nous avons réalisés des images STM pour vérifier la qualité de la surface. Nous avons alors constaté une surstructure hexagonale de période $\sim 31 \text{ \AA}$ et d'amplitude $\sim 1 \text{ \AA}$ dans les images à courant constant (cf. fig. 2.8). Une telle surstructure a déjà été observée sur du Pt(111) et était due à la formation d'une couche de graphite en surface [47]. Dans notre cas, une étude à l'auger, nous révèle que cette surstructure serait due à des atomes de soufre plutôt que de carbone (cf. fig. 2.9). Pour une énergie de 3 keV, les pics importants du Ru se trouvent à 150, 200, 231 et 273 eV, celui du S à 152 eV et celui du C à 272 eV. Par conséquent, les pics du S et C sont superposés à ceux du Ru et il convient d'étudier le rapport des pics pour mettre en évidence la présence ou non de ces adsorbats. C'est ainsi que nous avons pu conclure que l'espèce chimique était bien du S et non du C. Les rapports de pics du Ru propre (mesuré à partir du spectre tabulé [48]) ainsi que les rapports mesurés sur notre spectre sont résumés dans la table ci-dessous.

Rapport de pics	Ru propre (table)	Notre spectre
273/231	2.5	2.3
273/200	5.3	5.3
273/150	15.6	11.7

On constate que les deux premiers rapports de pics sont comparables à ceux du Ru propre. Par contre, on constate que notre pic à 150 eV est environ 25% plus haut que celui obtenu sur du Ru propre. Cette grande différence est la preuve qui nous permet de conclure que c'est bien du soufre qui est présent sur le Ru.

En poursuivant les cycles de préparation, il a été possible de complètement ôter le soufre et ainsi obtenir une surface de Ru(0001) propre (cf. fig. 2.10). Toutefois, la largeur moyenne des marches n'excède pas 400 \AA car, notre porte-échantillon n'étant pas conçu pour supporter des cycles de recuits à 2000K, nous ne pouvions rester longtemps à haute température.

La fig. 2.11 est une image à résolution atomique obtenue avec notre STM sur du Ru propre. Cette image n'a pas subi de traitement informatique pour ôter le bruit. D'après la ligne de coupe, l'amplitude de la corrugation

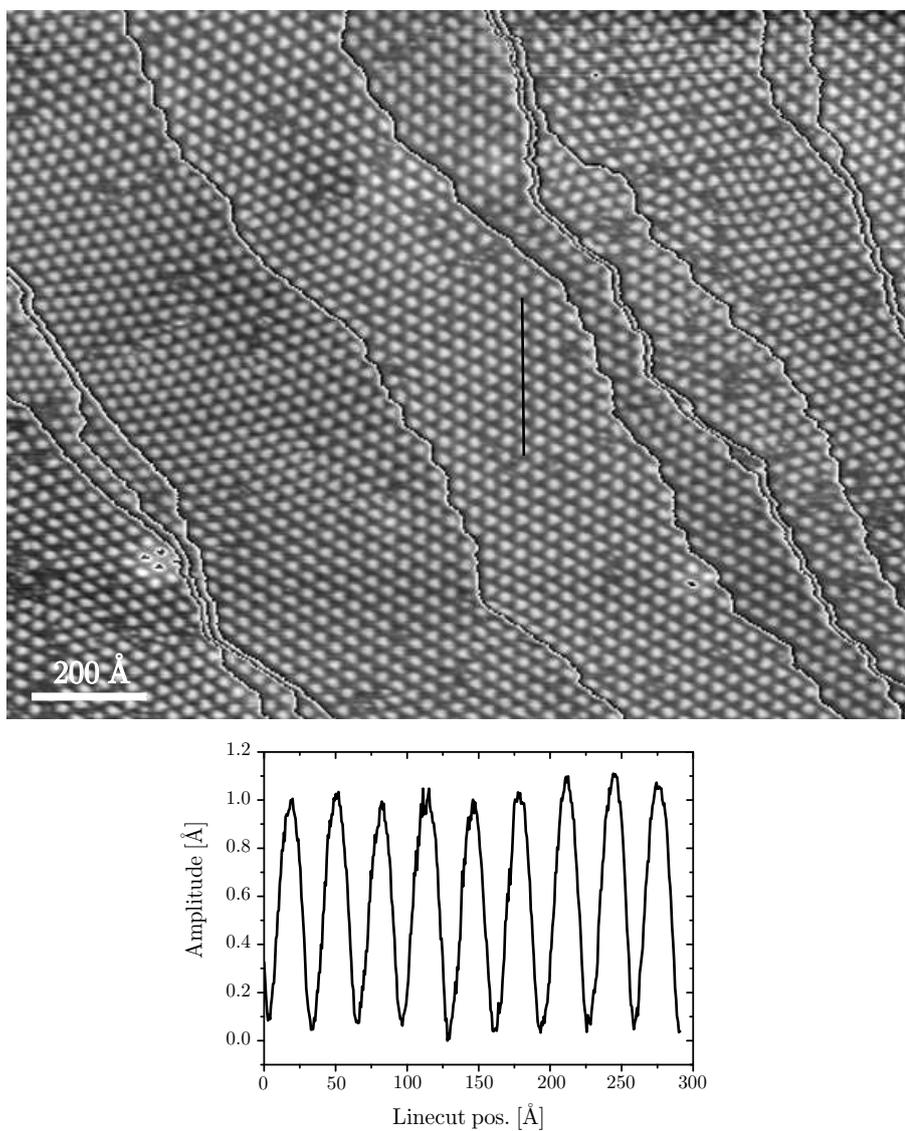


FIG. 2.8: Surstructure hexagonale composée d'atomes de soufre sur la surface Ru(0001). La palette de couleurs est redéfinie sur chaque terrasse pour bien mettre en valeur le réseau.

atomique est de 0.1 \AA et le bruit a une amplitude pic à pic inférieure à $\sim 0.03 \text{ \AA}$.

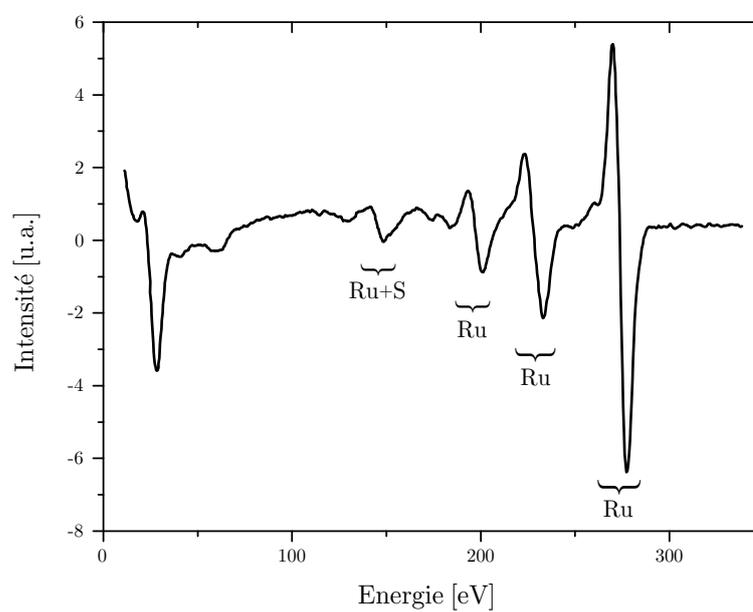


FIG. 2.9: Spectre Auger de notre échantillon de Ru avec un pic à 150 eV anormalement élevé, révélateur de la présence de soufre.

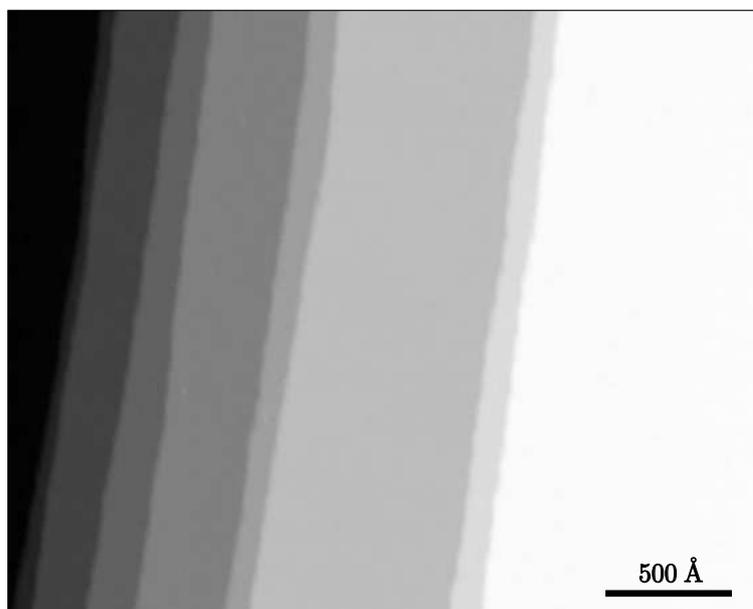


FIG. 2.10: Surface de Ru(0001) obtenue en poursuivant les cycles de préparations. Toutefois, la largeur moyenne des terrasses n'excède pas 400 Å. Pour obtenir des terrasses plus grandes, il faudrait pouvoir chauffer le cristal à 2000K pendant des temps plus longs.

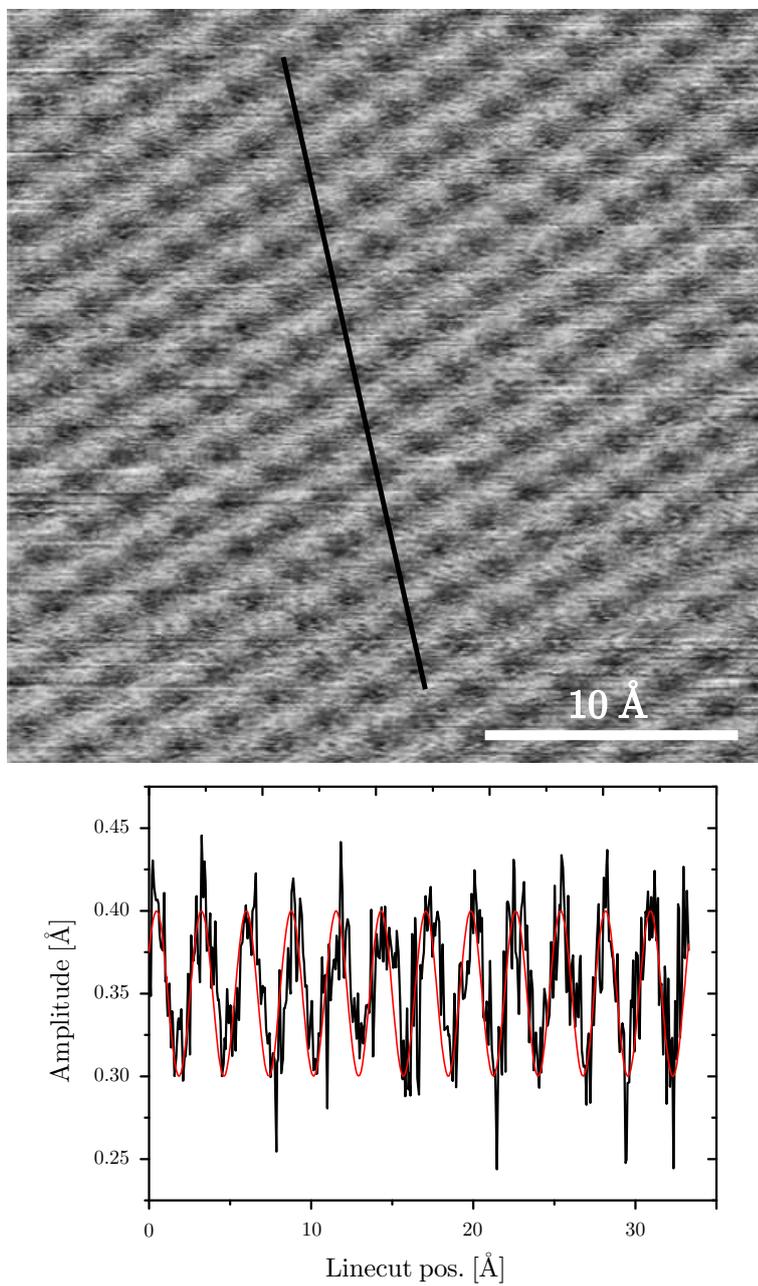


FIG. 2.11: Résolution atomique de la surface Ru (0001) obtenue avec le nouveau STM (l'image n'ayant pas été traitée informatiquement pour ôter le bruit). D'après la ligne de coupe, on constate que l'amplitude du bruit est de ≈ 0.03 Å.

Chapitre 3

Le système expérimental

3.1 Description de l'enceinte

3.1.1 La chambre UHV

La création et l'étude de nos objets nanométriques se font dans une enceinte Ultra Haut Vide (UHV). Dans ces conditions, il est possible de préparer une surface cristalline très propre, de réaliser des évaporations de qualité et de contrôler la croissance de nos nanostructures. En outre, toutes les techniques expérimentales (Kerr, STM, Auger) étant montées sur la même chambre, des mesures *in-situ* sont possibles et nous permettent de caractériser parfaitement le magnétisme et la morphologie.

La pression de base de l'enceinte est de $3 \cdot 10^{-11}$ mbar, l'installation comportant une pompe turbo, une pompe ionique et un sublimateur de titane. A cette pression, la surface de l'échantillon, même recouverte par Co, Ni ou Fe, demeure propre pendant plusieurs heures, ce qui nous laisse assez de temps pour effectuer des mesures Kerr et prendre ensuite des images de la surface.

3.1.2 Le porte-échantillon

L'échantillon est monté de façon permanente sur son porte-échantillon, réalisé en cuivre. Le tout est monté sur un transfert de rotation avec pompage différentiel lui-même monté sur une table x-y. L'échantillon peut ainsi être orienté face à l'Auger, au canon à ions et aux sources d'évaporation. Le porte-échantillon est découplé mécaniquement de son support lorsque l'on fait du STM. Il repose alors sur un empilement de plaques de cuivre séparées par des vitons.

Pour refroidir l'échantillon, le porte-échantillon est relié à la tête du cryostat à flux par une tresse souple constitué de fils de cuivre argenté de $50 \mu\text{m}$. Avec l'hélium liquide, on peut abaisser la température de l'échantillon à $\sim 35\text{K}$. Le porte-échantillon est isolé thermiquement de son support par des

vis inox M1 (l'inox est un très mauvais conducteur de chaleur, particulièrement à basse température).

Pour chauffer l'échantillon, on utilise le filament de tungstène d'une lampe halogène commerciale de 50 W placé à quelques dixièmes de millimètres sous lui. Pour monter à des températures élevées ($>800\text{K}$), une tension de $\sim 400\text{ V}$ est appliquée sur l'échantillon. Ceci permet d'accélérer les électrons thermo-émis par le filament en direction du cristal et de le chauffer par bombardement électronique. Le courant d'émission peut facilement atteindre 100 mA lorsque l'on désire chauffer à plus de 1500K.

La mesure de la température du cristal est un point très important lorsque l'on s'intéresse à la croissance épitaxiale. En effet, toute la dynamique des atomes déposés lors de l'évaporation et les différents mécanismes (diffusion, échange...) dépendent fortement de la température. Afin de parfaitement contrôler la densité et l'aspect de nos nanostructures, il convient de connaître précisément la température de la surface de l'échantillon. Nous utilisons des fils thermocouples Chromel-Alumel (type K) ou Tungstène-Rhénium (type C), de $\varnothing 0.125\text{mm}$, pressés sur le rebord inférieur de l'échantillon (qui est coupé en forme de chapeau). La mesure de la température se fait donc le plus près possible de la surface. La température est mesurée par un contrôleur-régulateur Schlichting [49]. La précision obtenue sur la mesure absolue est de $\sim 1\text{K}$ et la régulation a une précision relative de 0.01K .

Le cristal est isolé électriquement du porte-échantillon par des anneaux de saphir. Ce matériau a la particularité que la chaleur soit véhiculée par les phonons. Ainsi, à basse température, sa conductibilité thermique est supérieure à celle du cuivre ($\kappa = 5000\text{ W/mK}$ à 50K). De surcroît, à haute température ($>500\text{K}$), sa conductibilité thermique est beaucoup plus faible. De ce fait l'échantillon est bien isolé thermiquement lorsqu'on le chauffe pendant les cycles de préparation. Des lamelles de 0.2 mm de tungstène jouent le rôle de ressort et maintiennent le cristal en permanence sous pression et garantissent une bonne fixation de l'échantillon, même après de nombreux cycles de recuit à 1500K . Les rampes du STM sont ensuite vissées sur le porte-échantillon pour tenir les lamelles.

3.1.3 Préparation de l'échantillon

Avant de créer nos nanostructures il est nécessaire de correctement préparer la surface qui les accueillera. Bien que le protocole de préparation dépende de la nature de l'échantillon, les techniques employées sont communes à tous les métaux. Nous utilisons un canon à Argon, avec pompage différentiel, pour nettoyer le monocristal. La tension d'accélération des ions Ar est de 1000 V avec une pression d'Ar de $\sim 3 \cdot 10^{-5}\text{ mbar}$ dans la chambre d'ionisation du canon. Le bombardement ionique peut se faire à température ambiante (lorsque l'on veut éviter que les atomes des dépôts précédents ne plongent dans le cristal) ou en le chauffant afin d'augmenter la mobilité

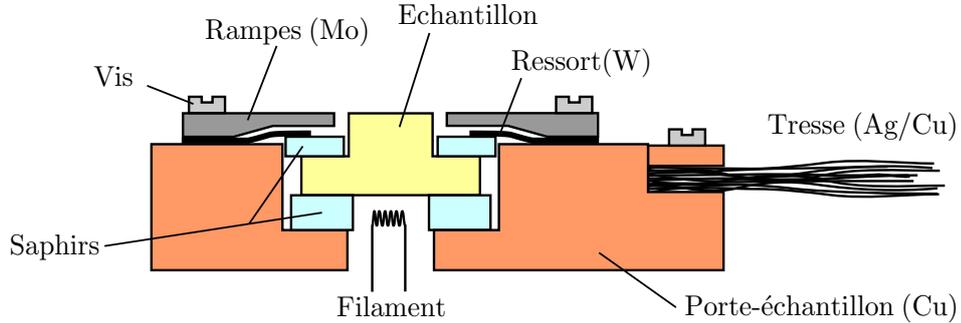


FIG. 3.1: Schéma du porte-échantillon. Il repose sur un support pouvant être tourné et translaté, afin d'orienter l'échantillon face aux divers instruments (STM, sources d'évaporation, Auger, canon à ions)

des atomes de surface et reboucher les trous formés par l'impact des ions. Pour certains échantillons, un recuit sous pression d' O_2 est nécessaire pour éliminer les agrégats de carbone présents à la surface, par oxydation du C en CO volatile. Au final, un recuit à haute température permet de reconstituer la surface du monocristal en activant tous les processus de diffusion. L'élévation de la température est très rapide (~ 50 K/s). Une fois la température désirée atteinte, la descente doit se faire lentement (~ -3 K/s) pour permettre une bonne recristallisation de la surface. Ces cycles de préparation sont répétés 2-3 fois.

L'échantillon est ensuite amené à la température de dépôt. Plusieurs sources nous permettent d'évaporer des métaux ou des molécules : un triple évaporateur Omicron, une cellule de Knudsen et une source à filament "maison". Le flux de ces sources doit être calibré à chaque fois que l'on change son contenu. Nous utilisons l'Auger puis le STM pour effectuer cette calibration.

3.2 Le Kerr (SMOKE)

3.2.1 Principe de la mesure Kerr

Tout le montage expérimental Kerr est basé sur le fait que la rotation θ et l'ellipticité η , induites par l'aimantation \mathbf{M} de l'échantillon sur la polarisation linéaire de la lumière incidente, sont linéaires avec \mathbf{M} . Grâce à cette dépendance linéaire, des boucles d'hystérèse peuvent ainsi être mesurées, si l'on fait varier \mathbf{M} en appliquant un champ magnétique \mathbf{H} , et que l'on mesure la rotation θ ou l'ellipticité η .

La figure 3.2 schématise notre montage expérimental. La lumière entre dans la chambre UHV polarisée linéairement. Après avoir été réfléchi par l'échantillon, elle traverse un deuxième polariseur : l'analyseur. Nous mesurons alors l'intensité lumineuse du faisceau émergent. Ainsi, dans la pratique, nous ne mesurons pas directement les grandeurs Kerr (θ, η) mais la variation

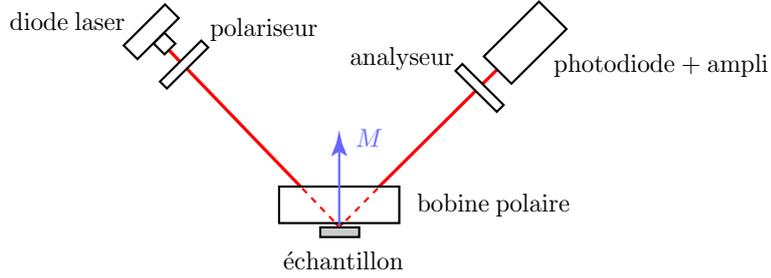


FIG. 3.2: Principe du montage expérimental pour la mesure Kerr.

d'intensité de la lumière réfléchie qui traverse l'analyseur.

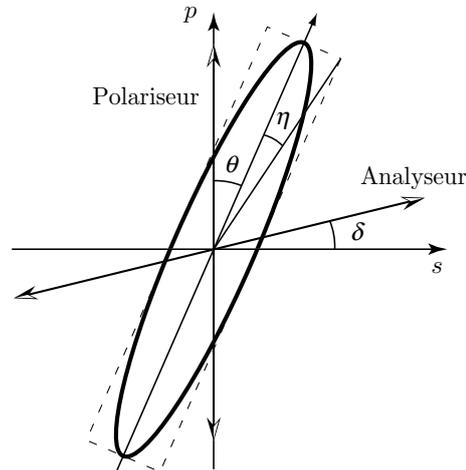


FIG. 3.3: La lumière incidente est polarisée p , l'onde réfléchie est elliptique et tournée d'un angle θ , l'analyseur est décroisé d'un angle δ . Les angles sont fortement exagérés sur l'illustration ($\delta \sim 1^\circ$ et $\theta \sim 0.01^\circ$)

La figure 3.3 permet de visualiser l'onde elliptique réfléchie, le polariseur et l'analyseur, lorsque la lumière incidente est polarisée p . L'axe de l'analyseur étant décroisé d'un petit angle δ de l'extinction ($\delta \sim 1^\circ$), l'intensité de la lumière mesurée est donnée par :

$$I = |E_p^{ref} \sin \delta + E_s^{ref} \cos \delta|^2 \quad (3.1)$$

Dans le cas d'une onde incidente purement p , le rapport $E_s^{ref}/E_p^{ref} \approx \theta + i\eta$

(cf. équ. 1.22 et 1.23). L'intensité I devient :

$$\begin{aligned} I &= |E_p^{ref}|^2 |\sin \delta + \theta \cos \delta + i\eta \cos \delta|^2 \\ &= |E_p^{ref}|^2 (\sin^2 \delta + \theta^2 \cos^2 \delta + 2\theta \sin \delta \cos \delta + \eta^2 \cos^2 \delta) \\ &\approx |E_p^{ref}|^2 (\sin^2 \delta + 2\theta \sin \delta \cos \delta) \quad \text{car } (\theta; \eta) \ll 1 \end{aligned} \quad (3.2)$$

$$\approx |E_p^{ref}|^2 (\delta^2 + 2\theta\delta) \quad (3.3)$$

$$= I_0 \left(1 + \frac{2\theta}{\delta}\right) \quad (3.4)$$

Avec $I_0 = \delta^2 |E_p^{ref}|^2$ l'intensité lorsqu'il n'y a pas de rotation Kerr (*i.e.* quand $\mathbf{M} = 0$).

De l'équ. 3.4, nous voyons que l'intensité mesurée est linéaire avec θ et donc, a fortiori, avec \mathbf{M} . Dans cette formule, l'ellipticité n'apparaît plus, car elle n'est présente que dans la partie complexe. Or, lors du calcul du carré du module, nous négligeons tous les termes quadratiques θ^2 et η^2 . Seul subsiste le terme croisé ($\delta\theta$) linéaire en θ . Voilà une première explication du rôle que joue le décroisement d'un angle δ de l'analyseur : obtenir une dépendance linéaire entre I et θ . D'autre part, la variation de l'intensité ΔI est proportionnelle à $\theta \sin \delta \cos \delta$. Ainsi, c'est pour un décroisement $\delta = 45^\circ$ que ΔI est maximal. Cependant, plus δ est grand et plus le signal de base I_0 l'est aussi. Par conséquent, pour obtenir un bon rapport signal/bruit, il convient de ne pas trop décroiser. Pour nos mesures, nous décroisons d'un angle tel que l'intensité I soit 3 à 5 fois l'intensité minimale (*i.e.* quand $\delta = 0$), ce qui correspond à $\delta \sim 0.5 - 3^\circ$.

3.2.2 Les bobines magnétiques

Comme nous l'avons vu au chapitre 1, il existe trois configurations Kerr simples. Notre expérience nous permet de choisir parmi deux de ces configurations : polaire (sensible à une aimantation hors-plan) et transverse (sensible à une aimantation dans le plan).

Le champ magnétique pour la configuration polaire est induit par une bobine placée dans l'enceinte UHV. Elle est constituée d'un fil de cuivre de \emptyset 1 mm bobiné sur une pièce en aluminium de forme conique (pour laisser passer le faisceau lumineux) refroidie à l'eau. Pour être positionnée au-dessus de l'échantillon, la bobine est montée sur un translateur linéaire. La figure 3.4a représente le champ magnétique (mesurée avec une sonde Hall) en fonction du courant. La dépendance est bien évidemment linéaire et au courant maximal ($I_{\max} = 12$ A) le champ magnétique vaut 440 G.

Le champ magnétique pour la configuration transverse est créé par un entrefer d'Armco (fer doux), les bobines étant placées à l'extérieur de l'enceinte UHV. Cet électroaimant est monté sur un translateur linéaire pour amener l'entrefer au niveau de l'échantillon. La figure 3.4b représente le

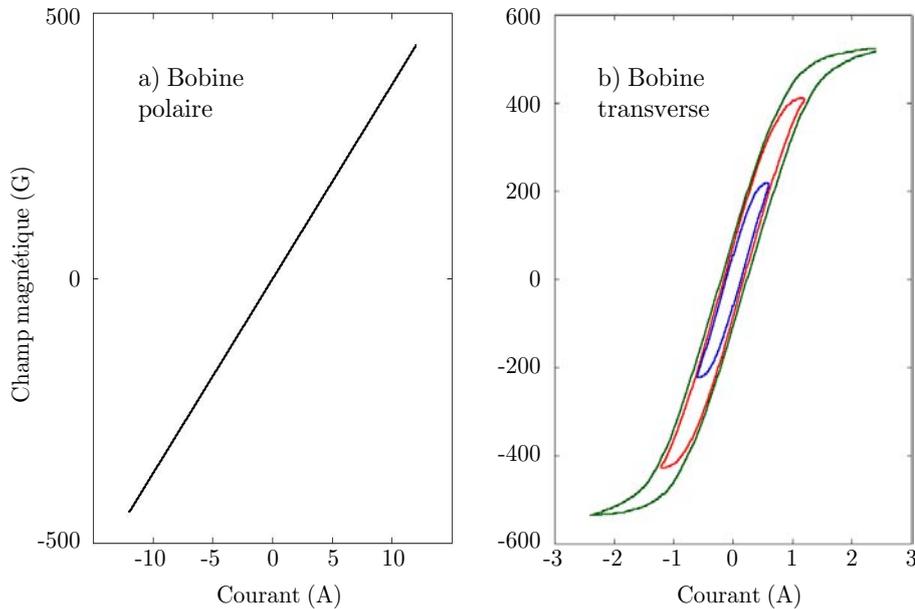


FIG. 3.4: Champ magnétique créé par la bobine : a) polaire et b) transverse.

champ magnétique en fonction du courant, mesuré pour trois amplitudes différentes de courant avec une vitesse de balayage lente (0.2 A/s). A cause de la présence de fer doux, ces courbes ne sont plus linéaires et leur forme dépend de l'amplitude du courant (ainsi que de la vitesse de balayage). Le champ magnétique maximal vaut 660 G.

3.2.3 La source de lumière

Comme source lumineuse, nous utilisons une diode laser (Sharp RLD-78MAT1, $\lambda = 785$ nm, $P = 5$ mW). Une lentille, ajustée à la sortie de la diode, crée un faisceau collimaté de $\varnothing 2$ mm sur tout le trajet optique. La polarisation de la lumière laser est naturellement elliptique avec un rapport 1 : 800. La diode laser est connectée à un élément Peltier afin de réguler sa température à 0.1K près. La source de courant stabilisé est une électronique Seastar LD-2310 pour diode laser. Le bloc laser est monté sur une table (θ, ϕ) pour ajuster la direction du faisceau. Avant de rentrer dans la chambre au travers d'un hublot, la lumière traverse un polariseur Glan-Thompson (coefficient d'extinction $> 10^5$, angle d'acceptance 16°).

3.2.4 La détection de lumière

Après être sorti de la chambre, le faisceau traverse un analyseur (polariseur Glan-Thompson), puis une lentille fait converger le faisceau sur une photodiode de 1 cm^2 (Hamamatsu S2387-1010R). Le courant de la pho-

todiode est converti en tension et amplifié avec un gain de $10^3 - 10^8$. On soustrait ensuite le signal continu, on amplifie d'un facteur 500 puis on filtre par un filtre électronique d'ordre quatre avec une fréquence de coupure de 10 Hz. Afin d'éliminer les lumières parasites présentes dans le laboratoire et dans l'enceinte, un filtre IR, passe-bande centré sur la longueur d'onde du laser, est fixé devant la photodiode.

Une carte d'acquisition National Instrument (PCI-MIO-16XE-10, 16 bits, 100 KHz multiplexé) pilotée depuis un PC par Labview, assure la prise des mesures Kerr : la source de courant génère un courant proportionnel à la tension qu'elle reçoit du convertisseur DA et le signal de la photodiode est mesuré par un convertisseur AD de la carte.

3.2.5 Procédure de mesure

La sensibilité du SMOKE dépend fortement du coefficient d'extinction χ de l'ensemble polariseur-analyseur. Le coefficient d'extinction est défini comme le rapport entre l'intensité lumineuse maximale et minimale, perçue par la photodiode, lorsque l'on tourne l'axe de l'analyseur. Ce coefficient est un indicateur de l'ellipticité de la lumière : plus il est élevé, moins la lumière est elliptique et plus la sensibilité magnétique du dispositif est grande. Comme nous l'avons expliqué au chap. 1, il est nécessaire que la polarisation incidente sur l'échantillon soit s ou p afin que la réflexion ne détruise pas l'état de polarisation linéaire.

Il convient donc, dans la première phase, d'établir l'axe de polarisation (disons p) à l'aide du premier polariseur. Pour ce faire, on oriente grossièrement l'axe du polariseur dans la direction voulue et on cherche avec l'analyseur le minimum (I_{\min}) et le maximum (I_{\max}) d'intensité. On en déduit $\chi_1 = I_{\max}/I_{\min}$. On tourne légèrement l'axe du polariseur, on cherche à nouveau I_{\min} et I_{\max} pour calculer χ_2 . Si $\chi_2 > \chi_1$, on tourne l'axe du polariseur dans l'autre sens, sinon on continue à tourner dans le même sens d'un petit angle. On répète cette procédure jusqu'à trouver le maximum du coefficient d'extinction. Dans la pratique, sans utiliser de lame quart d'onde, nous mesurons $\chi \sim 20000 - 30000$.

Ensuite, nous décroisons l'analyseur d'un angle δ jusqu'à obtenir entre 3 et 5 fois l'intensité minimale.

Chapitre 4

Fabriquer des nanostructures

Les recherches consacrées à l'étude des propriétés physiques des nanostructures n'existent que depuis une vingtaine d'année. Pour ce faire, il a tout d'abord été nécessaire de concevoir des méthodes pour les fabriquer. Grâce à leur fort potentiel pour les applications technologiques nécessitant une importante miniaturisation, de nombreux procédés de fabrication ont été inventés et n'ont cessé d'être améliorés. L'une des plus vieilles techniques, mais des plus utilisées aujourd'hui, est la lithographie. Cette technique présente l'avantage de pouvoir parfaitement contrôler la taille, la forme et l'emplacement des nanostructures. Que ce soit de la lithographie par faisceau d'électrons, rayons-X ou holographie, elle repose sur une série de procédés (incluant l'application d'une résine, l'exposition et le développement) préliminaires à l'élaboration des nanostructures proprement dites. La résolution maximale obtenue est de l'ordre de 20-100 nm [50, 51], en fonction du processus employé et de la surface de la zone contenant les nanostructures. En employant des résines inorganiques, il est même possible d'atteindre une résolution de 5 nm [52]. La lithographie nécessite toutefois des moyens techniques et financiers très importants qui la rendent difficilement exploitable dans le cadre de la recherche fondamentale en laboratoire. De plus, sa résolution maximale est encore trop faible et ne permet donc pas de créer des nanostructures extrêmement petites, ne contenant que quelques dizaines d'atomes. Dans l'idée d'augmenter la résolution des techniques de fabrication des nanostructures, des groupes de recherches ont utilisé la pointe d'un microscope à effet tunnel (STM) ou à force atomique (AFM). Par exemple, il est possible de transférer de façon contrôlée de la matière à partir de celle-ci [53], de former un agrégat stable à partir de précurseurs organométalliques [54, 55] ou encore d'anodiser localement le substrat [56] en appliquant des pulses de tension. La résolution peut alors atteindre 10 nm. Avec la pointe du STM, il est même possible de déplacer des atomes un à un, pour venir les placer à un endroit précis [57, 58]. Bien évidemment, ces techniques de manipulation à l'échelle atomique s'avèrent être extrêmement lentes et

ne peuvent produire un grand nombre de nanostructures car le processus de fabrication se fait en série. Elles sont donc exclusivement réservées à des études très spécifiques. De nombreuses autres techniques, ayant pour objectif de produire des nano-objets, ont été inventées et permettent de répondre aux exigences de leurs utilisateurs [59].

Pour la fabrication de nos nanostructures, nous utilisons la technique de croissance épitaxiale par jet moléculaire (MBE). Cette technique permet de créer rapidement un grand nombre de nanostructures en parallèle sur une large surface (de l'ordre du cm^2). Cette technique se déroule dans un environnement UHV, nécessaire à la formation et à l'étude des propriétés des nanostructures. Bien que ne permettant pas de définir exactement la forme ou l'emplacement des nanostructures, elle présente l'avantage de pouvoir former des agrégats contenant au minimum 1 atome. Grâce aux recherches menées dans la physique des surfaces, les processus de croissance par MBE sont mieux compris et ont permis de diversifier la forme et la nature des objets créés et même de trouver des systèmes pour lesquels les nanostructures s'auto-organisent selon un réseau bien défini.

4.1 Introduction à la théorie de la nucléation

Dans la croissance épitaxiale par jet moléculaire (MBE), des atomes sont évaporés, à partir d'une source, avec un flux F , vers la surface cristalline [60]. Une fois l'atome déposé sur la surface, plusieurs processus de diffusion peuvent survenir. L'atome peut rester collé là où il a atterri, s'évaporer, diffuser sur la surface, se combiner avec un autre atome pour former un dimère ou encore s'insérer dans la surface (cf. fig. 4.1). Les taux auxquels ces processus se produisent dépendent de la nature des atomes déposés et de ceux de la surface ainsi que de la température T . En effet, tous ces processus peuvent être caractérisés par une énergie d'activation E et une fréquence d'essai ν_0 . Par exemple, dans le cas de la diffusion sur une terrasse cristalline, la fréquence de saut d'un site à l'autre peut s'exprimer par :

$$\nu = \nu_0 \exp\left(\frac{-E_m}{k_B T}\right) \quad (4.1)$$

avec k_B la constante de Boltzmann et E_m la barrière de migration. La fréquence d'essai ν_0 , peut être vue comme la fréquence à laquelle l'atome oscille au fond du puits de potentiel, et donc au nombre de fois qu'il tente de dépasser la barrière d'énergie E_m par seconde. En général, on prend pour ν_0 une valeur comprise entre 10^{11} et 10^{13} Hz et on suppose celle-ci indépendante de la température. Cette image de saut d'un site à l'autre n'est cependant valable que dans la limite $k_B T \ll E_m$, c'est-à-dire quand le temps passé par l'atome dans le puits de potentiel est beaucoup plus grand que le temps passé dans l'état intermédiaire lors de la transition. Entre deux sauts, l'atome perd

la mémoire de son précédent site et évolue, par conséquent, selon une marche aléatoire. Bien qu'aléatoire, ce mode de diffusion peut être caractérisé par la distance quadratique moyenne, $\langle \Delta x^2 \rangle$, parcourue dans le temps t , et donnée par la relation d'Einstein :

$$\langle \Delta x^2 \rangle = 2dl^2Dt \quad (4.2)$$

avec l la distance entre deux sites (longueur du saut), d la dimensionnalité du mouvement et D le coefficient de diffusion, exprimé en sites/s, donné par [61–63] :

$$D = \frac{n\nu_0}{2d} \exp\left(\frac{-E_m}{k_B T}\right) \quad (4.3)$$

avec n le nombre de directions de sauts autorisées depuis le site où il se trouve. Par exemple, $n = 3$ et $d = 2$ sur fcc(111), $n = 4$ et $d = 2$ sur fcc(100) et $n = 2$ et $d = 1$ sur fcc(110) [62, 63]. Ce paramètre D est très important car, bien que décrivant le taux de diffusion des monomères, il détermine aussi la densité d'îlots créés.

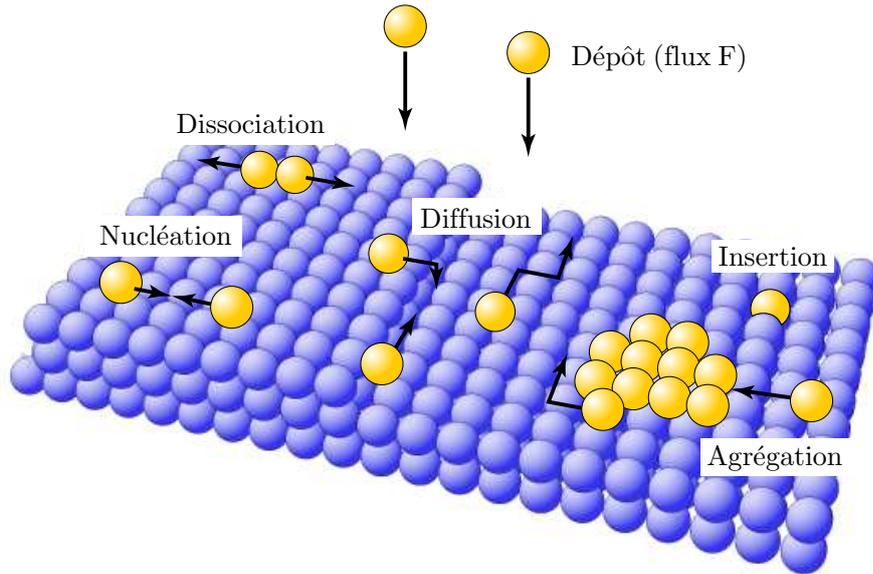


FIG. 4.1: Processus atomiques importants lors de la croissance épitaxiale par jet moléculaire (MBE).

La croissance des îlots formés par MBE peut être divisée en quatre étapes consécutives : la nucléation pure, la nucléation avec croissance, la croissance d'îlot pure et finalement la coalescence.

Au cours du dépôt, les atomes arrivent avec un flux F (exprimé en ML/s) sur la surface et diffusent avec un taux D jusqu'à rencontrer un autre atome (lui aussi diffusant) et ainsi former un dimère. Supposons, pour simplifier,

que le dimère reste stable (*i.e.* il ne se dissocie pas avant de capturer un troisième atome) et immobile. Au cours du temps, le nombre de dimères va grandir quasi-linéairement jusqu'à ce que leur concentration n_2 devienne comparable à celle des monomères n_1 . A partir de là, la probabilité pour un monomère de former un nouveau dimère est comparable à celle de rejoindre un dimère existant. La croissance des îlots apparaît donc comme un processus concurrent à la formation de nouveaux îlots. Après que la densité d'îlots stables n_x ($n_x = \sum_{s>1} n_s$, n_s étant la densité d'îlots de taille s stables) a suffisamment augmenté, tout atome déposé ne participera qu'à la croissance d'îlots. Nous avons alors atteint la densité de saturation, n_x^{sat} . A ce moment, le libre parcours moyen des atomes diffusants est égal à la distance moyenne entre îlots et les monomères ont beaucoup plus de chance de s'attacher à un îlot plutôt que de se rencontrer pour en former un nouveau. En approchant d'un recouvrement d'une demi-monocouche, des îlots vont commencer à coalescer, faisant, par conséquent, chuter la densité d'îlots totale n_x . La figure 4.2 illustre la variation de la densité d'îlots en fonction du recouvrement.

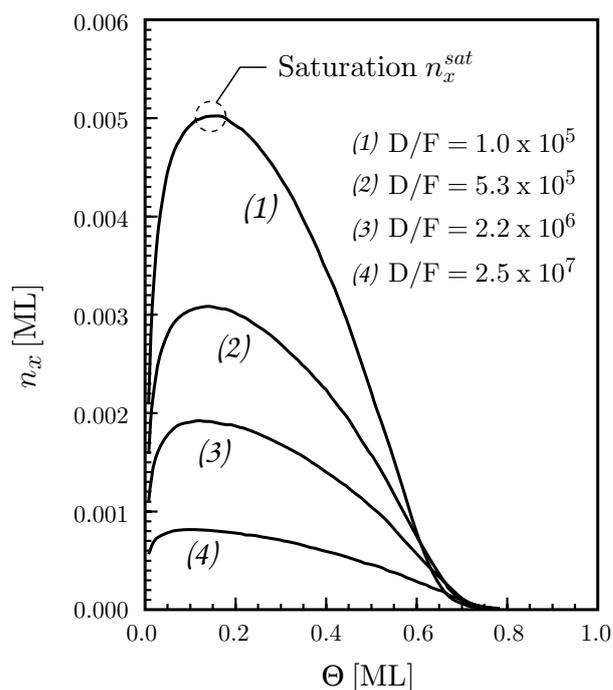


FIG. 4.2: Courbe typique de densité d'îlots compacts stables, n_x , en fonction du recouvrement, pour divers rapports D/F . [Source : H. Brune *et al.* [64]].

La théorie du champ moyen pour la nucléation et la croissance repose sur la résolution des équations de taux décrivant l'évolution de la densité d'îlots. Un des résultats de cette théorie, valable pour des îlots compacts et

approuvée par l'expérience ainsi que par des simulations Monte-Carlo cinétique [64, 65], est la loi d'échelle reliant la densité d'îlots stables à saturation, n_x^{sat} , au flux de dépôt F et au coefficient de diffusion D :

$$n_x^{\text{sat}} \propto \left(\frac{D}{F}\right)^{-\chi} \quad (4.4)$$

avec $\chi = \frac{i}{i+2}$ l'exposant d'échelle, i correspondant à la taille critique de l'agrégat. Cette taille est définie comme étant celle à partir de laquelle un agrégat devient stable si on lui ajoute un atome. Un îlot est stable si sa probabilité de croître est supérieure à celle de régresser au cours du dépôt. Par exemple, pour un système où les dimères sont stables, $i = 1$ et $\chi = 1/3$. On constate que l'on peut aisément contrôler la densité d'îlots à saturation (cf. fig. 4.2) en modifiant, au choix, le flux de dépôt ou la température de l'échantillon (car D dépend de T suivant l'équ. 4.3). En pratique, il est souvent plus facile de modifier la température de dépôt. La figure 4.3 illustre la densité d'îlots à saturation en fonction de la température de dépôt $T^{\text{dép}}$, dans le cas où les dimères sont stables (*i.e.* $i = 1$) pour le système Ag/Pt(111).

A partir de la densité n_x^{sat} mesurée avec le STM et des formules 4.3 et 4.4, il est possible de tracer le $\ln(D)$ en fonction de $1/T$ (plot d'Arrhenius) et d'extraire ainsi les paramètres E_m et ν_0 .

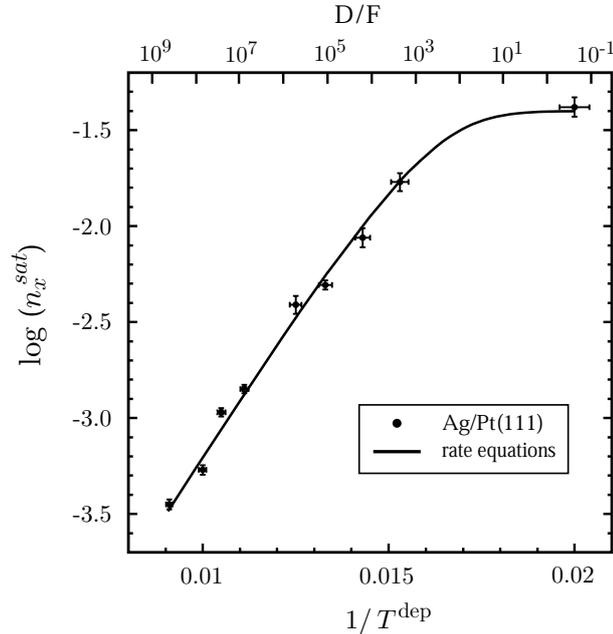


FIG. 4.3: Graph. d'Arrhenius : densité d'îlots à saturation, n_x^{sat} , en fonction de la température de dépôt, dans le régime où les dimères sont stables (*i.e.* $i = 1$). [Source : H. Brune *et al.* [64]].

Une fois le dépôt effectué, il est possible de recuire l'échantillon. Ceci a

pour conséquence d'activer thermiquement l'évaporation bi-dimensionnelle d'atomes depuis les îlots et de conduire à une modification de la distribution en taille, dans laquelle les plus petits îlots vont disparaître au profit des plus gros. Cet effet, appelé mûrissement d'Ostwald [66], peut être décrit thermodynamiquement par l'effet Gibbs-Thomson [67] qui stipule que la pression d'une vapeur (ici les atomes diffusants), en équilibre avec sa phase condensée (les îlots), décroît avec le rayon de courbure de l'interface entre les phases (le rayon de courbure des îlots). Par conséquent, les atomes de la périphérie des petits agrégats s'évaporent plus rapidement que ceux des grands. Un exemple de mûrissement d'Ostwald est présenté sur la fig. 4.4, où l'on constate qu'après avoir attendu un temps suffisamment long, les petits îlots ont disparu et fait grossir les grands. De surcroît, comme illustrée sur la fig. 4.5, la distribution en taille obtenue après recuit, pour activer le mûrissement, est significativement plus étroite que celle obtenue par nucléation pure. Un autre effet du recuit est de rendre les îlots plus compacts, en permettant aux atomes de diffuser à leur périphérie jusqu'à trouver un site énergétiquement plus favorable.

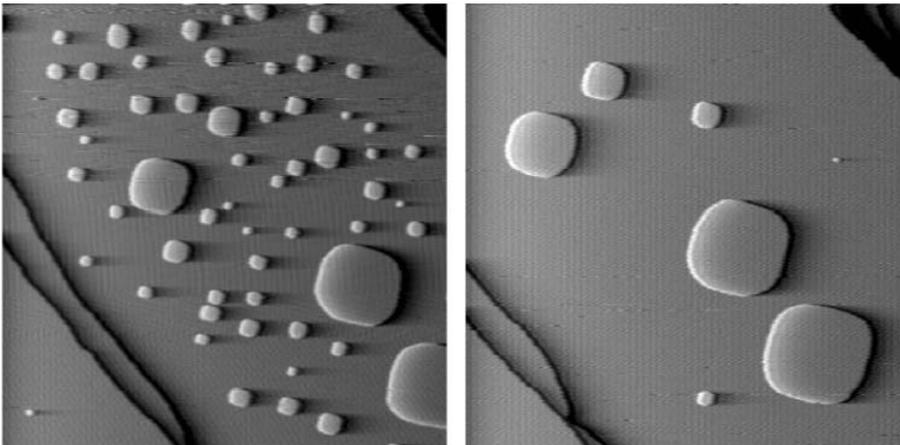


FIG. 4.4: Deux images STM $3000 \times 3000 \text{ \AA}^2$, prises à un intervalle de 20000 s, montrant le processus de mûrissement d'Ostwald d'îlots de Cu sur Cu(100) à 343K. [Source : J. B. Hannon *et al.* [68]].

4.2 Croissance auto-organisée

La croissance obtenue par MBE sur une surface cristalline isotrope est parfaitement aléatoire. En particulier, la position des îlots ainsi que leur forme exacte ne peuvent pas être contrôlées. Pour de nombreuses applications et expériences, il est nécessaire de faire croître les nanostructures à des emplacements désirés ou selon une forme particulière. Une solution pour influencer le processus de nucléation est d'utiliser un substrat texturé

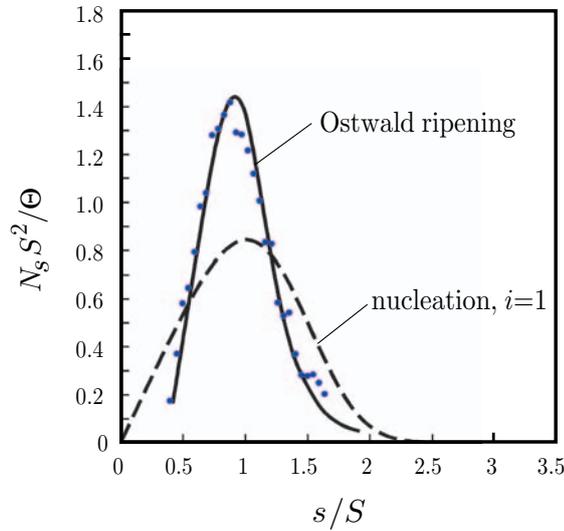


FIG. 4.5: Distribution en taille normalisée des îlots avant et après recuit à diverses températures (schématisées par divers symboles). Le mûrissement d'Ostwald (Ostwald ripening) permet d'améliorer significativement la monodispersité en taille des îlots. [Source : H. Röder *et al.* [69]].

qui favorise la croissance à des endroits précis ou anisotrope pour favoriser la croissance selon des directions privilégiées. On peut, par exemple, utiliser comme substrat une surface de type fcc(110). En effet, les atomes de cette surface sont arrangés en lignes parallèles séparées par une rigole (image 4.6b). La barrière d'énergie à surmonter pour passer d'une rigole à l'autre est plus élevée que celle qui sépare deux sites le long de cette dernière. Par conséquent, lorsque l'activation thermique n'est pas assez élevée, les atomes déposés sont contraints à se déplacer le long de ce canal jusqu'à rencontrer un autre atome ou un îlot stable auquel se lier. La croissance est, de ce fait, principalement uni-directionnelle. La fig. 4.6 illustre ce mode de croissance pour des îlots de Cu, ayant une forme allongée selon l'axe $\{1\bar{1}0\}$, sur la surface Pd(110).

Pour contrôler l'emplacement des nanostructures lors du dépôt, il est possible d'utiliser une surface qui comporte un réseau périodique de dislocations ou de reconstructions. Par exemple, l'énergie de contrainte présente lors d'une croissance hétéroépitaxiale génère des dislocations pour accommoder la différence de paramètre de maille entre les deux espèces atomiques. La répulsion à longue portée existant entre elles peut conduire à la formation d'un réseau régulier de dislocations. Lors du dépôt, la diffusion des atomes est fortement perturbée par les dislocations qui agissent souvent comme des barrières répulsives. Ainsi, si l'activation thermique est suffisamment basse pour empêcher les atomes de traverser les lignes de dislocations, un agrégat va se former dans chaque cellule définie par le motif du réseau périodique de

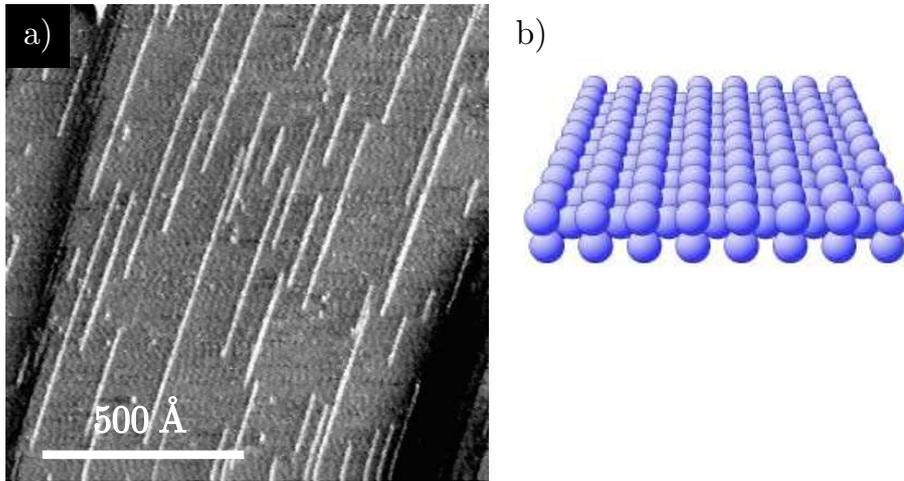


FIG. 4.6: a) Image STM de 0.1 ML de Cu sur Pd(110) à 300K. b) Représentation d'une surface fcc(110) où l'on voit les canaux orienté dans la direction $\{110\}$. [Image STM : J. P. Bucher *et al.* [70]].

dislocations. Un exemple est montré sur la fig. 4.7 où le réseau de dislocations partielles est créé en déposant 2 ML de Ag sur la surface Pt(111). Le paramètre de maille volumique de Ag est 4.3% plus grand que celui du Pt.

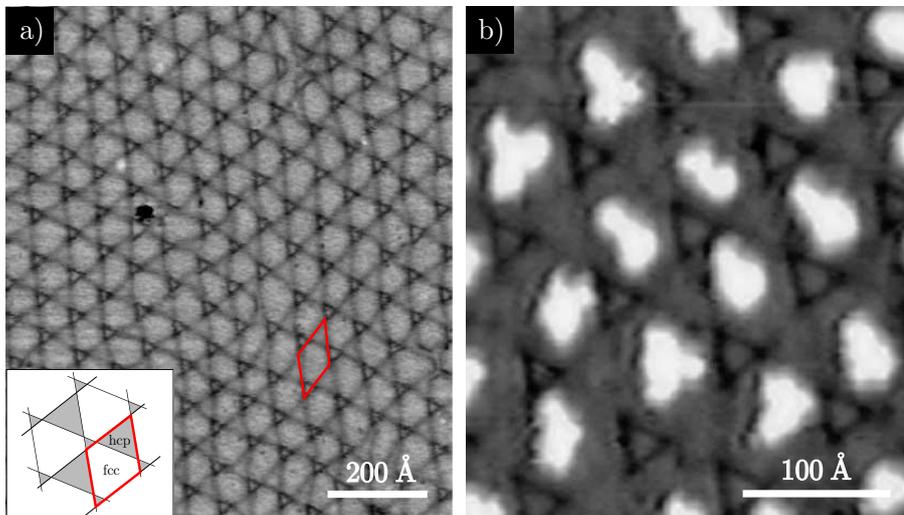


FIG. 4.7: a) Image STM d'un réseau de dislocations obtenu en déposant 2 ML de Ag sur Pt(111) à 300K puis recuit à 800K. Les lignes noires sont des dislocations partielles séparant des zones fcc et hcp. b) Un dépôt de Ag à 110K forme un îlot au sein de chaque cellule selon le réseau défini par les dislocations. De surcroît, la distribution en taille des agrégats est beaucoup plus piquée que celle obtenue par nucléation sur un substrat isotrope (non montré). [Image STM : H. Brune *et al.* [71]].

Chapitre 5

Le superparamagnétisme

L'étude des substances magnétiques a conduit à la création de grandes familles permettant une classification précise et une description rigoureuse de leurs comportements. Le terme général de magnétisme (ou magnétique) ne désigne pas un comportement précis car il peut s'agir de diamagnétisme, paramagnétisme, ferromagnétisme, antiferromagnétisme... Le ferromagnétisme est certainement la famille la plus notoire (et aussi la plus étudiée) car elle décrit la physique des aimants permanents, utilisés abondamment dans la technologie. Dans un ferroaimant, les moments magnétiques, portés par les électrons, sont couplés entre eux *via* une interaction d'origine quantique : l'interaction d'échange. Pour minimiser l'énergie d'échange causée par cette interaction, le système tend à conserver ses moments magnétiques alignés, origine de l'aimantation permanente. Ceci n'est vrai que pour des températures inférieures à la température de Curie T_C , définissant le passage du régime ferromagnétique à celui de paramagnétique. Dans le paramagnétisme, les moments magnétiques ne sont pas couplés entre eux ou plus exactement l'énergie d'échange est négligeable par rapport à l'énergie thermique. Ils sont alors libres de s'orienter dans la direction qu'ils veulent. En appliquant un champ magnétique sur une substance paramagnétique, ses moments vont chercher à s'aligner avec le champ, créant ainsi une aimantation dans le matériau. Lorsque l'on coupe le champ, les moments magnétiques, sous l'influence de l'agitation thermique, reprennent une orientation aléatoire et l'aimantation est à nouveau nulle.

Dans un matériau ferromagnétique, les moments magnétiques ne sont pas forcément tous alignés (un morceau de fer peut très bien avoir une aimantation macroscopique nulle). Cette observation s'explique par le fait que le matériau est divisé en domaines (les domaines de Weiss) délimitant des régions microscopiques où les moments magnétiques sont alignés. Chaque domaine porte ainsi une aimantation propre et l'aimantation macroscopique du matériau est la somme vectorielle de toutes ces aimantations. Cette configuration en domaines permet de minimiser le champ démagnétisant

et donc l'énergie dipolaire du système (l'interaction du champ magnétique créé par le matériau sur ses propres moments). Les interactions d'échange et de couplage dipolaire visent donc des objectifs opposés. La coexistence de ces deux interactions est toutefois possible grâce au fait que chacune d'elle possède sa zone d'influence privilégiée : le proche voisinage pour l'échange, les régions plus éloignées pour le couplage dipolaire. On introduit une distance typique, la longueur d'échange $l_{\text{éch}} = \sqrt{2A_{\text{éch}}/\mu_0 M_s^2}$, dépendant de la constante d'échange $A_{\text{éch}}$ et de l'aimantation à saturation M_s . Cette distance sépare la zone d'influence où l'emporte l'échange ($l < l_{\text{éch}}$), de celle où règne le couplage dipolaire ($l > l_{\text{éch}}$). En outre, la taille et la forme des domaines dépendent de paramètres intrinsèques au matériau (constante d'échange, forme, défauts, cristallographie...) ainsi que du champ extérieur appliqué et du processus d'aimantation. Entre chaque domaine, on observe une zone tampon, plus ou moins large, à l'intérieur de laquelle l'aimantation tourne : c'est une paroi. La création d'une paroi coûte de l'énergie (énergies d'échange et d'anisotropie). La configuration magnétique finale est forcément très compliquée et représente un compromis entre les énergies d'échange et dipolaire.

5.1 Introduction au superparamagnétisme

Lorsque l'on étudie des objets ferromagnétiques nanométriques, la description physique de leur micromagnétisme peut être quelque peu simplifiée car ils sont généralement suffisamment petit pour ne contenir qu'un seul et unique domaine magnétique. En effet, l'énergie du champ démagnétisant est proportionnelle au volume de l'échantillon tandis que l'énergie dépensée en parois est proportionnelle à leur surface. Il est classique que, aux petites dimensions, les termes de surface deviennent plus importants que ceux de volume. Kittel [72] a calculé la taille critique d'une particule sphérique ou ellipsoïdale à partir de laquelle la configuration monodomaine est la plus favorable. Il trouve ainsi que le rayon critique d'une sphère de fer est $R_c = 9\gamma/\mu_0 M_s^2 \approx 7.5$ nm, avec γ la densité d'énergie superficielle d'une paroi¹, soit un peu plus que la longueur d'échange dans le fer : $l_{\text{éch}}^{\text{Fe}} = 5$ nm. Un agrégat de cette taille contiendrait approximativement 10^5 atomes. En outre, dès que l'on déforme la sphère, pour induire une anisotropie de forme, la taille critique peut atteindre plusieurs centaines de nanomètres. Les nanostructures que nous étudions comportent environ 10^3 atomes. Le raisonnement ci-dessus, bien que très simple, nous permet toutefois de conclure que les nanostructures ne comportent qu'un seul domaine magnétique porteur d'un moment nommé macrospin. Ce macrospin M est la somme de tous les moments magnétiques m_i portés par les atomes : $M = \sum_i m_i$. Le moment m_i étant lui-même la somme du moment de spin m_S , du moment orbital

¹ $\gamma^{\text{Fe}} = 3 \times 10^{-3} \text{ Jm}^{-2}$ et $M_s^{\text{Fe}} = 1.7 \times 10^6 \text{ Am}^{-1}$

m_L et éventuellement du moment de polarisation du substrat.

En créant sur une surface des nanostructures suffisamment séparées les unes des autres pour ne pas interagir entre elles, on obtient un ensemble de macrospins découplés comparable à un système paramagnétique. C'est ainsi qu'est défini le superparamagnétisme et c'est dans ce cadre que nous allons traiter le magnétisme de nos nano-îlots. L'évolution temporelle de l'amplitude et de l'orientation de chaque macrospin est caractéristique de la nanostructure (forme, nombre d'atomes, élément chimique) et dépend aussi de la température. Nous reviendrons plus loin sur la description quantitative de l'évolution temporelle du macrospin.

Pour les nanostructures, il existe bien évidemment une température de Curie à partir de laquelle l'interaction d'échange ne suffit plus à garder les moments magnétiques des atomes alignés. Au delà de T_C , l'objet tout entier devient paramagnétique et son macrospin est nul. A cause de l'agitation thermique, l'amplitude du macrospin diminue continûment lorsque la température varie entre 0K et T_C . Proche de T_C , cette décroissance suit un comportement en puissance caractérisé par un exposant critique β :

$$M \propto \left(1 - \frac{T}{T_C}\right)^\beta, \quad T \rightarrow T_c \quad (5.1)$$

La valeur de β dépend de la dimensionnalité et du nombre de degrés de liberté dans l'orientation du macrospin, c'est à dire trois dans le modèle d'Heisenberg, deux dans le modèle xy et un dans le modèle d'Ising. Dans le modèle d'Heisenberg, l'orientation du macrospin est parfaitement isotrope dans toutes les directions. C'est un modèle qui ne fait intervenir aucune anisotropie. Le modèle xy confine le macrospin à rester dans un plan 2D. Le modèle d'Ising n'autorise que 2 orientations, selon l'axe z : \uparrow ou \downarrow . Pour un système 2D idéal, seul le modèle d'Ising révèle un ordre ferromagnétique à longue portée avec un exposant $\beta = 0.125$, déterminé par Onsager [73]. Quant au modèle d'Heisenberg, il n'autorise pas l'ordre ferromagnétique dans des systèmes 2D (ou 1D) pour toutes températures $T > 0$.

En général, on observe que la température de Curie diminue avec l'épaisseur des couches déposées [74]. Cette tendance reflète la nature coopérative du ferromagnétisme, où l'absence de couches d'atomes sur la face côté vide est ressentie par les couches plus profondes. Des tendances similaires ont été observées sur des agrégats de petite taille [75] où la plus faible coordination des atomes de surface est un facteur à la diminution de T_C . Il est cependant très difficile de prédire l'évolution de la température de Curie avec la taille des nano-objets car la distance entre les atomes, l'interaction électronique avec le substrat ou l'anisotropie sont autant de paramètres qui jouent un rôle primordial pour son évaluation [76].

5.2 Anisotropie

De part l'influence de son environnement et pour des raisons de symétrie, l'orientation du macrospin porté par une nanostructure n'est pas isotrope. Certaines directions spatiales sont privilégiées et conditionnent sa dynamique temporelle. Dans ce paragraphe, nous présentons les différentes sources d'anisotropies présentes dans les matériaux magnétiques et plus particulièrement les nano-objets.

La forme de l'objet est une première source évidente d'anisotropie. En effet, le champ démagnétisant (champ créé par les moments de l'objet à l'intérieur de lui-même) tend à aligner le moment total M selon certaines directions énergétiquement plus favorables. On comprend bien qu'un objet aplati préfère garder son aimantation dans le plan et qu'un objet allongé selon son grand axe. Les nanostructures auxquelles nous nous sommes intéressés sont comparables à des crêpes, avec une hauteur de 1-2 atomes et un diamètre moyen de ~ 50 atomes. Dans ce cas, l'énergie de l'anisotropie de forme s'exprime comme : $E_f \propto M^2 \cos^2 \theta$ avec θ l'angle entre l'aimantation et la normale à la surface de la nanostructure. Cette énergie est minimale pour $\theta = \pi/2$. L'anisotropie de forme tend ainsi à maintenir M dans le plan de nos nanostructures.

La structure cristallographique du matériau magnétique est une autre source d'anisotropie. Celle-ci découle de l'interaction spin-orbite et tend à aligner le moment M selon les axes de symétrie du cristal. La symétrie la plus simple est celle qui ne contient qu'un seul axe. En ne conservant que le terme de degré le plus bas, l'énergie magnétocristalline s'écrit comme : $E_m = K_m \sin^2 \theta$ avec θ l'angle entre M et l'axe d'anisotropie et K_m la constante d'anisotropie uniaxiale. Deux cas se présentent : 1) pour $K_m > 0$, E_m est minimale quand $\theta = 0$, c'est-à-dire quand M est parallèle à l'axe d'anisotropie, ce dernier est alors nommé axe d'aimantation facile (easy axis), 2) pour $K_m < 0$, E_m est minimale quand $\theta = \pi/2$, c'est-à-dire quand M est dans le plan perpendiculaire à l'axe d'anisotropie (easy plane).

La brisure de symétrie en surface et l'interface avec le substrat engendrent une anisotropie dite de surface. Elle fut suggérée par Néel [77] et prend une forme similaire à l'anisotropie magnétocristalline uniaxiale, décrite ci-dessus, avec une constante K_s qui peut-être positive ou négative suivant le système étudié.

Enfin, une anisotropie magnétoélastique apparaît lorsque la maille cristallographique du métal constituant l'îlot est différente de celle du substrat. Un désaccord de maille génère des contraintes dans la nanostructure de plusieurs GPa et donne naissance *via* le couplage magnétoélastique à une anisotropie uniaxiale.

Pour résumer, l'anisotropie totale de nos nanostructures est la somme de toutes ces contributions qui s'avèrent être toutes uniaxiales. En se restrei-

gnant au cas particulier où tous les axes d'anisotropie sont perpendiculaires à la surface, on obtient, au final, une anisotropie uniaxiale qui s'exprime, au premier ordre, par :

$$E_a = K \sin^2 \theta \quad (5.2)$$

avec θ l'angle entre M et l'axe d'anisotropie (orthogonal à la surface) et K la constante d'anisotropie uniaxiale. En fonction du signe de K , on sera soit dans une configuration *hors-plan* ($K > 0$) ou *dans-le-plan* ($K < 0$). Ce paramètre n'est *a priori* pas connu et doit donc être utilisé comme paramètre libre pour ajuster les courbes expérimentales. Comme nous le verrons au paragraphe 6.2, nous avons pu mettre en évidence le rôle prépondérant joué par les atomes du périmètre de l'îlot dans la valeur de l'anisotropie. Contrairement à ce que l'on peut lire dans la littérature, cette constante n'est pas simplement une anisotropie volumique (surfactive) multipliée par le volume (la surface) de l'objet. Les contributions à l'anisotropie des surfaces, pour les structures 3D, et du périmètre, pour celles 2D, ne sont pas négligeables et doivent être insérées dans le calcul du K total.

5.3 Modélisation du superparamagnétisme

Considérons une nanostructure porteuse d'un macrospin M déposée sur une surface cristalline. Dans le cas particulier auquel nous nous intéressons, cette nanostructure subit une anisotropie uniaxiale hors-plan ($K > 0$) décrite par l'éq. 5.2. Appliquons un champ magnétique H , selon z , perpendiculaire à la surface. L'énergie totale est la somme de l'énergie d'anisotropie et de l'énergie Zeeman :

$$E = K \sin^2 \theta - \mu_0 M H \cos \theta \quad (5.3)$$

Comme représenté sur la fig. 5.1b, il existe au plus deux minima d'énergie, l'un à $\theta = 0$ et l'autre à $\theta = \pi$ ayant comme énergie $E_- = -\mu_0 M H$ et $E_+ = +\mu_0 M H$. Dans la limite où le champ appliqué est faible, la hauteur de la barrière séparant les deux puits vaut environ K .

Comme nous le verrons au § 5.3.3, il est possible de résoudre la dynamique du macrospin. Cependant, il est utile de simplifier le modèle décrit par l'éq. 5.3 pour retomber sur deux cas classiques du magnétisme : le modèle d'Ising et le modèle de Langevin.

5.3.1 Cas limite, $K \rightarrow \infty$: modèle d'Ising

Dans le modèle d'Ising, le macrospin n'a que deux états possibles (\uparrow) correspond à $\theta = 0$ ou (\downarrow) correspond à $\theta = \pi$, toutes les autres orientations étant formellement impossibles (cf. fig. 5.1b). C'est-à-dire que les deux puits de potentiels sont infiniment hauts et étroits car l'énergie d'anisotropie

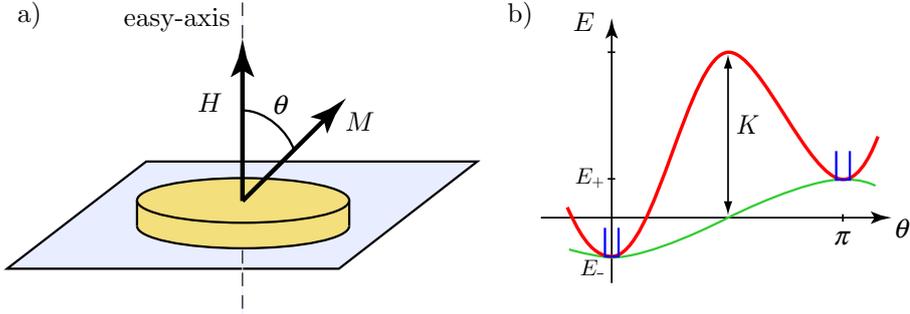


FIG. 5.1: a) Schématisation d'un îlot magnétique déposé sur une surface. Son anisotropie est uniaxiale ($K > 0$) avec un axe de facile aimantation (easy-axis) hors-plan. b) Représentation de l'énergie totale de l'îlot donnée par l'éq. 5.3 (rouge) ainsi que les modèles d'Ising (bleu) et Langevin (vert).

uniaxiale K est extrêmement grande. A l'équilibre thermodynamique, l'aimantation moyenne d'une grande quantité N de nanostructures identiques n'interagissant pas entre elles est donnée par :

$$M_{\text{Ising}} = NM \frac{\exp\left(\frac{\mu_0 MH}{k_B T}\right) - \exp\left(\frac{-\mu_0 MH}{k_B T}\right)}{\exp\left(\frac{\mu_0 MH}{k_B T}\right) + \exp\left(\frac{-\mu_0 MH}{k_B T}\right)} = NM \tanh\left(\frac{\mu_0 MH}{k_B T}\right) \quad (5.4)$$

La susceptibilité magnétique à champ nul $\chi = \left.\frac{\partial M}{\partial H}\right|_{H=0}$ vaut alors :

$$\chi_{\text{Ising}}(T) = \frac{\mu_0 N M^2}{k_B T} \quad (5.5)$$

5.3.2 Cas limite, $K = 0$: modèle de Langevin

Le modèle de Langevin est l'exact opposé de celui d'Ising. En effet, dans ce modèle, l'énergie d'anisotropie $K = 0$. Ainsi, sans champ extérieur, toutes les directions ont la même probabilité d'être occupées par le macrospin. Dans l'éq. 5.3, il ne reste plus que le terme d'énergie magnétique $-\mu_0 \mathbf{M} \cdot \mathbf{H}$, minimum lorsque \mathbf{M} est aligné selon \mathbf{H} . Dans notre cas, où le champ extérieur est hors-plan, il n'existe qu'un seul minimum d'énergie en $\theta = 0$ (cf. fig. 5.1b). A l'équilibre thermodynamique, l'aimantation moyenne d'une grande quantité N de nanostructures identiques n'interagissant pas entre elles est donnée par :

$$M_{\text{Lang.}} = NM \left[\coth\left(\frac{\mu_0 MH}{k_B T}\right) - \frac{k_B T}{\mu_0 MH} \right] \quad (5.6)$$

La susceptibilité magnétique à champ nul vaut alors :

$$\chi_{\text{Lang.}}(T) = \frac{\mu_0 N M^2}{3 k_B T} = \frac{1}{3} \chi_{\text{Ising}}(T) \quad (5.7)$$

5.3.3 Modèle du superparamagnétisme pour les îlots

Comme nous allons le voir, les deux modèles d'Ising et de Langevin correspondent au comportement asymptotique du superparamagnétisme dans les limites où la température tend vers 0 ou l'infini. Il est toutefois possible, à partir de l'expression de l'énergie totale 5.3, de décrire de façon exacte le comportement dynamique du macro-spin en déterminant la susceptibilité magnétique. Lorsque le système a atteint l'équilibre thermodynamique, on peut calculer, en utilisant la loi de Boltzmann, la fonction de partition exacte de ce système. La susceptibilité à l'équilibre thermodynamique $\chi_{\text{eq}}(T)$ peut ensuite être déduite. On trouve, pour une seule nanoparticule d'anisotropie K et de macrospin M [78] :

$$\chi_{\text{eq}}(T) = \mu_0 M^2 \left[\frac{\exp(K/k_B T)}{\sqrt{\pi K k_B T} \operatorname{Erfi}(\sqrt{K/k_B T})} - \frac{1}{2K} \right] \quad (5.8)$$

avec $\operatorname{Erfi}(x) = 2/\sqrt{\pi} \int_0^x \exp v^2 dv$ la fonction erreur imaginaire et k_B la constante de Boltzmann.

Dans une expérience réelle, le temps qu'on laisse au système pour évoluer et s'équilibrer est de l'ordre de grandeur de la période à laquelle on fait varier le champ magnétique. Par conséquent, en dessous d'une certaine température critique, le système n'aura pas eu le temps de traverser suffisamment de fois la barrière de potentiel pour atteindre l'équilibre thermodynamique. Pour décrire cette situation hors-équilibre, il est utile de définir une susceptibilité hors-équilibre complexe : $\chi(T) = \chi'(T) + i\chi''(T)$. La partie complexe χ'' est associée aux processus irréversibles du retournement de l'aimantation qui surviennent lorsque le système n'est plus à l'équilibre thermodynamique. Elle décrit le fait que l'aimantation n'est plus en phase avec le champ extérieur, ce qui conduit à une ouverture de la boucle d'hystérèse, typique d'un comportement ferromagnétique. A l'équilibre thermodynamique, $\chi'' = 0$.

Finalement, il est possible de démontrer que la susceptibilité magnétique (décrivant les régimes hors et à l'équilibre) peut être exprimée en fonction de χ_{eq} (fonction réelle) par :

$$\chi(T) = \frac{1}{1 - i\omega\tau} \chi_{\text{eq}}(T) \quad (5.9)$$

On peut ainsi distinguer les deux composantes de χ :

$$\chi'(T) = \frac{1}{1 + \omega^2\tau^2} \chi_{\text{eq}}(T) \quad (5.10)$$

$$\chi''(T) = \frac{\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \chi_{\text{eq}}(T) \quad (5.11)$$

ω est relié au temps caractéristique de la mesure $t = 2\pi/\omega$. Par exemple, dans notre mesure Kerr, ω est la pulsation à laquelle le champ magnétique

externe H varie. Le temps de relaxation τ représente le temps moyen que met le système pour passer d'un puits à l'autre en champ H nul. Il est donné par :

$$\tau = \tau_0 \exp(K/k_B T) \quad (5.12)$$

avec $\tau_0 = 1/(2\nu_0)$ où $\nu_0 = 10^{10}$ s est la fréquence d'essai [79]. Rappelons que l'expression 5.9 a été dérivée en supposant que le champ magnétique \mathbf{H} est parallèle à l'axe d'anisotropie. Si ce n'était pas le cas, un couple serait exercé par le champ sur le macrospin et le forcerait à s'écarter de l'axe d'anisotropie. Cet effet serait décrit en incluant un terme de susceptibilité indépendante de la température.

La fig. 5.2 illustre les fonctions $\chi'(T)$, $\chi''(T)$ et $\chi_{\text{eq}}(T)$ pour une nanostructure donnée. Ces courbes seraient exactement les mêmes pour décrire un système composé d'un grand nombre de nanostructures toutes identiques et n'interagissant pas entre elles.

On observe qu'en dessous d'une certaine température, la susceptibilité magnétique mesurée expérimentalement $\chi'(T)$ décroche de la courbe χ_{eq} et tombe rapidement à 0. On introduit la température de blocage T_b :

$$T_b = \frac{K}{k_B} \ln \left(\frac{1}{\omega \tau_0} \right) \quad (5.13)$$

correspondant à la température où le système atteint la moitié de χ_{eq} . Pour des températures supérieures à T_b , le système passe de très nombreuses fois par-dessus la barrière de potentiel. Le système est ainsi à l'équilibre thermodynamique et la susceptibilité χ' est par conséquent égale à χ_{eq} (χ'' étant alors nulle). Les boucles $M(H)$ ont alors une forme en S, caractéristiques de la réversibilité de la dynamique dans l'état superparamagnétique. La pente à l'origine de ces courbes est égale à χ' . Par contre, bien en dessous de T_b , pendant le temps de mesure t , le système n'arrive pas à traverser la barrière de potentiel. Le macrospin étant bloqué dans l'un des deux puits tout au long de la mesure, il ne contribue plus au signal magnétique, le signal mesuré est constant et donc $\chi = 0$. A juste titre, on dit que la nanostructure est magnétiquement *bloquée* dans l'un des deux états. La température T_b définit ainsi le passage d'une dynamique superparamagnétique ($T > T_b$) à un état bloqué ($T < T_b$). Aux environs de T_b , le macrospin arrive à passer quelques fois par-dessus la barrière sans toutefois atteindre l'équilibre. Dans cette région de transition, les boucles mesurées sont de véritables hystérèses caractérisant l'irréversibilité de la dynamique du macrospin. La susceptibilité χ'' , étant corrélée à l'ouverture du cycle d'hystérèse (rémanence), apparaît comme un pic centré sur T_b .

Finalement, on remarque que, même pour un système de nanostructures identiques, la transition entre les deux comportements s'effectue sur une fenêtre de température $\Delta T = 2k_B T_b^2 / K$.

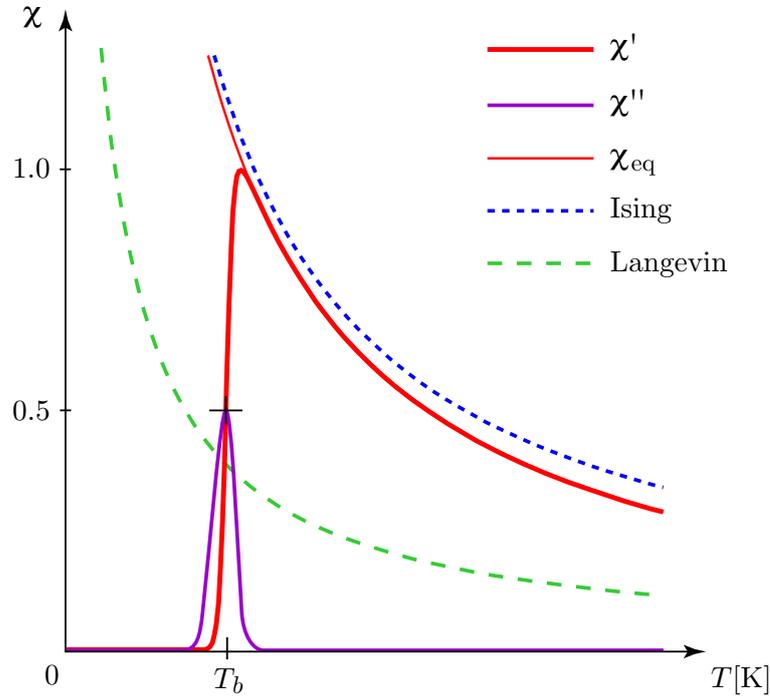


FIG. 5.2: Susceptibilités magnétiques $\chi(T)$ pour un ensemble de nanostructures uniaxiales strictement identiques. En dessous d'une certaine température (légèrement supérieure à T_b), la susceptibilité réelle mesurée expérimentalement $\chi'(T)$ décroche de la courbe χ_{eq} car le système n'a pu atteindre l'équilibre thermodynamique. Le macrospin est alors bloqué dans un des deux puits de potentiel. Aux alentours de T_b , $\chi''(T)$ est non nulle, signe que la dynamique du macrospin est irréversible (hystèreses des courbes $M(H)$) dans cette région.

Dans nos expériences, la fréquence à laquelle on varie le champ magnétique est de 0.1 Hz. Dans ce cas, la formule 5.13 se réduit à $T_b \approx K/(25k_B)$.

Nous avons aussi représenté sur la fig. 5.2 les fonctions $\chi_{\text{Ising}}(T)$ et $\chi_{\text{Lang.}}(T)$ (cf. éq. 5.5 et 5.7). Nous constatons qu'à basse température ($T < 2T_b$), la susceptibilité d'Ising est une très bonne approximation de χ_{eq} . En outre, ce n'est qu'à haute température ($T > 10T_b$) que χ_{eq} peut être approximée par la susceptibilité de Langevin. Il faut, en effet, attendre que l'énergie thermique $k_B T$ soit largement supérieure à l'énergie d'anisotropie K pour que le modèle anisotrope de Langevin soit valable.

Dans le cas d'un système composé de nanostructures différentes, décrit par une distribution de barrières d'énergie $D(K)$, la susceptibilité totale $\chi_{\text{total}}(T)$ est la somme de la susceptibilité $\chi(K, T)$ (donnée par l'éq. 5.9) de

chaque nanostructure caractérisée par son anisotropie K , c'est-à-dire :

$$\chi_{\text{total}}(T) = \sum_K D(K)\chi(K, T) \quad (5.14)$$

Dans un système de nanostructures différentes, la transition ΔT entre les deux comportements superpara/bloqué se trouve élargie. En effet, les îlots avec la plus grande barrière d'énergie bloquent à des températures supérieures. Une fois bloqués, ils ne jouent plus aucun rôle dans la mesure de χ , aux températures inférieures. La courbe finale est la somme de toutes les courbes de susceptibilité caractéristique de chaque îlot. La transition ΔT est ainsi une véritable signature de la distribution des barrières d'énergie des nanostructures étudiées : la forme de la courbe χ'' est directement comparable à la distribution d'énergie d'anisotropie alors que pour la courbe χ' , c'est la raideur du pic qui est caractéristique de l'étroitesse de la distribution d'énergie.

Pour les applications technologiques, tel le stockage de données sur des supports magnétiques, on recherche des nanostructures avec une température de blocage bien supérieure à la température ambiante. Une T_b élevée revient à dire que l'énergie d'anisotropie K de la nanostructure est grande. Plus précisément, la nanostructure doit être capable de garder son orientation magnétique pendant plusieurs années, tout retournement causé par l'agitation thermique étant synonyme de la perte de l'information portée par cette nanostructure. En prenant, par exemple, un temps de relaxation τ de 10 ans et pour une température de 320K, on trouve (cf. éq. 5.12) que l'énergie d'anisotropie K d'une nanostructure magnétique doit valoir environ 1.2 eV. On notera toutefois que la valeur de τ est extrêmement dépendante de K ou de T car ces termes interviennent dans une exponentielle. Ainsi, en prenant une énergie $K = 1$ eV, au lieu des 1.2 eV précédents, le temps de relaxation chute à $\tau \sim 6$ jours. Un léger changement dans l'anisotropie modifie ainsi considérablement la stabilité magnétique de la nanostructure.

Chapitre 6

Etude du système Co/Pt(111)

Bien que de nombreuses études aient déjà été faites sur des couches ou des nanostructures magnétiques, l'origine physique de l'anisotropie, en particulier dans les nanostructures, reste encore assez floue. Il devient cependant nécessaire d'éclaircir ce point si l'on désire pousser jusque dans leurs retranchements les technologies employant le magnétisme comme moyen de stocker des informations (disque dur, MRAM...). D'autre part, la compréhension exacte des principes physiques engendrant l'anisotropie dans les nanostructures magnétiques est un véritable défi scientifique. Fréquemment l'anisotropie d'un objet est calculée en multipliant son volume par une énergie d'anisotropie volumique. Or, nous savons que lorsque l'on diminue la dimensionnalité, les effets liés aux bords deviennent de plus en plus importants, car la fraction des atomes de bords sur les atomes de volumes n'est plus négligeable. Voilà déjà une idée qui mérite d'être creusée afin de savoir s'il ne faudrait pas aussi tenir compte d'un terme lié à la surface de la nanostructure. Qu'il s'agisse des matériaux massifs ou des objets nanométriques, l'anisotropie magnétocristalline intervient de façon prépondérante dans l'anisotropie totale. Elle est une conséquence de l'interaction entre le moment de spin m_S et le moment orbital m_L provoqué par le couplage spin-orbite. En raison du potentiel électrostatique dû à l'environnement, les électrons responsables du magnétisme ne peuvent plus occuper indifféremment n'importe quelle orbitale (par exemple 3d) comme dans le cas de l'ion libre. Il en résulte une anisotropie du moment orbital, et par suite du moment magnétique associé, corrélée à la structure cristallographique. D'autre part, les interactions des électrons de l'atome avec son voisinage peuvent modifier les moments m_S et m_L ainsi que la structure électronique locale et ainsi influencer sur l'anisotropie. En résumé, cette anisotropie magnétocristalline est fortement corrélée à l'environnement électronique local. Pour modifier cet environnement on peut, par exemple, jouer sur la nature chimique des

atomes qui sont en contact avec la nanostructure en changeant le substrat ou en déposant quelques couches atomiques de métaux non magnétiques sur la nanostructure. Des études ont ainsi montré qu'en utilisant des surfaces de Pt(111) [80, 81] ou Pd(111) [82, 83], l'anisotropie totale K devient positive (aimantation hors-plan) et son intensité est fortement augmentée. L'explication de cet effet résulte dans le fait que les atomes de l'interface subissent une hybridation des orbitales 3d (pour le métal ferromagnétique déposé) et 5d (pour le métal du substrat), ce qui a pour conséquence d'augmenter considérablement le moment orbital par rapport à celui du matériau massif [84] et ainsi l'anisotropie magnétocristalline. D'autres études, effectuées sur de très petits agrégats déposés, ont montré que le moment orbital, et par conséquent l'énergie d'anisotropie, dépendent fortement de la coordination de l'atome [85]. Ainsi, l'énergie d'anisotropie d'un atome seul (déposé sur une surface) est environ dix fois plus importante que celle d'un atome qui comporte trois voisins.

Ces constatations nous permettent d'envisager que les atomes de la périphérie n'ont pas la même anisotropie que ceux situés au centre de la nanostructure car leur environnement électronique n'est pas identique. Pour prouver cette idée, il est nécessaire de créer des nanostructures dont on connaît la morphologie exacte ainsi que la composition chimique. Des expériences ont été menées sur des agrégats 3D de Co en employant un micro-SQUID pour mesurer leurs propriétés magnétiques [86]. Il ressort de cette étude que la surface de ces particules joue un rôle dominant dans l'anisotropie totale. Toutefois, la morphologie de ces agrégats était réalisée avec un microscope à transmission électronique (TEM) sur des agrégats similaires mais pas forcément identiques. Cette incertitude sur la morphologie exacte des nanostructures 3D étudiées au SQUID ne permet donc pas d'extraire rigoureusement la contribution des différentes facettes dans la valeur de l'anisotropie. Par ailleurs, d'autres expériences ont été menées sur des nanostructures composés de plusieurs éléments. Il s'agit, par exemple, de particules tridimensionnelles de FePt, quasi-sphériques, formant par auto-assemblage une couche de plusieurs nanomètres d'épaisseur [21]. Cette étude démontre que l'anisotropie de ces agrégats est principalement gouvernée par leur structure cristalline volumique de type fct. Ainsi, contrairement aux agrégats de Co pur, c'est le volume qui est prépondérant dans la valeur de l'anisotropie totale et non la surface.

Pour étudier l'origine de l'anisotropie, il serait, par conséquent, préférable de travailler avec des nanostructures 2D car leur morphologie plane est beaucoup plus facile à caractériser que celle des particules 3D. Cette étude morphologique est réalisée à l'aide d'un microscope à effet tunnel (STM). Les nanostructures sont créées par jet moléculaire (MBE) dans un environnement ultra haut vide (UHV) afin d'éviter une contamination qui endommagerait les propriétés magnétiques de ces nanostructures. Les mesures *in-situ* de leurs propriétés magnétiques nous dispense de devoir recouvrir les na-

nostructures avec des couches métalliques protectrices et ainsi de créer des interfaces supplémentaires, sources de complications lors de l'interprétation des résultats. Nous avons choisi de créer des îlots 2D de Co sur une surface cristalline de Pt(111). Le système Co/Pt possède, en effet, un unique axe d'anisotropie hors-plan, lorsque le recouvrement est inférieur à 4 ML [87]. D'autre part, comme nous allons le voir, ce système permet de produire de nombreuses formes de îlots. Nous présentons ici les résultats obtenus permettant de mettre en évidence le rôle prépondérant que jouent les atomes du périmètre dans l'anisotropie de l'îlot.

6.1 Etude de la croissance du Co sur Pt(111)

Comme nous désirons étudier le rôle des atomes du périmètre par rapport à ceux de surface, il est tout d'abord nécessaire de maîtriser la fabrication des îlots de Co. Notre premier but est d'arriver à créer des nanostructures ayant une large distribution en taille et en périmètre pour pouvoir sonder leurs propriétés magnétiques sur une très large gamme. Le deuxième but est de créer des nanostructures où la relation entre la surface et le périmètre d'un îlot est non-linéaire. Ceci donne à ces deux distributions une forme caractéristique permettant de distinguer le rôle joué par les atomes du bord et ceux du centre. Les nanostructures ne doivent pas être trop petites car notre système Kerr n'est plus assez sensible si le macrospin M est trop faible (le signal mesuré est, en effet, proportionnel à M^2 lorsque $T > T_b$). D'autre part, nous devons empêcher la formation de trop gros îlots qui peuvent conduire à un début de coalescence ainsi que celle de bandes décorant les marches du substrat. Nous allons commencer par présenter les résultats obtenus lors du travail préliminaire consistant en l'étude de la morphologie des nanostructures de Co.

6.1.1 Préparation de la surface de Pt(111)

Une bonne préparation de la surface de Pt(111) est fondamentale car le taux d'impuretés et de défauts ainsi que la distance entre les marches sont autant de facteurs perturbant la croissance des nanostructures. Un cycle typique de préparation commence par un bombardement d'ions argon à 1000 eV, à température ambiante, pour retirer les dépôts métalliques de la veille. On continue ensuite de bombarder à haute température, $T=800\text{K}$, pour activer la mobilité des atomes de surface et obtenir une érosion couche par couche. Puis, une exposition à une pression de $3 \cdot 10^{-8}$ mbar d'oxygène à $T=800\text{K}$ permet de transformer les agrégats de carbone, ségrégant à la surface du Pt, en CO et CO₂ volatiles. Finalement, l'échantillon est recuit à $T=1400\text{K}$ pour produire une surface plane. L'élévation de la température est rapide (≈ 50 K/s) alors que le refroidissement se doit d'être lent (≈ -2 K/s) pour permettre aux marches et aux terrasses de se lisser convenablement.

Ce cycle est répété 2-3 fois en diminuant à chaque fois le temps de chacune des étapes. En suivant cette préparation nous obtenons une surface caractérisée par une distance entre marches d'environ 1000 Å. L'image STM de la fig. 6.1a montre notre surface de Pt(111) dans une région particulièrement bien plane, avec de très larges terrasses. La hauteur de marche mesurée sur cette image est de 2.22 Å. D'après les paramètres de maille du matériau massif, la distance entre deux atomes de Pt de la surface est théoriquement de 2.77 Å et la hauteur d'une marche 2.26 Å. La surface de la maille élémentaire du Pt vaut 6.65 Å². La fig. 6.1b est une image en résolution atomique. Les triangles plus foncés indiquent la présence d'une impureté (C ou O) adsorbée, invisible directement avec le STM, mais qui perturbe la densité d'état électronique des atomes de Pt. La densité d'impuretés caractéristique est inférieure à 0.4%.

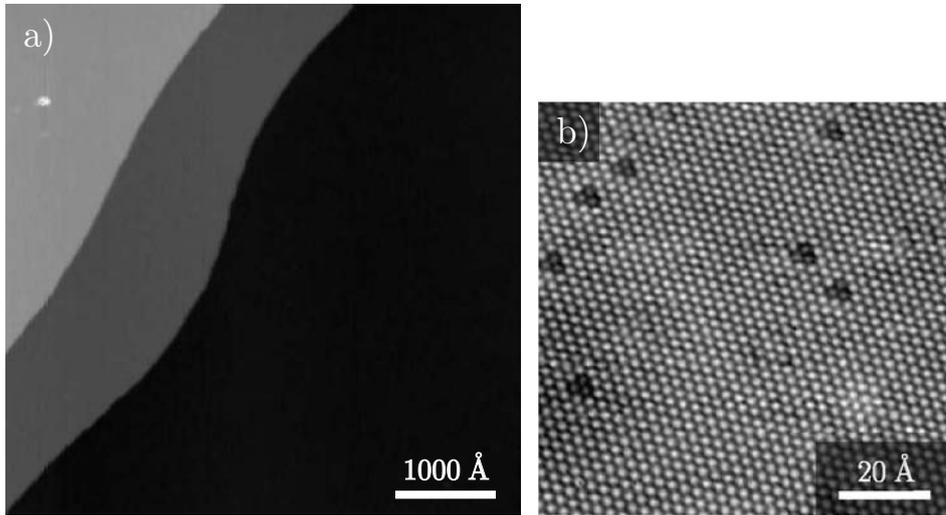


FIG. 6.1: Surface de Pt(111) propre après des cycles de préparation standard. a) vue d'ensemble de larges terrasses. b) résolution atomique ($U_t = 50$ mV, $I_t = 10$ nA).

6.1.2 Dépôt du Co

Le Co est évaporé à partir d'une source triple Omicron. La tige est faite en cobalt ultra-pur à 99.995% (Alfa Aesar). Ce type de source présente l'avantage de pouvoir précisément contrôler le flux d'atomes, en mesurant le courant d'émission des ions émis. La calibration de la source s'effectue en faisant une mesure de recouvrement à l'aide du STM. Le flux était d'environ 0.3 ML/min pour un courant d'émission de 80 nA. Avant d'effectuer un dépôt à basse température, l'échantillon est recuit à 600K pour évaporer l'eau condensée sur la surface pendant son refroidissement. La pression dans la chambre lors des dépôts reste en dessous de $8 \cdot 10^{-11}$ mbar.

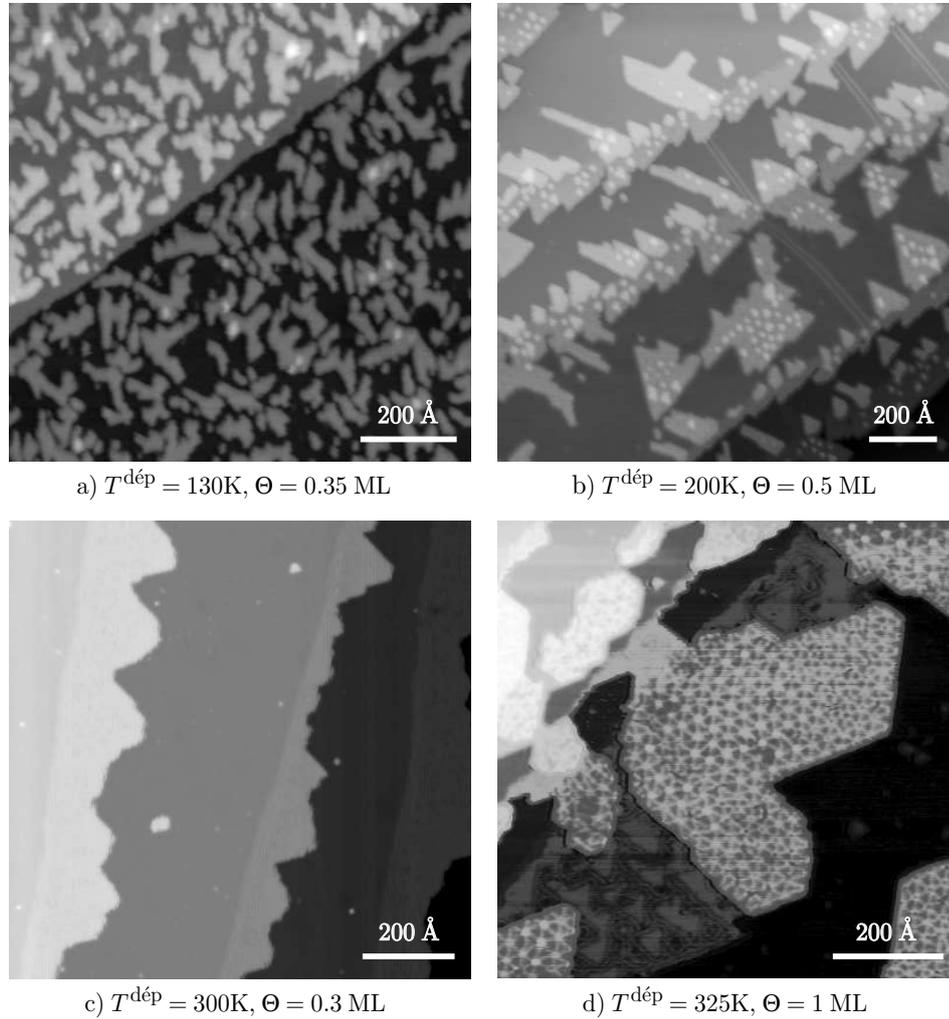


FIG. 6.2: Etude de la morphologie en fonction de la température de dépôt $T^{\text{dép}}$ de Co sur le Pt(111). Seul le dépôt à basse température permet d'obtenir des îlots. A température plus élevée, le Co diffuse trop et vient se coller sur les marches du Pt avant même d'avoir pu former des îlots. Sur l'image b, on constate la présence de doubles lignes de dislocation à la surface du Pt provenant de l'insertion de Co dans le Pt (le contraste a été amplifié au niveau des lignes pour les mettre en valeur).

Etude en fonction de la température de dépôt

Nous avons débuté par une série de dépôts de Co en fonction de la température de l'échantillon. Les images 6.2a-d correspondent à des températures de dépôt $T^{\text{dép}}$ de 130K, 200K, 300K et 325K avec des recouvrements respec-

tifs Θ de 0.35 ML, 0.5 ML, 0.3 ML et 1 ML.

Le premier dépôt (Fig. 6.2a) permet de former de nombreux îlots ramifiés mono-couches. On aperçoit toutefois quelques petites taches blanches, signe qu'une seconde couche de Co commence à croître sur quelques îlots. La dispersion en taille est très large : de petits agrégats ne contenant que quelques dizaines d'atomes côtoient des îlots de plus de 1000 atomes. La distance entre les îlots est relativement faible sans pour autant conduire à la percolation.

Le dépôt à 200K (Fig. b) permet de former des îlots compacts triangulaires mono-couches. Cependant, à cette température, le libre parcours moyen des atomes déposés est du même ordre de grandeur que la distance entre les marches du Pt. Par conséquent, une majorité des atomes de Co sont allés se coller sur les marches pour former une longue chaîne continue. On remarque aussi plusieurs doubles lignes à la surface du Pt. Elles correspondent à une reconstruction de la surface de Pt et indiquent que des atomes de Co se sont insérés dans la dernière couche de Pt [88]. Ce phénomène d'insertion apparaît lorsque la température de dépôt est supérieure à 180K [89].

Le dépôt à 300K (Fig. c) révèle qu'à cette température le libre parcours moyen des atomes de Co est largement supérieur à la distance entre marches. Il en résulte que toute la matière déposée s'est collée sur ces dernières pour former une large bande d'une épaisseur atomique de hauteur.

Le dernier dépôt à 325K (Fig. d) est intéressant car il nous permet de voir la première et la deuxième couche de Co. Le contraste a été volontairement amplifié pour mettre en valeur les structures apparaissant à leur surface. Une étude en résolution atomique [90] révèle que les atomes de la première couche de Co se placent majoritairement sur les sites fcc du Pt. Le fait que le paramètre de maille du Co soit environ 10% plus petit que celui du Pt provoque une tension de surface dans la couche de Co qui doit être relaxée au moyen de dislocations partielles. Ce sont ces lignes blanches que l'on voit et qui forment un labyrinthe triangulaire. La seconde couche de Co soulage la tension accumulée dans la première couche, révélant ainsi une structure de Moiré hexagonal. Dans cette couche, la distance entre les atomes de Co est très proche de celle présente dans le matériau massif. Grâce à leur grande corrugation, ces deux structures sont aisément visibles avec le STM et permettent de facilement distinguer les îlots de Co mono- des bi-couches.

Cette étude préliminaire nous permet de conclure que seul un dépôt à basse température ($T^{\text{dép}} < 200\text{K}$) permet de créer des îlots de Co. Pour des températures supérieures, deux effets indésirables surviennent. Le premier est que des atomes de Co vont s'implanter dans la surface de Pt, générant des lignes de dislocation qui perturbent la croissance des îlots et libèrent des atomes de Pt qui pourront diffuser jusqu'à rencontrer un îlot de Co et, par conséquent, modifier sa composition chimique [91]. Le deuxième effet est que le libre parcours moyen des atomes déposés devient plus grand que la distance entre les marches ce qui conduit à la formation de bandes accolées

à ces dernières.

Etude en fonction de la température de recuit

Il nous reste maintenant à apprendre à faire évoluer de façon contrôlée la forme des îlots précédemment créés. L'idée la plus intuitive consiste à recuire l'échantillon et à étudier les modifications de forme et de taille que subissent les îlots grâce au mûrissement d'Ostwald. L'augmentation de la température active des processus de diffusion en bord d'îlot (responsable du changement de forme) et d'évaporation d'atomes de l'îlot (responsable du changement de taille). Pour ce faire, nous avons déposé 0.35 ML à 130K puis réalisé des images STM sur des paliers de températures croissantes par pas de 10K. Les résultats, pour quelques températures de recuit, sont présentés sur les figures 6.3a-f.

Entre 130K et 180K, nous n'observons pas de changements franchement visibles dans la taille ou la forme des îlots. Par contre, lorsque la température de recuit dépasse ≈ 180 K, nous assistons à une nette évolution de la morphologie des îlots. D'une part, leur surface devient de plus en plus compacte, pour passer d'une géométrie ramifiée à une forme triangulaire ou hexagonale. Les facettes de ses nanostructures sont orientées selon les directions denses de la surface de Pt. Deuxièmement, la taille moyenne des nanostructures augmente, ce qui conduit naturellement à une diminution de la densité des îlots. C'est le phénomène de mûrissement d'Ostwald, dans lequel les plus grandes nanostructures grossissent au détriment des plus petites. On observe toutefois que de minuscules agrégats subsistent encore, vraisemblablement parce que des impuretés, dans le Pt ou à sa surface ou encore des atomes de Co insérés, piègent leurs atomes et empêchent leur évaporation. Cette évolution se poursuit jusqu'à des températures avoisinant les 340K. A partir de cette température un nouveau phénomène survient, transformant tous les îlots en bi-couches.

En résumé, il est possible de former diverses morphologies d'îlots de Co en changeant uniquement la température de recuit. On passe, ainsi, d'îlots mono-couches ramifiés à des îlots mono-couches compacts à des îlots bi-couches compacts.

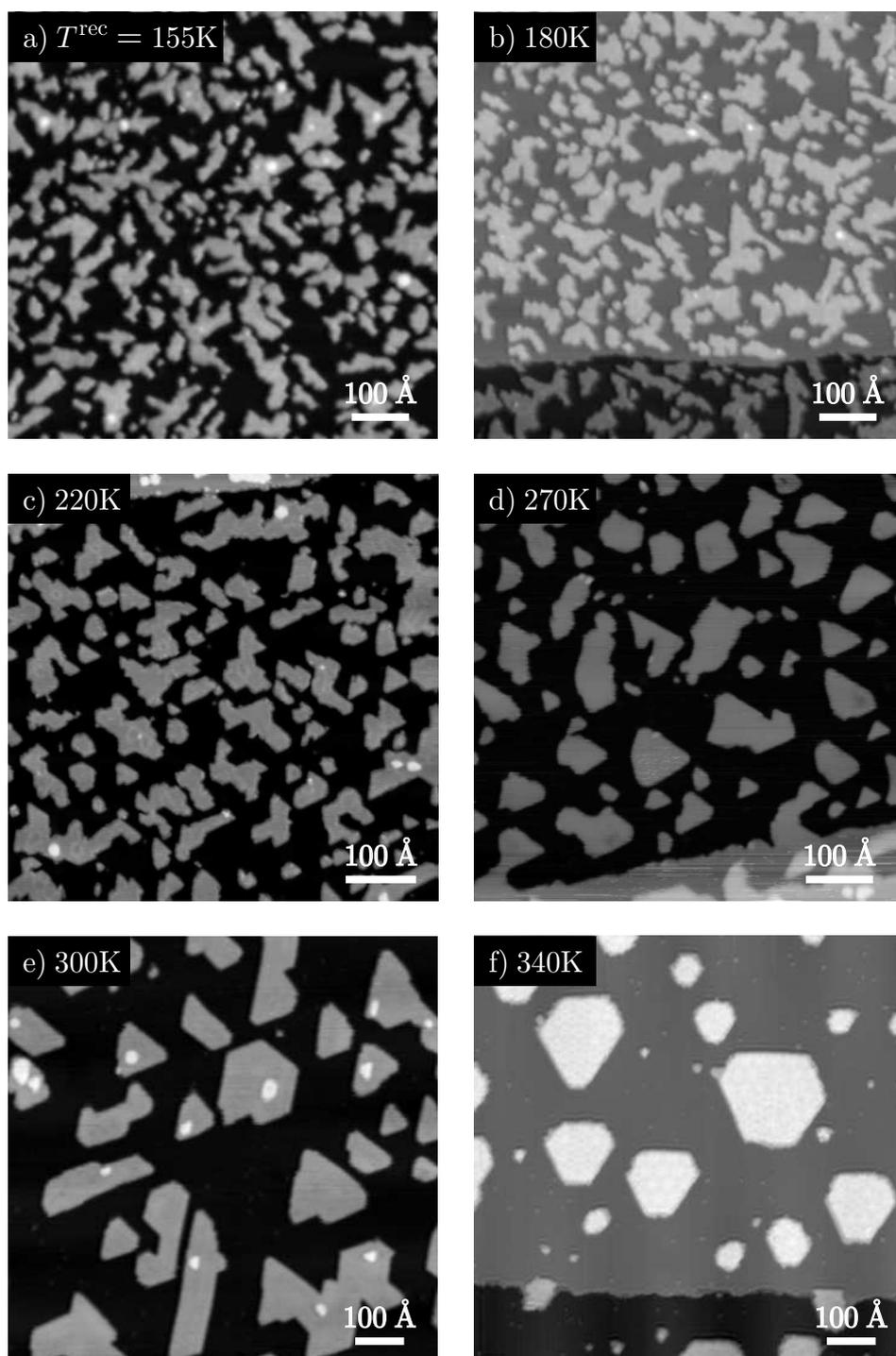


FIG. 6.3: Etude de la morphologie en fonction de la température de recuit T^{rec} des îlots de Co déposés à $T^{\text{dép}} = 130\text{K}$ ($\Theta = 0.35$ ML).

La transition mono à bi-couches lorsque l'on recuit l'échantillon à plus de 340K est intéressante et a pu être mise en évidence sur un film de 0.8ML de Co. Les images STM de ce dépôt pour deux températures de recuit différentes sont présentées sur les Fig. 6.4a-b. Pour $T^{\text{rec}} = 300\text{K}$, le film de Co est monocouche et a percolé toute la surface. Pour $T^{\text{rec}} = 350\text{K}$, le précédent film se décompose en gros îlots bi-couches (on distingue le Moiré hexagonal caractéristique à la surface de ces îlots). Quelques îlots ramifiés mono-couches persistent toutefois, certainement bloqués par des impuretés qui piègent les atomes de Co et empêchent leur diffusion. On peut expliquer qualitativement cette transition par le modèle énergétique présenté sur la Fig. 6.5. A basse température les atomes de Co diffusent sur le Pt et viennent se coller en bord de marche des îlots de Co. Lorsque la température est assez élevée, ils arrivent à vaincre la barrière Schwoebel E_S pour monter sur la couche de Co. Ils y forment alors par agrégation des îlots qui se stabilisent dès que leur taille est assez grande pour former un Moiré hexagonal ce qui permet de significativement réduire l'énergie de ce système par rapport à la mono-couche de Co/Pt.

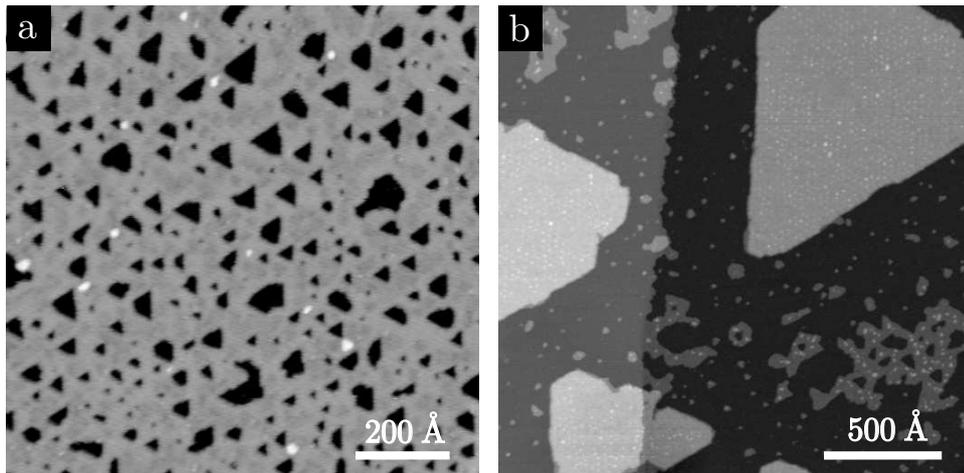


FIG. 6.4: Images STM de 0.8 ML de Co déposé à 50K avec un flux $F = 0.5 \text{ ML/min}$ et recuit à : a) $T^{\text{rec}} = 300\text{K}$ et b) $T^{\text{rec}} = 350\text{K}$. Lorsque la température de recuit est supérieure à 340K, le film d'une monocouche de hauteur qui a percolé la surface se décompose en îlots bi-couches.

Une étude statistique sur toutes les images STM nous permet de tracer la densité d'îlots en fonction de la température de recuit (cf. Fig 6.6). En accord avec les observations qualitatives faites sur les images présentées, on constate que pour des températures de recuit comprises entre 130K et $\approx 180\text{K}$ la densité d'îlots demeure constante car le processus d'évaporation des atomes du bord de l'îlot n'est pas encore activé thermiquement. Ensuite, le Log de la densité d'îlots décroît plus ou moins linéairement avec $1/T^{\text{rec}}$, fait d'une décroissance exponentielle de la densité d'îlots en fonction de T^{rec} ,

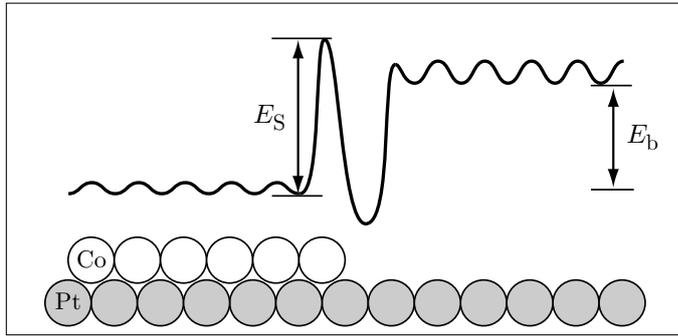


FIG. 6.5: Diagramme d'énergie pour un atome de Co adsorbé. L'énergie E_S correspond à la barrière Schwoebel que l'atome de Co doit surmonter pour descendre de l'îlot. E_B correspond à la différence d'énergie de liaison entre un atome de Co sur Pt(111) et un atome de Co sur un îlot de Co pseudomorphe. Ce modèle permet d'expliquer la transition du film mono-couche aux îlots bi-couches lorsque l'on recuit l'échantillon.

caractéristique du mûrissement d'Ostwald [64, 69].

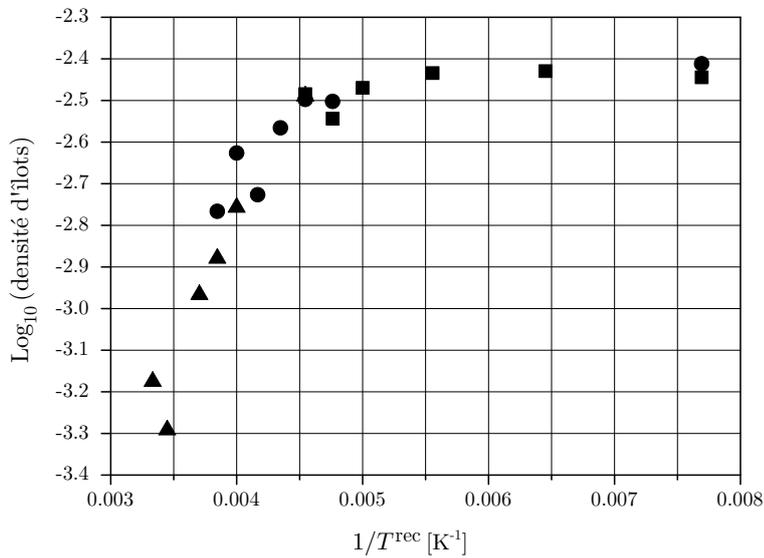


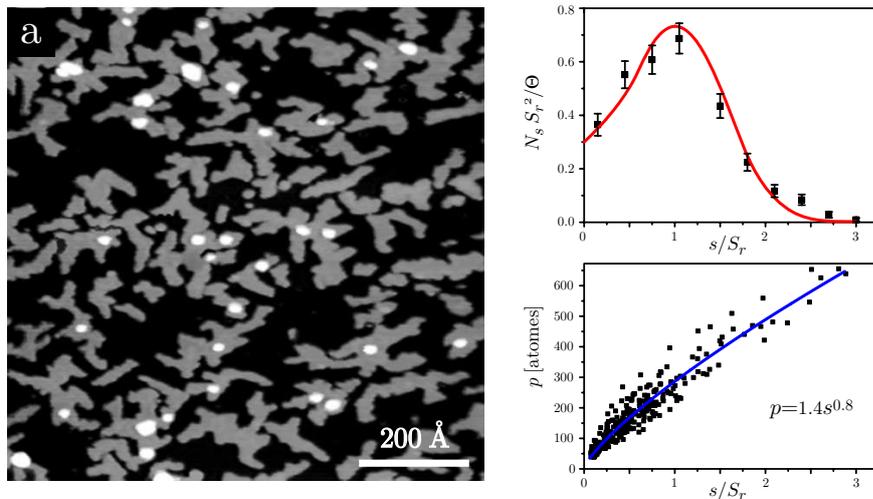
FIG. 6.6: Logarithme de la densité d'îlots en fonction de l'inverse de la température de recuit T^{rec} . La température de dépôt est de 130K et le recouvrement 0.35 ML. Les différents symboles correspondent à différents jours de mesures.

6.2 Propriétés magnétiques en fonction de la forme des îlots de Co sur Pt(111)

Nous venons de voir que nous pouvons créer trois types d'îlots de cobalt : les ramifiés, les compacts mono-couche et les compacts bi-couches, simplement en faisant varier la température du recuit. Dans les paragraphes qui suivent, nous allons présenter les résultats obtenus lors de l'étude des propriétés magnétiques de ces trois types de nanostructures. Nous présenterons aussi les propriétés magnétiques des îlots ramifiés en fonction du recouvrement. Ces deux études permettent de mettre en évidence le rôle prépondérant joué par les atomes du périmètre dans l'anisotropie de l'îlot.

Le fait de pouvoir fabriquer diverses formes d'îlots nous permet d'obtenir plusieurs caractéristiques reliant le périmètre à la surface. En effet, à surface égale, un îlot ramifié a un périmètre beaucoup plus long qu'un îlot compact. D'autre part, la large distribution en taille des nanostructures produites nous permet de sonder, sur un même échantillon, une très large gamme de nanostructures différentes. Les figures 6.7a-c représentent les trois morphologies d'îlots de Co étudiés. La température de dépôt est de 130K. Les îlots ramifiés (Fig. 6.7a) n'ont pas été recuits, les îlots compacts mono-couche (Fig. 6.7b) ont été recuits à 300K et les îlots compacts bi-couches (Fig. 6.7c) à 340K. Le recouvrement Θ est à chaque fois de 0.4 ML. A côté de chaque image STM est présentée la distribution en taille, normalisée telle que l'aire sous la courbe soit égale à 1, ainsi que la distribution du périmètre p en fonction de la surface s des îlots, tous deux exprimés en nombre d'atomes. La grandeur S est la taille moyenne des îlots (exprimée en atomes) et N_s la densité d'îlots de surface s (exprimé en site^{-1}).

La distribution en taille des îlots ramifiés (Fig. 6.7a) est très bien décrite par la distribution théorique obtenue par simulation Monte-Carlo cinétique



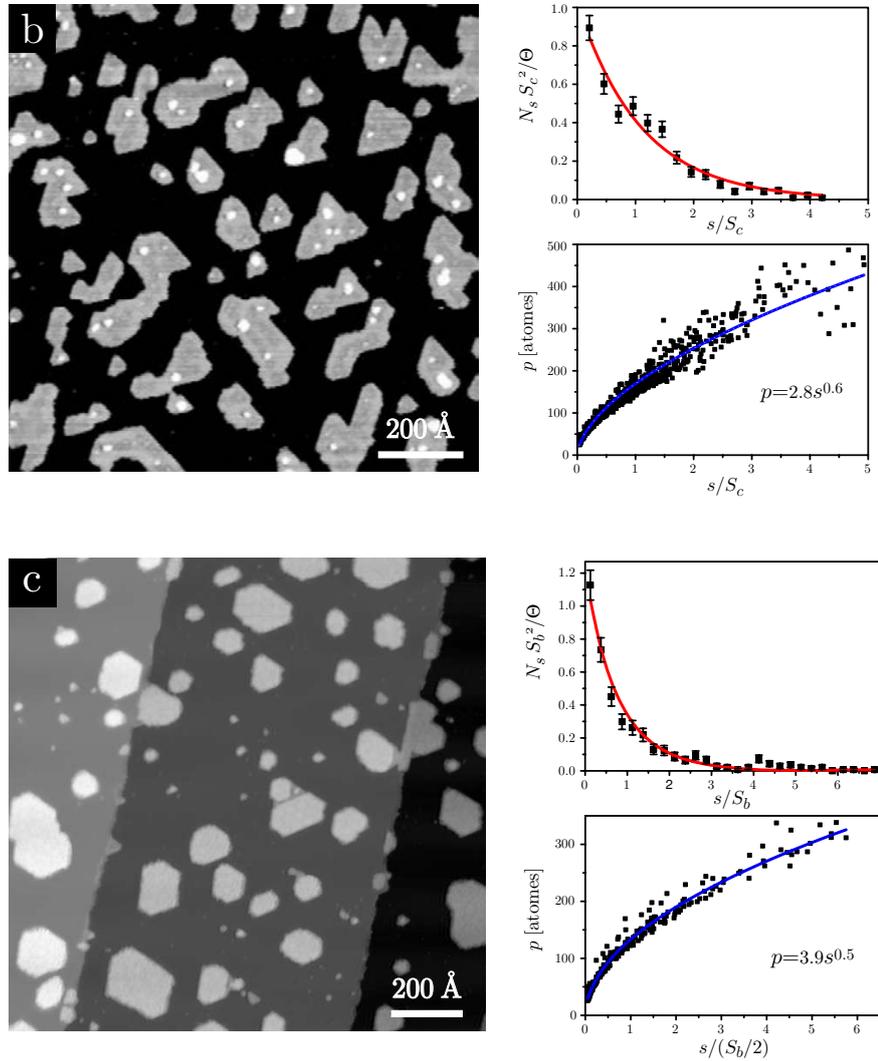


FIG. 6.7: Les trois morphologies d'îlots de Co dont on a étudié les propriétés magnétiques : a) ramifiés, b) compacts mono-couche et c) compacts bi-couches. La distribution en taille normalisée ainsi que la distribution du périmètre p en fonction de la surface s des îlots sont montrées. Le recouvrement est à chaque fois de 0.4 ML.

(KMC) et par la théorie de nucléation prenant en compte l'espace aléatoire des îlots [92] (courbe en cloche asymétrique, non nulle quand $s \rightarrow 0$). En effet, cette fonction modélise la distribution en taille d'îlots 2D, créés par MBE, lors d'un dépôt sub-monocouche. Pour les deux autres types d'îlots, une fonction exponentielle décroissante permet d'ajuster les mesures. Toutefois, pour les calculs des propriétés magnétiques faisant intervenir la taille des îlots, nous avons utilisé les données réelles au lieu des fonctions d'inter-

polution. Les tailles moyennes mesurées pour les trois morphologies sont : $S_r = 1000 \pm 600$ atomes, $S_c = 1200 \pm 1000$ atomes et $S_b = 2000 \pm 2000$ atomes par îlot.

Pour lisser la distribution des périmètres en fonction de la surface, nous choisissons une fonction simple de type $p = \alpha s^\beta$ avec α et β les deux paramètres libres à ajuster. Nous constatons que cette fonction permet, pour les trois morphologies, d'efficacement lisser la distribution $p(s)$. Dans les calculs de $M(H)$ et χ , nous utiliserons les valeurs obtenues à partir de cette courbe plutôt que les valeurs mesurées sur les images STM afin d'obtenir des courbes plus lisses.

i) Détermination du moment magnétique par atome de Co

Avant de passer à l'étude des courbes de susceptibilité $\chi(T)$, il nous reste encore à déterminer le moment magnétique des atomes de Co, m_{Co} . En effet, le moment magnétique de l'atome dépend de paramètres tels que la coordination atomique ou encore l'environnement électronique [85]. Nous ne pouvons donc pas simplement prendre la valeur du moment du matériau massif ($1.7\mu_B$). En général, à cause de l'élargissement des pics dans la densité d'états électronique dû à l'hybridation $d-d$ des niveaux énergétiques atomiques, plus le nombre de voisins atomiques est grand, plus le moment magnétique est petit. Ainsi, un atome de Fe en phase gazeuse est porteur d'un moment $m_{Fe} = 6\mu_B$ ¹ alors que, dans le matériau massif, ce moment chute à $2.2\mu_B$. Dans une situation 2D intermédiaire, le moment magnétique prendra une valeur comprise entre ces deux cas extrêmes. Dans notre cas d'îlots 2D, nous allons faire l'approximation que le moment total à saturation, d'un îlot contenant N atomes, est simplement donné par : $M_{sat}^{1\text{ îlot}} = Nm_{Co}$. Cela revient à dire que nous supposons que tous les atomes de l'îlot ont le même moment. Cette simplification est raisonnable car des simulations [93] ont montré que la différence entre le moment magnétique d'un atome du centre de l'îlot ou de sa périphérie n'excédait pas 20%. Des simulations sur des chaînes d'atomes de Co/Pt(111) présentent aussi des résultats similaires [94]. Pour extraire m_{Co} , il ne resterait plus qu'à fitter les courbes $M(H)$ obtenues par la mesure SMOKE. Cependant, avec notre champ de 500 G, nous ne pouvons saturer les îlots. La courbe $M(H)$ n'atteignant donc pas la saturation, les deux valeurs résultant du fit (M_{sat}^\ominus et m_{Co}) ne sont pas vraiment fiables. Nous avons alors effectué des mesures Kerr sur une monocouche complète car elle peut être saturée avec notre champ. Nous déduisons aisément de ces courbes l'aimantation à saturation M_{sat}^{1ML} de la monocouche. En supposant que le moment magnétique par atome de la monocouche est le même que celui porté par les atomes des îlots, il est possible d'estimer l'aimantation à saturation de notre film de nanostructures

¹Fe : $3d^6 \Rightarrow (S = 2, L = 2) \Rightarrow m = 2S + L = 6\mu_B$.

M_{sat}^{Θ} , en multipliant $M_{\text{sat}}^{\text{1ML}}$ par le recouvrement Θ . Finalement, nous n'avons plus qu'à fitter $M(H)/M_{\text{sat}}^{\Theta}$ qui ne contient plus qu'un seul paramètre libre : m_{Co} . Les mesures Kerr ont été effectuées sur l'échantillon de la Fig. 6.7b à 150K, c'est à dire à une température où tous les îlots ont un comportement superparamagnétique. En tenant compte de la distribution en taille, nous trouvons que le modèle d'Ising permet de très bien fitter les données expérimentales de la fig. 6.8 et nous donne $m_{\text{Co}} = 2.1 \pm 0.2\mu_B$. Cette valeur est en très bon accord avec la valeur attendue en additionnant le moment de spin calculé, $m_S = 1.8\mu_B$ [95], le moment orbital mesuré, $m_L = 0.2\mu_B$ [84] et le moment de polarisation mesuré du Pt, $m_{\text{Pt}} = 0.2\mu_B$ [91]. Lorsque l'on ne connaît pas la distribution en taille, on représente généralement le système réel par un ensemble mono-disperse de particules, ayant toutes la taille moyenne. Cette simplification fournit un résultat généralement erroné. Ici, il donnerait $m_{\text{Co}} = 3.0 \pm 0.2\mu_B$. D'autre part, en utilisant le modèle de Langevin pour fitter les données, nous trouvons la valeur irréaliste $m_{\text{Co}} = 6 \pm 1\mu_B$. Nous avons aussi tracé sur la figure 6.8 la courbe de Langevin pour un moment par atome de $2.1\mu_B$ et nous voyons qu'elle ne décrit absolument pas le comportement réel. Ceci tend encore une fois à démontrer que le modèle de Langevin ne doit être utilisé que pour les hautes températures ($T > 10T_B$).

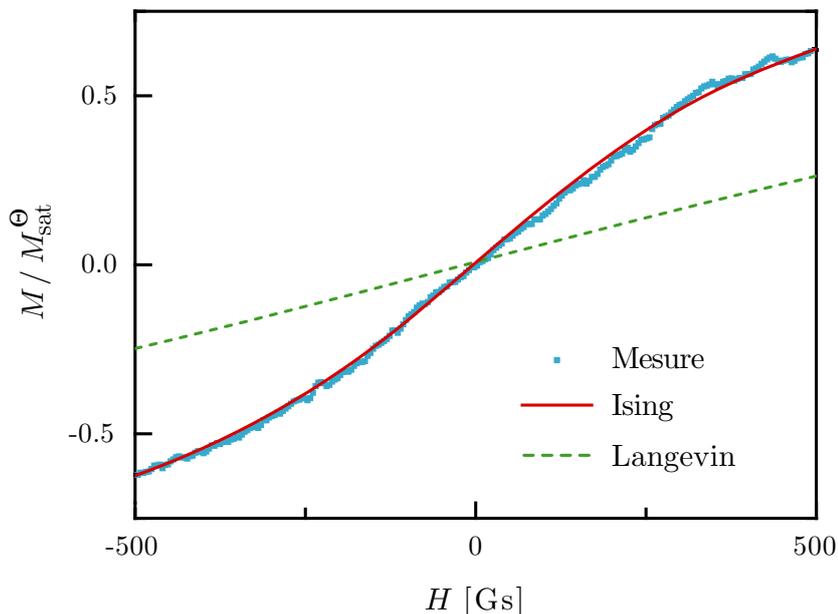


FIG. 6.8: Courbe $M(H)$ mesurée par SMOKE à 150K sur l'échantillon d'îlots compacts de la fig. 6.7b. La courbe donnée par le modèle d'Ising (en rouge) permet de correctement fitter les mesures et donne $m_{\text{Co}} = 2.1 \pm 0.2\mu_B$. La courbe verte pointillée correspond au modèle de Langevin pour cette même valeur de moment magnétique par atome de Co.

ii) Etude des courbes $\chi(T)$

En utilisant la méthode expérimentale SMOKE (cf. § 3.2), nous avons effectué des mesures $M(H)$ en fonction de la température. A partir de ces cycles, nous mesurons leur pente à l'origine, χ' , pour finalement tracer les courbes $\chi'(T)$. Le champ H varie suivant une forme triangulaire à la fréquence de 0.1 Hz. Bien évidemment, pour ne pas modifier la morphologie des îlots en cours d'expérience, la température de l'échantillon ne dépassait jamais la température maximale qu'il avait subie pour fabriquer les nanostructures, à savoir la température de recuit. La température minimale que nous pouvions atteindre avec l'hélium liquide est de $\approx 50\text{K}$. Les fig. 6.10a-c rapportent les valeurs expérimentales $\chi'(T)$ pour les trois morphologies d'îlots.

Ces trois courbes présentent la même allure, à savoir un pic arrondi suivi d'une décroissance asymptotique. Pour les îlots ramifiés et compacts, le maximum du pic est à environ 90K. Pour les bi-couches, il est à 260K. Comme nous l'avons expliqué au § 5.3.3, chacune de ces courbes est la somme du signal magnétique fourni par chacun des îlots. Étant donné que les distributions en taille ne sont pas mono-disperses, il n'est pas possible de tirer des informations quantitatives directement à partir de paramètres mesurés sur ces courbes (comme la position du pic ou sa largeur). Pour obtenir les valeurs des températures de blocage ou des énergies d'anisotropie de ces îlots, il est nécessaire de tenir compte de la distribution en taille exacte, et ne pas se contenter de valeurs moyennes. Par exemple, sur la fig. 6.10c, on constate la présence de plusieurs petites bosses. Or, si l'on regarde la distribution en taille de la fig. 6.7, on s'aperçoit que des bosses sont présentes vers les tailles normalisées 2.6 et 4.2. Bien que minoritaires d'un point de vue de la statistique en taille, ces îlots-ci produisent un signal magnétique non négligeable. Rappelons, en effet, que l'amplitude de χ' est proportionnel à M^2 et donc qu'un îlot de taille normalisée 4.2 fournit un signal 17 fois plus grand qu'un îlot de taille 1 (pour une température donnée où les deux sont dans le régime superparamagnétique).

A partir des données expérimentales de χ' et pour mettre en évidence la différence entre les atomes du bord de l'îlot et ceux de surface dans l'expression de l'anisotropie totale, nous avons confronté les trois modèles suivants :

1. Dans le premier modèle, on suppose que tous les atomes de l'îlot ont la même énergie d'anisotropie E_a^s . L'anisotropie d'un îlot contenant N_s vaut donc $K_1 = N_s E_a^s$. D'après la définition adoptée pour s (cf. page 75), nous avons que $N_s = s$ pour les îlots ramifiés et mono-couche et $N_s = 2s$ pour les bi-couches. Dans ce dernier cas, E_a^s est la moyenne entre l'anisotropie des atomes de l'interface Co/Pt et celle de l'interface

Co/vide.

2. Dans le second modèle, on suppose que seuls les atomes du périmètre ont une énergie d'anisotropie E_a^p , l'énergie d'anisotropie de tous les autres atomes étant nulle. L'énergie d'anisotropie d'un îlot contenant N_p sur le bord vaut $K_2 = N_p E_a^p$. D'après notre définition, $N_p = p$ pour les îlots ramifiés et mono-couche et $N_p = 2p$ pour les bi-couches.
3. Dans le troisième cas, on suppose que tous les atomes ont une énergie E_a^s et que les atomes du périmètre ont, en plus, une énergie E_a^p . L'énergie d'anisotropie totale vaut ainsi $K_3 = N_p E_a^p + N_s E_a^s$.

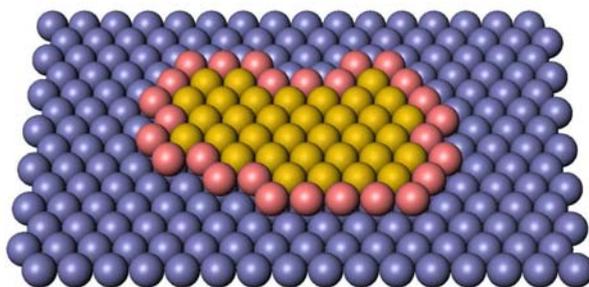


FIG. 6.9: Représentation d'un îlot de Co avec ses atomes du périmètre (bord) en rouge et ses atomes de surface (centre) en jaune, déposé sur une surface fcc(111) (atomes bleus).

A partir des distributions en tailles et périmètres obtenues avec le STM (cf. fig. 6.7), nous pouvons fitter les points expérimentaux en utilisant la formule de $\chi'(T)$ obtenue à partir des équations 5.14 et 5.10. Les seuls paramètres libres étant les énergies d'anisotropie par atome E_a^s ou E_a^p ou les deux, suivant le modèle considéré. Les résultats sont présentés sur les fig. 6.10a-d. Nous voulons mettre en évidence que l'expression de $\chi'(T)$ est dominée par des termes contenant le rapport K/T . Ainsi, une variation de E_a aura uniquement pour effet de dilater ou de compresser la courbe selon l'axe des températures, tout en gardant son origine fixe. Par conséquent, ce sont véritablement les distributions en tailles et périmètres, propres à chaque film de nanostructures, qui produisent les détails dans la forme de la courbe, les énergies E_a ne modifiant que la position de son pic.

Pour les trois morphologies d'îlots étudiées, on s'aperçoit que le premier modèle (courbe verte pointillée-court), où l'on suppose que tous les atomes de l'îlot ont la même énergie, est le plus mauvais des trois. La courbe $\chi'(T)$ est, en effet, à chaque fois, beaucoup trop large aux alentours du pic principal. A titre purement indicatif, la valeur E_a^s , déduite du fit pour les îlots compacts mono-couche, vaut $E_a^s = 0.047 \pm 0.005$ meV par atome. Cette valeur est du même ordre de grandeur que celle des atomes du Co massif dans

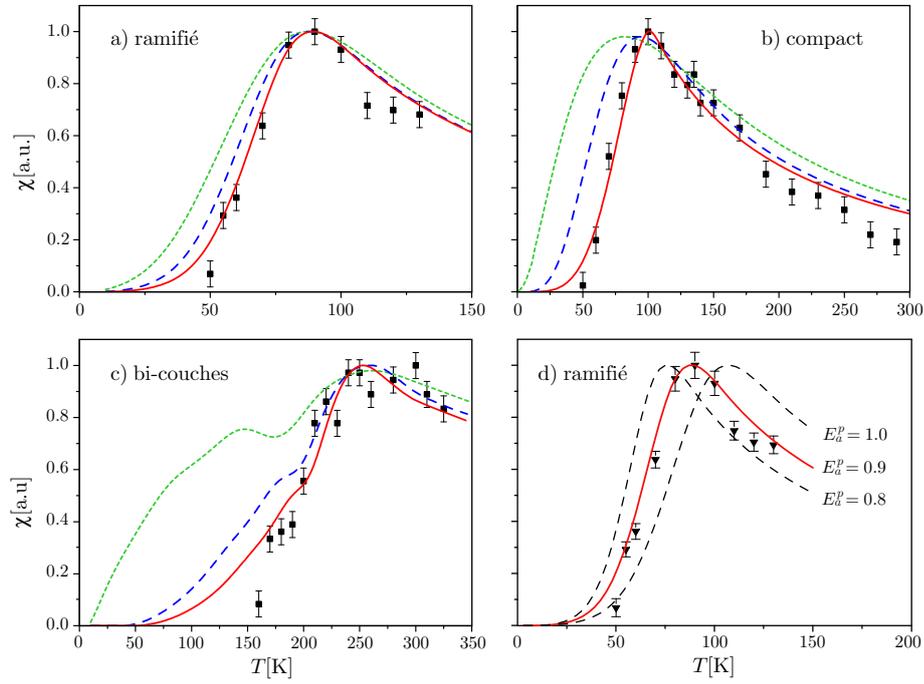


FIG. 6.10: Courbes de susceptibilité $\chi'(T)$ en fonction de la température pour les trois morphologie d'îlots : a) ramifiés, b) compacts mono-couche et c) compacts bi-couches. Les trois courbes correspondent aux meilleurs fits obtenus pour chacun des trois modèles testés (pointillé court vert : modèle 1, pointillé long bleu : modèle 2 et courbe continue rouge : modèle 3). d) îlots ramifiés avec le meilleur fit et deux autres valeurs d'anisotropie, montrant bien la justesse des fits compatibles avec les barres d'erreur.

la configuration hcp[96].

Le deuxième modèle (courbe bleue pointillée-long), qui ne considère que les atomes du périmètre, est déjà nettement meilleur que le premier car la courbe est plus proche des données expérimentales. Le fit nous donne $E_a^p = 0.9 \pm 0.1$ meV (E_a^s étant fixé à 0) pour les îlots compacts mono-couche.

La meilleure description de nos données est faite par le troisième modèle (courbe continue rouge), lorsque l'on tient compte des atomes du bord et de surface de l'îlot en leur attribuant des anisotropies différentes. Les courbes permettent, en effet, de très bien reproduire les valeurs expérimentales. Seule un petit écart apparaît à basse et à haute température. Le fait que les mesures se trouvent en dessous de la courbe à haute température peut être dû au fait que nous approchons de la température de Curie et donc que la valeur du macrospin de l'îlot diminue. A basse température, au niveau du talon de la courbe $\chi'(T)$, les mesures sont aussi en dessous de la courbe. A cette température, la contribution dans le signal magnétique ne provient plus que

des plus petits îlots (qui ont la température de blocage la plus faible) car tous les autres sont déjà bloqués. Or, les plus petits îlots sont aussi plus sensibles à la pollution (de l'oxygène par exemple), ce qui peut induire une modification de leur moment magnétique et leur anisotropie [97].

La figure 6.10d est donnée pour montrer la relation qui relie les énergies d'anisotropie à la forme de la courbe. En fixant deux valeurs de E_a^p (0.8 meV et 1.0 meV) proches de la valeur optimale du fit (0.9 meV), les courbes obtenues, en ayant comme paramètre libre uniquement E_a^s (respectivement -0.06 meV et -0.12 meV), ne décrivent plus convenablement des données expérimentales.

Les énergies d'anisotropie par atome, obtenues des fits pour les trois géométries, sont :

- îlots ramifiés : $E_a^p = 0.9 \pm 0.1$ meV, $E_a^s = -0.09 \pm 0.03$ meV
- îlots compacts : $E_a^p = 0.9 \pm 0.1$ meV, $E_a^s = -0.03 \pm 0.03$ meV
- îlots bi-couches : $E_a^p = 1.05 \pm 0.1$ meV, $E_a^s = -0.015 \pm 0.03$ meV

Ainsi, nous observons que l'anisotropie de surface E_a^s est à chaque fois négative, ce qui implique que ce terme de surface favorise une aimantation dans-le-plan plutôt que hors-plan. C'est grâce à la grande contribution positive des atomes de la périphérie que l'anisotropie totale de l'îlot reste supérieure à 0 et donc que l'aimantation est au final hors-plan. La valeur de l'anisotropie des atomes du bord s'avère être la même, pour les trois géométries. Cette valeur, proche de 1 meV est très supérieure à l'anisotropie du Co massif dans la phase hcp, $E_a^{\text{hcp}} \approx 0.05$ meV/atome [96, 98].

Dans un modèle rudimentaire, l'énergie d'anisotropie par atome de surface E_a^s peut être décomposée en la somme d'un terme d'énergie d'anisotropie de forme E_{forme} (due au champ démagnétisant H^d) et un terme d'énergie d'anisotropie magnétocristalline E_{mc} (due aux interfaces Co/Pt et Co/vide) :

$$E_a^s = E_{\text{forme}} + E_{\text{mc}} \quad (6.1)$$

Nos îlots étant extrêmement plats, le coefficient de champ démagnétisant λ est très proche de l'unité. Le champ démagnétisant (par unité de volume) d'un îlot de N atomes et de moment (par unité de volume) M vaut donc : $H^d \doteq -\lambda M \approx -M = -Nm_{\text{Co}}/(NV_{\text{at}})$, avec V_{at} le volume d'un atome de Co. L'énergie d'anisotropie de forme, par atome de Co, s'exprime finalement comme :

$$E_{\text{forme}} \doteq \frac{1}{2}\mu_0 H^d M V_{\text{at}} = -\frac{1}{2}\mu_0 \frac{m_{\text{Co}}^2}{V_{\text{at}}} = -0.13 \text{ meV}$$

où l'on a pris la valeur de $m_{\text{Co}} = 2.1\mu_B$, calculée plus haut pour nos îlots 2D. De l'équ. 6.1, on déduit la valeur de l'énergie d'anisotropie magnétocristalline par atome de Co, $E_{\text{mc}} = 0.1$ meV pour les îlots compacts mono-couche.

Comme nous l'avons dit, cette anisotropie, positive, est surpassée par l'anisotropie de forme, négative. La forme extra-plate de nos îlots 2D ne favorise pas, en effet, une aimantation hors-plan. Pour que l'anisotropie de forme devienne positive, il faudrait, par exemple, être capable de fabriquer des piliers de Co de plusieurs nanomètres de hauteur [78]. Cette géométrie permettrait, au final, d'accroître efficacement l'anisotropie totale de la nanostructure et donc sa température de blocage, sans pour autant diminuer la densité de nanostructures.

En conclusion, nous avons mis en évidence les contributions des atomes du bord et de surface de l'îlot. Les atomes de surface de l'îlot favorisent plutôt une aimantation dans-le-plan ($E_a^s < 0$). En effet, la forme extra-plate de nos nanostructures entraîne un champ démagnétisant très élevé que n'arrive pas à contrebalancer l'anisotropie positive liée aux interfaces Co/Pt et Co/vide. Toutefois, l'aimantation des îlots demeure hors-plan ($K > 0$) grâce à la grande contribution positive des atomes de la périphérie ($E_a^p \sim 10 - 100|E_a^s|$). Cet effet remarquable peut être attribué à leur plus faible coordination ou à une modification des distances inter-atomiques engendrée par la relaxation des contraintes en bord d'îlot.

6.3 Propriétés magnétiques d'anneaux de Co

Comme nous venons de le voir, les atomes du centre de l'îlot ont une anisotropie qui favorise une aimantation dans-le-plan. Cette anisotropie négative va à l'encontre de ce que l'on désire créer, à savoir des nanostructures avec une aimantation hors-plan et une anisotropie totale, positive, aussi élevée que possible. La source d'anisotropie positive se trouvant dans les atomes du périmètre de l'îlot, nous avons cherché à créer des îlots de Co creux. Ils présentent l'avantage de ne contenir majoritairement que les atomes avec une énergie d'anisotropie positive. Cette recherche de nouvelles formes d'îlots permettra néanmoins de vérifier une nouvelle fois la validité de notre modèle ainsi que de démontrer la faisabilité technique de création de nanostructures annulaires.

6.3.1 Fabrication des anneaux de Co

Plutôt que de créer des îlots de Co véritablement creux, il est plus aisé de fabriquer, au préalable, un îlot constitué d'atomes non-magnétiques et ensuite de le décorer avec plusieurs couronnes de Co. Comme matériau non-magnétique, pour le cœur, nous avons choisi le Pt, étant donné que le substrat est lui aussi du Pt(111). Nous évitons ainsi les problèmes de croissance dues à un désaccord de paramètre de maille ou d'insertion. En vue de pouvoir comparer les propriétés magnétiques de ces îlots creux avec les îlots compacts, précédemment étudiés, il est nécessaire d'obtenir une densité

ainsi qu'une surface de recouvrement d'îlot équivalente. Les îlots compacts présentés sur la fig. 6.7b ont une densité de $\sim 2.2 \cdot 10^{12}$ îlots/in² et un recouvrement de 0.4 ML. La source de Pt est une source "maison" : un filament, constitué de plusieurs fils torsadés de Pt ultra-pur de \varnothing 0.25 mm, est traversé par un certain courant. Le filament est ainsi chauffé par effet Joule jusqu'à une température permettant d'évaporer le Pt avec un flux de 1 ML/min. La température de dépôt du Pt ainsi que celle du recuit sont les deux paramètres clés pour atteindre la densité d'îlots escomptée. En se basant sur les travaux de S. Esch *et al.* [99], la température de dépôt a été estimée à 170K. Après avoir trouvé les bons paramètres de dépôt du Pt pour réaliser les îlots avec la bonne densité, il reste encore à trouver ceux qui permettront au Co de former des anneaux autour de ces îlots. La formation d'îlots de Co pur entre les îlots de Pt ou sur leur face supérieure ainsi que l'insertion de Co dans le Pt sont des situations qu'il faudra éviter.

Les figures 6.11a-d résument nos efforts de recherche en présentant les diverses étapes dans l'obtention de nos anneaux de Co. Noter que ces images STM n'ont pas été effectuées le même jour. Elles ne révèlent, ainsi, pas exactement le processus suivi pour réaliser les îlots annulaires, mais donnent plutôt la démarche de leur fabrication.

La figure 6.11a représente un dépôt de Pt effectué à $T^{\text{dép}}=170\text{K}$ avec un recouvrement de $\Theta \sim 40\%$. Les îlots de Pt sont très ramifiés car à cette température la mobilité des atomes sur la périphérie de l'îlot est très faible. La densité d'îlots est de $\sim 15 \cdot 10^{12}$ îlots/in². La figure 6.11b représente un dépôt de Pt ($T^{\text{dép}}=170\text{K}$, $\Theta \sim 25\%$) après recuit à $T^{\text{rec}}=770\text{K}$. Le recuit à haute température permet de former des îlots compacts mono-couche de forme hexagonale. Le mûrissement permet de faire chuter la densité à $2.2 \cdot 10^{12}$ îlots/in², valeur identique aux îlots compacts de Co pur. En déposant 0.15 ML de Co à $T^{\text{dép}}=220\text{K}$ nous formons quelques couronnes de Co entourant les îlots de Pt (fig. 6.11c). Sur les images STM, la différence de hauteur entre le Co et le Pt est d'environ 0.3 Å, ce qui est largement suffisant pour distinguer les deux espèces chimiques. On remarque que ce dépôt de Co a fait coalescer quelques îlots de Pt un peu trop proches. On remarque aussi, sur certains grands îlots de Pt, la formation d'un îlot triangulaire de Co. Ces deux constatations demeurent toutefois occasionnelles. Par exemple, la figure 6.11d présente le résultat "négatif" d'une expérience pour un dépôt de Co à $T^{\text{dép}}=250\text{K}$. Le Pt a été déposé à 240K et recuit à 790K, ce qui conduit à former des îlots de Pt, en moyenne, plus grands que ceux présentés sur l'image 6.11c. Sur un des îlots, on remarque une double ligne. Comme nous l'avons déjà expliqué auparavant, cette dislocation partielle est le signe que des atomes de Co se sont insérés dans la surface de Pt, et ce, en raison de la température de dépôt du Co trop élevée. La conséquence de la plus grande taille des îlots de Pt et de l'insertion des atomes de Co est de conduire à la formation d'un îlot de Co sur quasiment chaque îlot de Pt, situation non désirable si l'on s'intéresse aux propriétés magnétiques

des anneaux.

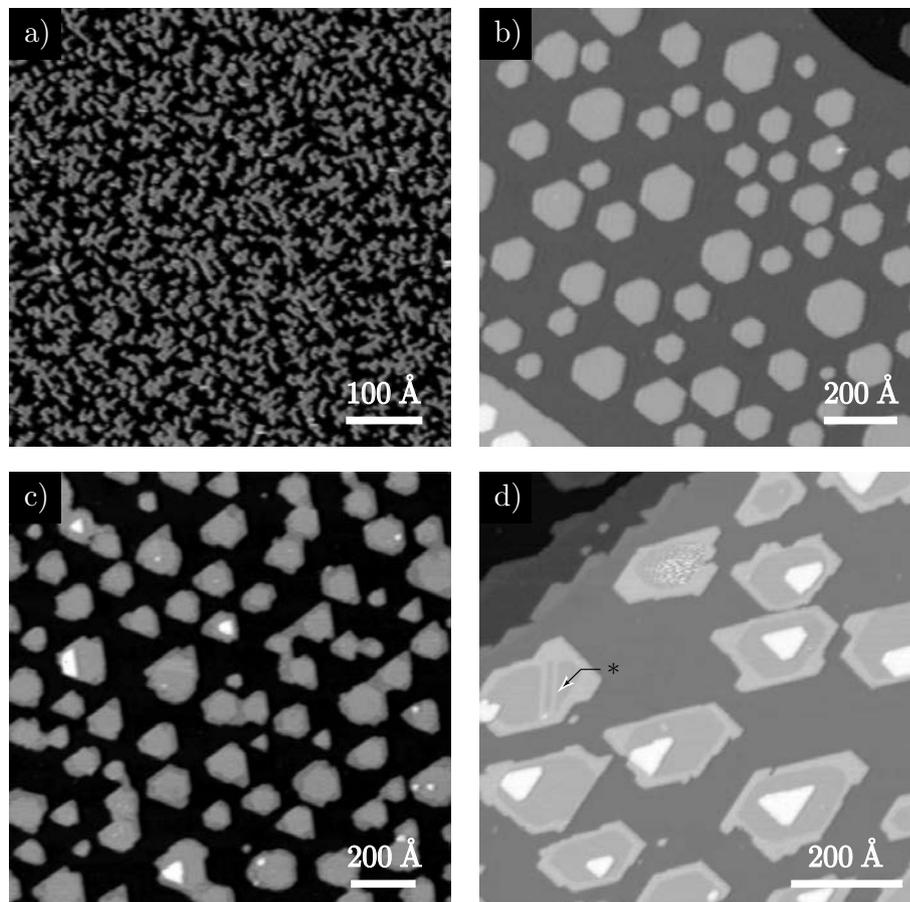


FIG. 6.11: Étapes pour la fabrication d'anneaux de Co (autour d'un cœur de Pt) : a) Dépôt du Pt à basse température (170K), b) Recuit à 770K pour obtenir des îlots compacts, c) Dépôt du Co pour créer la couronne autour de l'îlot de Pt, d) Exemple d'un dépôt présentant des doubles couches de Co et de l'insertion du Co dans le Pt (*) en raison de la température de dépôt du Co trop élevée ($T^{\text{dép}}=250\text{K}$). Rem. : on constate que d'une image à l'autre le Co paraît tantôt plus haut tantôt plus bas que le Pt. Cet effet est dû à un changement de l'état électronique de la pointe du STM.

6.3.2 Propriétés magnétiques d'anneaux de Co

Les mesures de susceptibilité en fonction de la température ont été faites avec le SMOKE. La courbe $\chi'(T)$ ainsi qu'une vue 3D de l'image STM de l'échantillon sont présentées sur la fig. 6.12. Le cœur de Pt a été formé en déposant 0.2 ML à 170K suivi d'un recuit à 770K. Ensuite, 0.2 ML de Co a été déposé à 220K. Ce recouvrement de Co permet de former des anneaux

de 2-3 lignes atomiques de large. Malgré la faible dimensionnalité de cette bordure, sa largeur est suffisante pour garantir un ordre ferromagnétique dans l'anneau de Co. En effet, une chaîne 1D mono-atomique de Co décorant une marche de Pt ne serait ferromagnétique qu'en dessous de 15K [100].

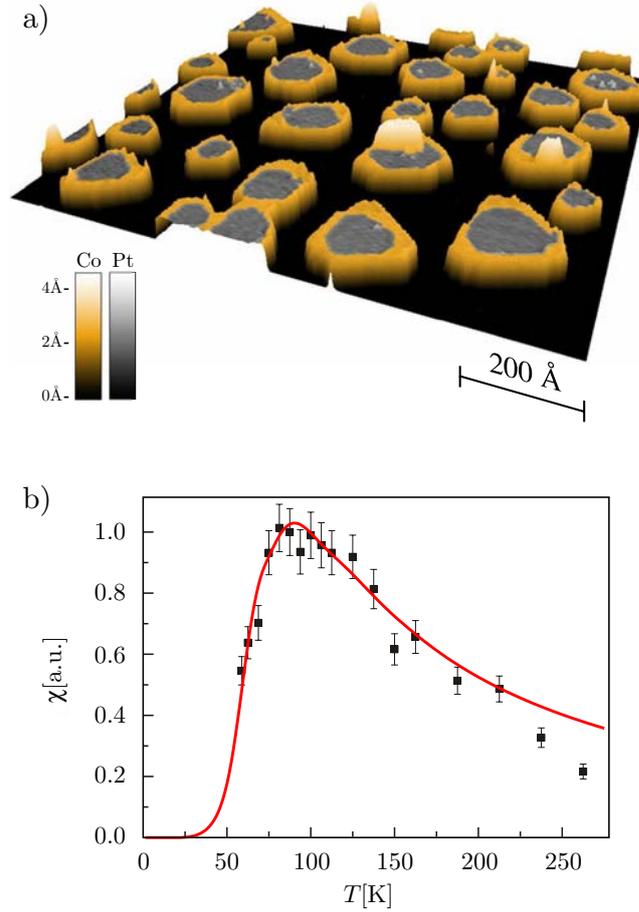


FIG. 6.12: a) Vue 3D d'une image STM des anneaux de Co (2-3 atomes de large) décorant des îlots quasi hexagonaux, non-magnétiques, de Pt. b) Mesures expérimentales de $\chi'(T)$ (carrés) et courbe de fit en tenant compte du périmètre et de la surface de l'îlot de Co. Les énergies d'anisotropie déduites du fit sont identiques à celles trouvées pour les îlots compacts de Co pur.

Nous voyons que les données $\chi'(T)$ sont très bien reproduites par la courbe de notre modèle, calculée en tenant compte du périmètre et de la surface. Le fit nous donne des énergies d'anisotropie par atome de Co identiques à celles obtenues pour les îlots de Co pur, à savoir : $E_a^p = 0.9$ meV et $E_a^s = -0.03$ meV.

Ainsi, l'intérêt de ces îlots de Co creux est d'avoir pratiquement la même énergie d'anisotropie que les îlots pleins. Toutefois, l'amplitude de leur ma-

crospin est très différente (ici, réduite d'un facteur 2) car ils ne contiennent pas le même nombre d'atomes de Co. De ce fait, il est possible de faire varier indépendamment le moment magnétique de l'îlot et son énergie d'anisotropie, simplement en jouant sur son nombre d'atomes magnétiques et sur la longueur de son périmètre. Diminuer le moment magnétique, tout en conservant l'anisotropie de la nanostructure, peut s'avérer fort utile dans les applications de stockage magnétique de données, où l'interaction dipolaire doit formellement être évitée. En diminuant le moment magnétique de la nanostructure, on diminue aussi le champ dipolaire et donc les interactions entre macrospins.

Interaction entre les îlots

Les îlots que nous avons fabriqués (pleins ou creux) ont une densité voisine de $2 \cdot 10^{12}$ îlots/in². Malgré cette très forte densité, les macrospins portés par chacun des îlots n'interagissent que faiblement entre eux. En effet, d'une part, le fait que le pic de nos courbes $\chi'(T)$ soit bien décrit par le modèle du superparamagnétisme constitue un argument. S'il y avait de l'interaction les courbes seraient beaucoup plus plates [101]. D'autre part, nous pouvons estimer le champ créé par tous les autres îlots sur un îlot à $H_{\text{dip.}} = 100$ Oe (équ. 4, réf. [102]) et le comparer au champ d'anisotropie (*i.e.* le champ coercitif à température nulle) d'un îlot : $H_{\text{an}} = 2K/M = 2 \cdot 10^4$ Oe. Cette grande différence entre $H_{\text{dip.}}$ et H_{an} est un autre argument favorable à l'idée de non-interaction entre îlots.

Chapitre 7

Etude du système Co/Au(788)

En vue de concevoir des applications technologiques (telles les disques durs, par exemple) exploitant les avantages des nanostructures magnétiques, il est indispensable de concevoir des nanostructures répondant à de sérieuses exigences. Le premier défi est de réussir à fabriquer un très grand nombre de nanostructures, avec une densité supérieure à 10^{12} bits/in², partageant les mêmes propriétés magnétiques. Cette condition est satisfaite si les nanostructures possèdent toutes le même axe d'aimantation facile et que la distribution des énergies d'anisotropie est la plus piquée possible. Le deuxième défi est de réussir à ordonner de manière périodique ces nanostructures sur de grandes distances. Pour le moment, une technique prometteuse permettant de concilier ces exigences fait appel à des méthodes de fabrication par auto-assemblage de nanostructures. En effet, les progrès récents dans la recherche ont permis de créer des réseaux périodiques, auto-assemblés de nanoparticules sur des distances macroscopiques. Dans ces techniques de fabrications dites "bottom-up", deux voies sont couramment employées. La première fait appel à la synthèse chimique de colloïdes de dimensions nanométriques. Après avoir déposé la solution contenant les colloïdes sur un substrat, la présence de longues molécules filiformes à leur surface permet d'assurer une distance constante entre-eux et de former un réseau périodique [103]. En outre, la technique de fabrication de ces colloïdes permet d'obtenir une excellente mono-dispersité en taille [104]. Cependant, l'anisotropie dépend très fortement de la structure cristallographique des facettes ainsi que de l'élongation des nanoparticules quasi sphériques [86]. Par conséquent, la mono-dispersité en taille des colloïdes ne se traduit pas par une mono-dispersité des énergies d'anisotropie [105, 106]. De plus, avec la synthèse chimique, on ne sait toujours pas contrôler l'orientation des nanoparticules, la distribution des axes d'anisotropie étant alors complètement isotrope [106, 107]. La deuxième voie pour l'auto-assemblage utilise la croissance épitaxiale sous

UHV. En utilisant les motifs créés par les dislocations ou reconstructions présentes sur des surfaces cristallines, il est possible de faire croître des nanostructures suivant un réseau bien précis [78, 108–114]. De plus, comme nous l’avons déjà vu au chapitre 6, l’interaction entre ces nanostructures 2D et le substrat impose un unique axe d’anisotropie hors-plan [110, 112, 115]. Cependant, pour autant que nous sachions, aucune expérience n’a été faite pour déterminer la distribution des énergies d’anisotropie pour de tels réseaux de nanoparticules.

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats obtenus sur les réseaux ultra-denses d’îlots de Co, auto-assemblés sur une surface Au(788). Nous avons mis en évidence la corrélation qui existe entre la morphologie des plots de Co et leurs propriétés magnétiques. Nous avons aussi pu démontrer que ce système possède une distribution d’énergies d’anisotropie très étroite avec une largeur à mi-hauteur de 35%. Enfin, les données révèlent l’absence d’interaction magnétique entre îlots pour une densité de $26 \cdot 10^{12}$ îlots/in².

7.1 Croissance Co/Au(788)

Étant donné que la surface vicinale Au(788) possède des terrasses de type (111) et qu’elle présente d’autres similitudes avec la surface Au(111), nous allons commencer par décrire la croissance de nanostructures sur la surface Au(111).

7.1.1 Croissance Co/Au(111)

Le substrat Au(111) a déjà été utilisé par plusieurs groupes pour étudier la formation de nanostructures magnétiques auto-assemblées de Co [108], Ni [116] ou Fe [117] ou encore métalliques Rh [118] ou Pd [119]. La surface d’Au(111) présente, en effet, une reconstruction $22 \times \sqrt{3}$ caractéristique fort intéressante [120]. La différence de coordination entre les atomes de surface et ceux du volume entraîne, pour cette surface-ci, une contrainte importante qui est relaxée localement par une compression uniaxiale selon $[1\bar{1}0]$. La densité d’atomes de surface est 4% plus élevée que celle des atomes du volume. Ainsi, 23 atomes de surface sont disposés sur 22 atomes d’un plan du volume. Les lignes de reconstruction, visibles sur les images STM (cf. fig. 7.1), séparent des zones de type fcc de zones hcp. Ces lignes blanches correspondent aux atomes sur des sites de pont, surélevés de ~ 0.3 Å par rapport aux autres atomes, induits par la transition de sites fcc vers hcp et vice-versa. Les sites fcc sont énergétiquement plus favorables, ce qui se traduit par des zones fcc plus larges que les zones hcp. A cause de la symétrie de cette surface, les chevrons peuvent prendre trois directions équivalentes (séparées de 120°), parallèles aux directions denses de la surface. Sur de plus grandes images,

on observe ainsi plusieurs domaines désorientés de 120° les uns par rapport aux autres donnant lieu à un motif de chevrons.

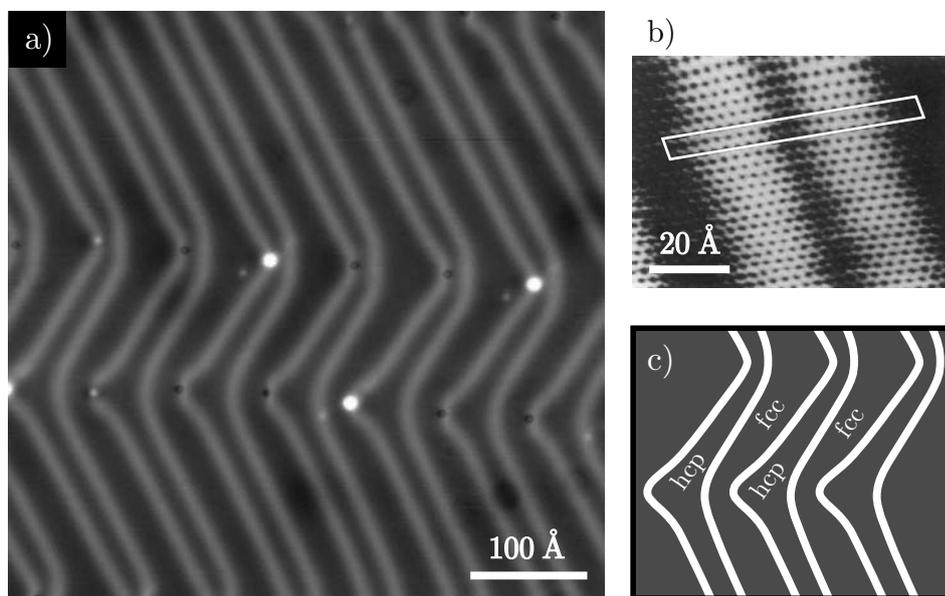


FIG. 7.1: a) Image STM de la reconstruction $22 \times \sqrt{3}$ de la surface Au(111). Les lignes blanches correspondent aux atomes hors-site légèrement surélevés (de $\sim 0.3\text{\AA}$) par rapport aux autres atomes. Elles séparent périodiquement des zones de types fcc de zones hcp (images c). Les points noirs ou blancs sont attribués à des impuretés venues se coller au niveau du coude. b) Résolution atomique de la reconstruction avec la maille élémentaire schématisée par le rectangle blanc. [Image STM a : L. Bürgi *et al.*, image b : J. V. Barth *et al.*]

La configuration de l'empilement atomique au niveau d'un coude extérieur d'un chevron donne lieu à un atome d'or possédant seulement cinq voisins [121]. Ce site est caractérisé par une barrière d'insertion pour le Co inférieure à celle des autres sites. Ainsi, au tout début de la croissance, quelques atomes de Co vont s'insérer au niveau de ce coude. Ce noyau de Co agit, par la suite, comme un centre de nucléation où viennent s'attacher les autres atomes de Co déposés. L'explication de ce phénomène fût donnée par J. A. Meyer dans son article [121] pour du Ni/Au(111) et demeure valable pour le Co. Ainsi, pour une température de dépôt adéquate (typiquement 120K-300K), des îlots vont croître sur les coudes de la reconstruction et former un réseau ayant la période du motif chevron de la reconstruction [122]. D'autre part, on constate que les îlots formés sont double couche. Malheureusement, ce réseau ne peut s'étendre sur plus de quelques centaines de nanomètres, taille moyenne des trois domaines possibles pour l'orientation des chevrons. De surcroît, la présence des marches est susceptible de briser la cohérence de la reconstruction [123] et donc du réseau (cf. fig. 7.2).

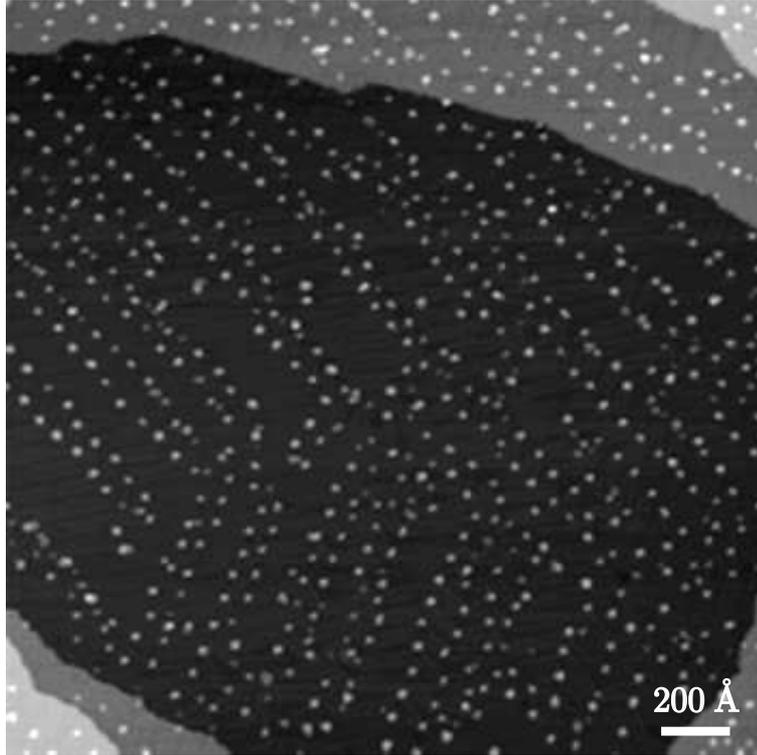


FIG. 7.2: Image STM de nano-îlots de Co sur la surface Au(111). La coexistence de trois orientations différentes des chevrons ainsi que la présence de marches détruisent la périodicité du réseau sur des distances macroscopiques. La surface Au(111) ne convient donc pas pour créer un réseau de nanostructures auto-assemblées sur des distances macroscopiques. [Image STM : V. Repain *et al.*]

Pour obtenir un réseau périodique sur des distances macroscopiques, il est possible d'utiliser une surface vicinale Au(788) [124].

7.1.2 Surface Au(788)

La surface Au(788) est une surface vicinale stable à température ambiante, c'est-à-dire qu'elle présente un escalier régulier de marches monoatomiques. Cette propriété de stabilité est relativement rare, car la majorité des vicinales d'or facettent [125]. Le bord de marche est de type $\{111\}$ (cf. fig. 7.3c) et leur largeur vaut théoriquement 38.3 Å. La distribution de largeur des terrasses (cf. fig. 7.3b) révèle que 60% des terrasses ont une largeur égale à la largeur théorique plus ou moins une rangée atomique. La surface Au(788) est désorientée de 3.52° par rapport au plan (111) suivant l'azimut $[\bar{2}11]$. Chaque terrasse est identique à une surface Au(111). Ainsi, tout comme la surface Au(111), une reconstruction est présente sur chacune des

terrasses. Cependant, contrairement à la surface Au(111), une seule direction cristallographique est adoptée pour l'orientation des dislocations partielles. En effet, la forte densité de terrasses contraint les chevrons à se positionner quasi-perpendiculairement au bord de marches. Une étude plus précise au STM révèle que les lignes de reconstruction ne sont pas parallèles entre elles mais adoptent plutôt une forme en V. La périodicité de la reconstruction est de 72 Å.

Par conséquent, cette surface vicinale permet de créer un réseau rectangulaire défini : 1) dans la direction $[\bar{2}11]$, par la périodicité des marches et 2) dans la direction $[01\bar{1}]$, par la périodicité de la reconstruction. Pour autant que le cristal soit convenablement coupé, ce réseau périodique persiste sur toute sa surface. Chacune des cellules de ce réseau contient 375 sites, limitant par conséquent la taille des plots bi-couches à un maximum de ~ 750 atomes de Co, situation extrême où tous les îlots sont alors coalescés.

7.1.3 Dépôt du Co sur Au(788)

Le cristal Au(788) a été obtenu par polissage mécanique puis électrochimique (société Matek). La préparation de la surface vicinale consiste en une succession de cycles, sous UHV, commençant par un bombardement ionique à l'argon (1 keV) à température ambiante suivi d'un recuit à 900K.

Le Co est déposé à partir d'une tige ultra pure (99.998%) montée dans une source d'évaporation utilisant le chauffage par bombardement électronique (Omicron). Les flux de dépôt sont typiquement de 0.3 ± 0.03 ML/min. La pression durant l'évaporation restait en dessous de 8×10^{-11} mbar.

Formation du réseau d'îlots de Co

Lorsque l'on dépose du Co sur Au(788), les atomes de Co vont former un plot à l'intersection de la marche et de la reconstruction et ainsi former le réseau escompté. Tout comme c'est le cas sur la surface Au(111), les îlots de Co formés sur Au(788) sont double couche. Le mécanisme de croissance des plots n'est pas encore très bien compris et diffère quelque peu de celui décrit, plus haut, pour la surface Au(111). En effet, bien qu'il semble y avoir de l'insertion de Co dans la surface, celui-ci ne peut plus se faire au niveau du coude du chevron car ce dernier n'existe plus sur les terrasses de la vicinale. Afin d'obtenir une dispersion en taille piquée, des études ont montré qu'il convient de déposer le Co à froid ($T^{\text{dép}} \sim 130\text{K}$) puis de recuire pour compacter les îlots au sein d'une cellule. La fig. 7.4b montre la dispersion en taille dans le cas d'un dépôt à froid (135K), d'un dépôt à chaud (300K) et d'un dépôt à froid suivi d'un recuit à température ambiante. Il apparaît clairement que le dépôt avec recuit améliore considérablement la mono-dispersité des îlots de Co. L'image STM 7.4a illustre un dépôt de Co ($T^{\text{dép}} = 130\text{K}$, $T^{\text{rec}} = 300\text{K}$) pour un recouvrement de $\Theta = 0.2$ ML. Chaque

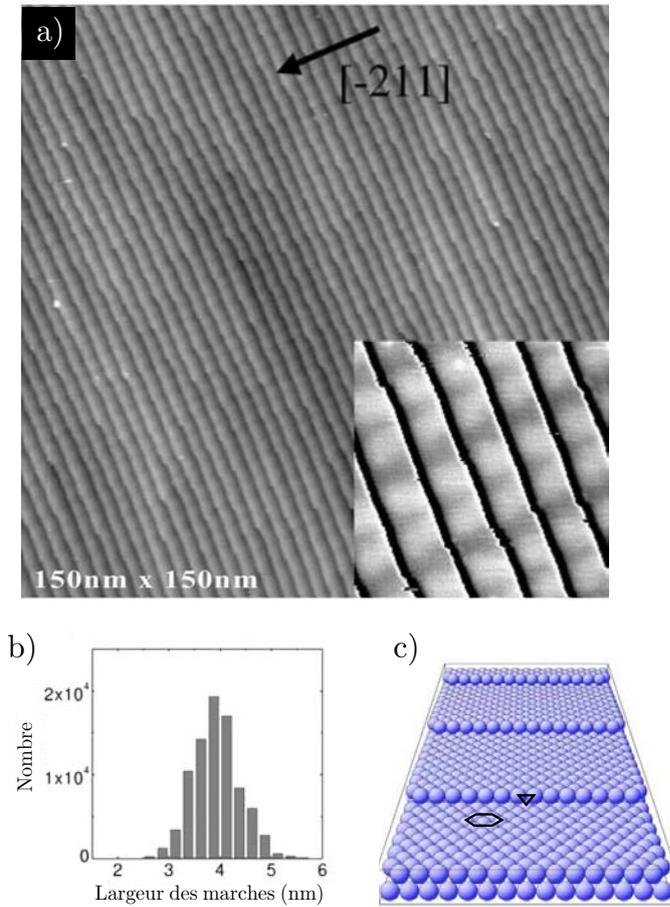


FIG. 7.3: a) Image STM de la surface vicinale Au(788). Lorsque l'on applique la palette de couleur sur chaque terrasse, la reconstruction est bien visible, b) distribution des largeurs de marches (la largeur moyenne théorique est 3.83 nm), c) modélisation de l'arrangement atomique (sans la reconstruction), les marches sont de type $\{111\}$. [Image STM : V. Repain *et al.*]

îlot contient environ 70 ± 14 atomes. La distribution en taille (correctement reproduite par une gaussienne de largeur à mi-hauteur 40%) est bien piquée autour de la valeur moyenne S et aussi plus étroite que celle obtenue sur une surface Au(111) (cf. fig. 7.4c).

Etude STM en fonction du recouvrement de Co

Nous avons fabriqué trois sortes différentes de nanostructures de Co sur la vicinale Au(788). Nous les avons ensuite étudiées avec le SMOKE pour mesurer leurs propriétés magnétiques. Ces trois échantillons ont été produits en ne modifiant que le recouvrement de Co, à savoir 0.75 ML, 1.1 ML

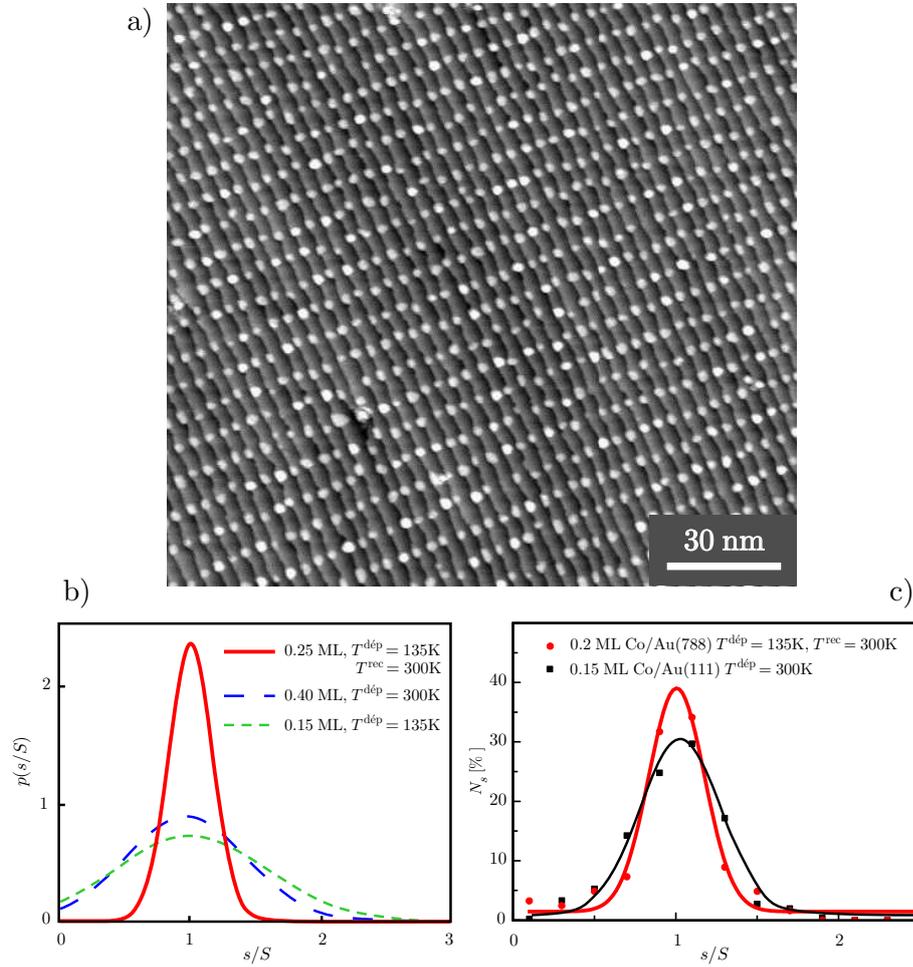


FIG. 7.4: a) Image STM de nano-îlots de Co ($\Theta = 0.2$ ML) sur une surface Au(788), déposés à froid (130K) puis recuits à 300K pour améliorer la mono-dispersité. b) La technique de déposer à froid puis recuire l'échantillon permet d'améliorer significativement la mono-dispersité en taille des îlots (taille moyenne $S = 70 \pm 14$ atomes). c) La distribution en taille sur la vicinale est aussi plus étroite que celle obtenue sur une surface Au(111). [Source : V. Repain *et al.*]

et 2.1 ML. Ce recouvrement tient compte du fait que les îlots formés sont double couche. Ainsi, un dépôt de 1 ML de Co n'occupe que 50% des sites de la surface d'or. Afin d'éviter la nucléation d'îlots et ainsi respecter au maximum le motif du réseau, il est nécessaire de faire des séquences de dépôt-recuit par pas de 0.3 ML jusqu'à atteindre le recouvrement souhaité. Les trois morphologies sont présentées sur les fig. 7.5a-c. Pour les deux premiers cas, les distributions en taille des îlots ainsi que des périmètres p en fonction de la taille s sont montrées. Sur ces images STM, les îlots ayant

coalescé ont été détournés afin d'améliorer leur visibilité. Les statistiques ont été effectuées sur plus de 2000 nanostructures pour les morphologies "a" et "b". Comme nous le voyons sur la figure c, cette morphologie est complexe et il est difficile de détourner convenablement les chaînes pour en déduire une distribution statistique fiable. C'est pour cela que nous avons préféré ne pas montrer de distribution en taille pour les îlots de type "c"

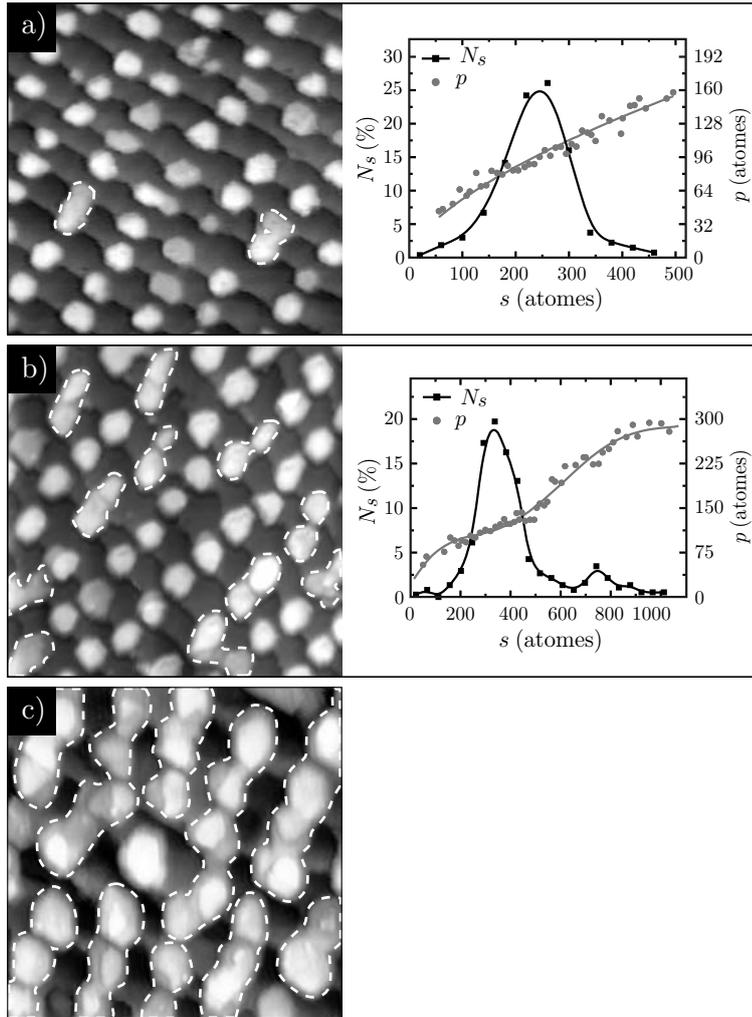


FIG. 7.5: Images STM pour trois morphologies d'îlots de Co sur Au(788), obtenues en modifiant le recouvrement : a) $\Theta=0.75$ ML, b) $\Theta=1.1$ ML et c) $\Theta=2.1$ ML. Chaque image a une taille de 40×40 nm². Les distributions des tailles s et des périmètres p des îlots des échantillons "a" et "b" sont présentés.

Nous observons qu'un début de coalescence apparaît pour un recouvrement proche de 0.75 ML. Ce phénomène est toutefois assez rare et n'est d'ailleurs pas visible dans la distribution en taille. Il est aussi inexistant pour

des recouvrements plus faibles. Comme prévu, la distribution en taille est très piquée (avec une largeur à mi-hauteur de 54%) et les îlots contiennent en moyenne 250 atomes. Les îlots de Co sont compacts et de forme quasi-circulaire. Ainsi, le périmètre suit une loi en puissance (d'exposant ~ 0.6) en fonction de la taille s (courbe grise).

Pour des recouvrements compris entre 0.8 ML et 1.8 ML, nous observons une distribution bimodale due à la coexistence d'îlots simples et d'îlots doubles. La distance entre les marches étant deux fois plus petite que la période de la reconstruction, la coalescence de deux îlots se fait préférentiellement perpendiculairement aux bords de marche (direction $[\bar{2}11]$). La distribution en taille présente donc deux pics. Les îlots simples correspondent au pic principal (contenant en moyenne 375 atomes) et sont environ 4 fois plus nombreux que les doubles (contenant 750 atomes), dans le cas présenté ici, où $\Theta = 1.1$ ML.

Pour des recouvrements supérieurs à 1.8 ML, la coalescence forme des chaînes d'îlots de Co, orientées principalement dans la direction perpendiculaire aux marches du cristal. Même si nous n'avons pu faire de statistiques sur la distribution en taille de ces chaînes, il paraît raisonnable de penser qu'elle doit certainement être large. En effet, avec des recouvrements aussi importants, la structure périodique du réseau étant partiellement détruite, la croissance des îlots ne s'est plus faite par un mécanisme de capture d'atomes au sein d'une cellule mais plutôt par coalescence d'îlots, phénomène beaucoup plus aléatoire.

7.2 Propriétés magnétiques des îlots de Co/Au(788)

Le comportement magnétique des trois morphologies d'îlots a été étudié avec la méthode Kerr. Pour des recouvrements supérieurs à 0.6 ML, nous avons pu mesurer un signal Kerr dans la configuration polaire, tandis que la configuration transverse ne fournissait aucun signal. Les îlots sont donc caractérisés par un axe d'anisotropie magnétique hors-plan. Leur comportement magnétique a été déduit en mesurant la susceptibilité réelle, en champ nul, $\chi'(T)$, en fonction de la température. Le champ magnétique est appliqué suivant une fonction triangulaire de fréquence 0.1 Hz et d'amplitude 50 Oe. La pente à l'origine des cycles nous donne χ' . L'évolution de la susceptibilité réelle en fonction de la température suit le modèle du superparamagnétisme décrit au chapitre 5. Les courbes expérimentales ainsi que les fits sont présentés sur les fig. 7.6a-c.

L'étude de la courbe $\chi'(T)$ pour la morphologie "a" (îlots quasi mono-disperses) révèle un pic aux alentours de la température de blocage ($T_B \sim 50$ K) très raide suivi d'une décroissance en $1/T$. La largeur de transition est très petite (~ 15 K) ce qui est révélateur d'une distribution d'énergies

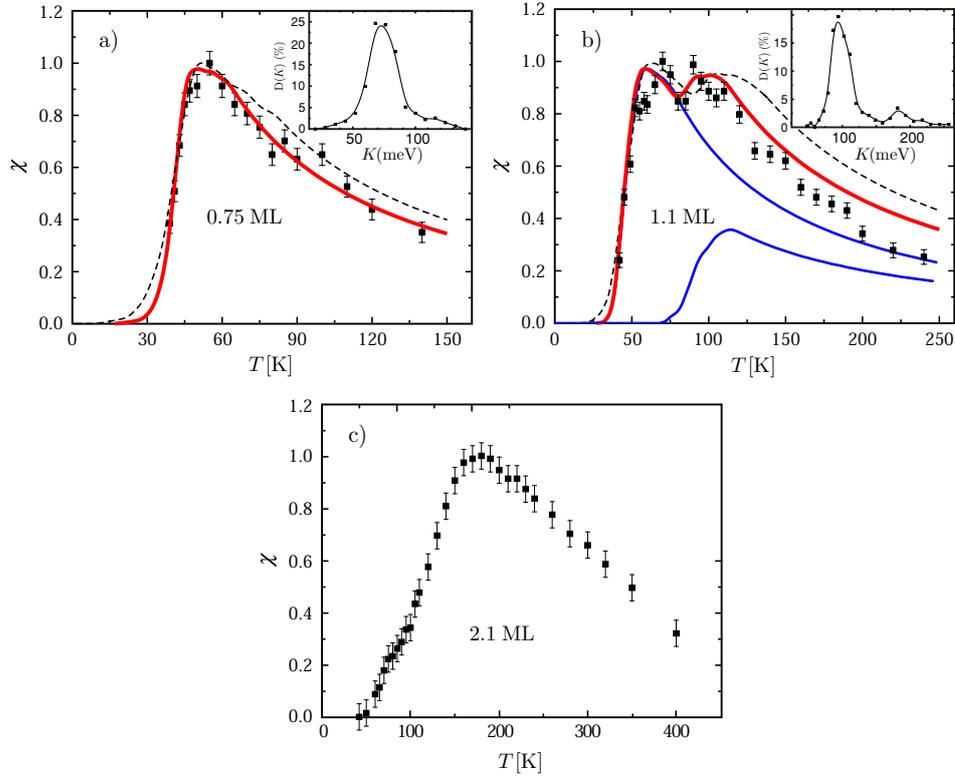


FIG. 7.6: Courbes de susceptibilité réelle χ' en fonction de la température pour les trois morphologies d'îlots de Co sur Au(788). Les courbes continues rouges sont les fits obtenus du modèle du superparamagnétisme en supposant que ce sont les atomes du périmètre qui interviennent dans l'expression de l'énergie totale, les courbes pointillées si l'on suppose que c'est uniquement la surface qui compte.

d'anisotropie piquée (cf. encart). La largeur à mi-hauteur de la distribution d'énergie est de 35%. A titre de comparaison, à l'heure actuelle, le record était détenu pour des colloïdes avec une largeur à mi-hauteur de 64% dans la distribution des énergies [105] (cf. fig. 7.7).

L'étude de la courbe pour la morphologie "b" (deux populations d'îlots) révèle la présence de deux pics. Chacun de ces pics correspond au signal provenant des deux populations d'îlots. Les deux températures de blocage pour les deux populations valent environ 50K et 100K. Bien que le nombre d'îlots doubles soit environ 4 fois faible que celui des îlots simples, leur contribution dans la mesure de χ' n'est pas négligeable. Leur signal est plus ou moins du même ordre de grandeur, une fois tous les îlots établis dans le régime superparamagnétique (*ie.* quand $T > T_B$). Ceci tient au fait que l'amplitude de χ' varie en fonction de M^2 . Ainsi, un îlot double apporte un signal environ 4 fois plus important qu'un îlot simple. La décroissance plus rapide que $1/T$ dès 150K est probablement due au fait que le moment

magnétique des îlots diminue alors que l'on s'approche de la température de Curie [126].

L'étude de la courbe pour la morphologie "c" (formation de chaînes) révèle une transition très large ($\sim 150\text{K}$) provenant de la large distribution en taille et donc en énergie de ces chaînes.

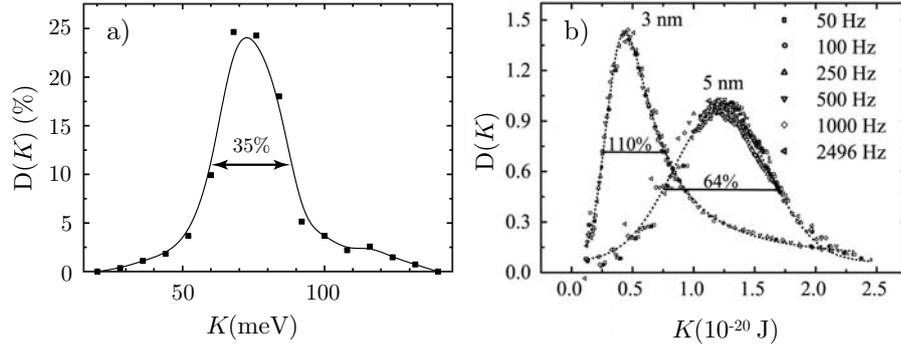


FIG. 7.7: Distribution des énergies d'anisotropie : a) pour nos îlots de Co de morphologie "a" mono-disperses et b) pour le précédent meilleur résultat, obtenu avec des colloïdes [Source : Woods *et al.*].

Les deux paramètres qui entrent en jeu dans l'évaluation de χ' (cf. équ. 5.10) sont le macrospin M de l'îlot et son énergie d'anisotropie K . Avec notre champ, nous n'avons pu saturer les nanostructures et donc n'avons pu déterminer la valeur de M . On peut toutefois en donner une bonne estimation. Le moment magnétique d'un atome est la somme du moment de spin m_s et du moment orbital m_L , le moment de polarisation du substrat m_{Au} étant, en effet, pratiquement nul pour le système Co/Au [127]. De plus, pour des nanostructures de Co/Au(111), il a été montré que le moment orbital ne contribuait que pour 15% du moment magnétique [128], la contribution dominante venant du moment de spin. Or, nous savons que ce dernier ne dépend que faiblement de la coordination atomique [85]. Ce dernier constat nous permet de faire une approximation en disant que le moment total d'un îlot est égal au moment magnétique d'un atome m_{Co} multiplié par le nombre d'atomes s qui le compose : $M = s m_{\text{Co}}$. Nous prendrons comme valeur de $m_{\text{Co}} = 2.3\mu_B$ [128]. Notons toutefois que la valeur de M n'a pour effet que de modifier l'amplitude verticale de la courbe χ' sans changer les détails dans sa forme. C'est la distribution des énergies d'anisotropie qui donne à la courbe χ' toute ces caractéristiques.

Comme nous l'avons montré pour le système Co/Pt(111), l'anisotropie provient principalement des atomes de la périphérie. Nos plots de Co étant très petits, le nombre d'atomes du bord est comparable à celui de l'intérieur. Nous supposons donc que l'anisotropie totale est donnée par : $K = pE_a$, avec p le nombre d'atomes du périmètre et E_a leur énergie d'anisotropie

magnétique. Nous supposons aussi que les atomes de la périphérie de la première et de la deuxième couche ainsi que ceux au contact de la marche d'or possèdent tous la même anisotropie. Une étude statistique sur un grand nombre d'images STM nous permet de convenablement évaluer les distributions en taille et périmètre (cf. courbes de la fig. 7.5) et donc en énergie. La morphologie étant connue, le seul paramètre libre pour les fits est la valeur E_a .

On constate sur les fig. 7.6a-b que les données expérimentales sont très bien reproduites par notre modèle. On constate, ainsi, que les deux pics dans la courbe b sont très bien reproduits par notre fit. A partir de la distribution en énergie, il est même possible de déconvoluer la courbe χ' principale pour mettre en évidence les signaux magnétiques provenant de ces deux populations. Pour les deux morphologies "a" et "b", on obtient la même valeur d'anisotropie $E_a = 0.8 \pm 0.1$ meV/atome. Cette valeur est très proche de celle obtenue pour le système Co/Pt(111). Pour appuyer la validité de notre hypothèse, nous avons aussi tracé la courbe $\chi'(T)$ (courbe en pointillé) en supposant que l'anisotropie totale est proportionnelle à la taille s des îlots ($K = sE_a$). Nous voyons que, systématiquement, la courbe calculée d'après ce modèle décrit moins bien les résultats expérimentaux.

Le dernier point que nous voulons discuter est l'éventuelle interaction magnétique dipolaire entre les îlots. En l'absence d'interaction, on s'attend à ce que la courbe $\chi'(T)$ pour nos nanostructures uniaxiales comporte un pic à T_B suivi d'une décroissance en $1/T$ pour $T_B < T < 5T_B$. Un couplage magnétique conduirait à une courbe nettement moins piquée aux alentours de T_B [101] et d'une décroissance moins rapide que $1/T$. Nos données de la fig. 7.6a sont en parfait accord avec une courbe de susceptibilité de particules sans interaction. L'absence d'interaction mutuelle peut aussi être justifiée en comparant le champ d'anisotropie (*i.e.* le champ coercitif à température nulle) des nanostructures $H_{an} = 2K/M$ avec le champ dipolaire H_d créé par toutes les autres particules. Prenons, par exemple, un îlot typique de morphologie "a" contenant 250 atomes dont 95 atomes sont sur le périmètre. Son énergie d'anisotropie vaut environ $K = 95 \times 0.8 = 76$ meV et son macrospin $M = 250 \times 2.3\mu_B = 575\mu_B$. Nous obtenons finalement un champ $H_{an} \sim 4 \times 10^4$ Oe alors que le champ dipolaire $H_d \sim 500$ Oe, soit deux ordres de grandeur de moins que H_{an} . Nous pouvons ainsi conclure que le couplage magnétique entre les îlots de Co est négligeable, et ce, malgré leur très forte densité ($26 \cdot 10^{12}$ îlots/in²).

7.3 Réseau de piliers de Co

Des études ont montré qu'il est possible de former des piliers verticaux de Co sur la surface Au(111) [112]. La technique consiste à déposer succes-

sivement une fraction x d'une monocouche de Co puis de compléter avec de l'or. Le premier dépôt de Co forme des îlots bi-couches aux coudes des chevrons de la reconstruction. Le dépôt d'Au complète ensuite parfaitement les espaces entre les îlots. Les atomes de Co (dans la phase hcp) étant environ 0.3 \AA plus petit que ceux d'Au (phase fcc), un léger creux apparaît au-dessus de chaque plot enfoui. Le second dépôt de Co forme des plots qui se situent exactement sur les îlots enfouis, augmentant ainsi leur hauteur. Le processus peut être répété un grand nombre de fois jusqu'à obtenir des piliers de Co de plusieurs nanomètres de haut [78]. L'intérêt des piliers, par rapport aux îlots plats, est de tirer profit de l'anisotropie de forme (positive pour les piliers) pour considérablement augmenter l'anisotropie hors-plan totale.

Nous avons tenté de trouver une méthode de croissance pour porter ces résultats sur la vicinale Au(788). Bien que nous n'ayons pu réaliser les piliers escomptés sur cette surface, nous allons présenter les meilleurs résultats produits. Nous avons essayé deux voies. Dans la première, nous cherchons à enfoncer les îlots de Co dans l'or en chauffant l'échantillon puis recouvrons d'une couche d'or, déposons du Co et espérons qu'il va se mettre au-dessus des premiers îlots. Dans la deuxième, nous cherchons à compléter la couche autour des plots en déposant le bon recouvrement d'or, puis remettons du Co.

Les images STM 7.8a-b illustrent la technique d'enfoncement des îlots. L'image a) correspond à un dépôt de 0.3 ML de Co à 140K recuit à 400K . L'image b) correspond au même échantillon après recuit à 450K . On constate que, sous l'effet de la température, de nombreux plots se sont enfoncés dans l'or, laissant apparaître une sorte d'anneau en surface. Le problème vient du fait que tous les îlots ne se sont pas enfoncés. Par conséquent, un autre dépôt d'or forme une couche désordonnée ne permettant pas de continuer à faire croître les piliers de façon régulière.

Les images STM 7.9a-b illustrent la deuxième technique. L'image a) correspond à 0.3 ML de Co déposé à 150 K , recuit à 300K , recouvert de $1-2 \text{ ML}$ d'or. A ce stade les îlots sont déjà noyés dans l'or (image non montrée) mais il faut encore recuire à 500K pour lisser les marches d'or. Cette image a une palette de couleur allouée sur chaque terrasse pour augmenter le contraste et ainsi constater que tous les îlots se sont enfoncés et aussi apercevoir la reconstruction à la surface de l'or. Cependant, cette reconstruction ne se trouve pas forcément au même endroit que les îlots enfouis et ces derniers ne sont pas toujours sur un bord de marche. Lorsque l'on dépose à nouveau 0.3 ML de Co (image b), de nouveaux îlots vont se former à l'intersection de la marche et de la reconstruction, d'autres sur les îlots enfouis. On perd ainsi complètement la périodicité initiale.

En conclusion, nous pouvons dire que nous n'avons pu faire croître des piliers sur la vicinale Au(788). La raison principale provient du fait que chaque

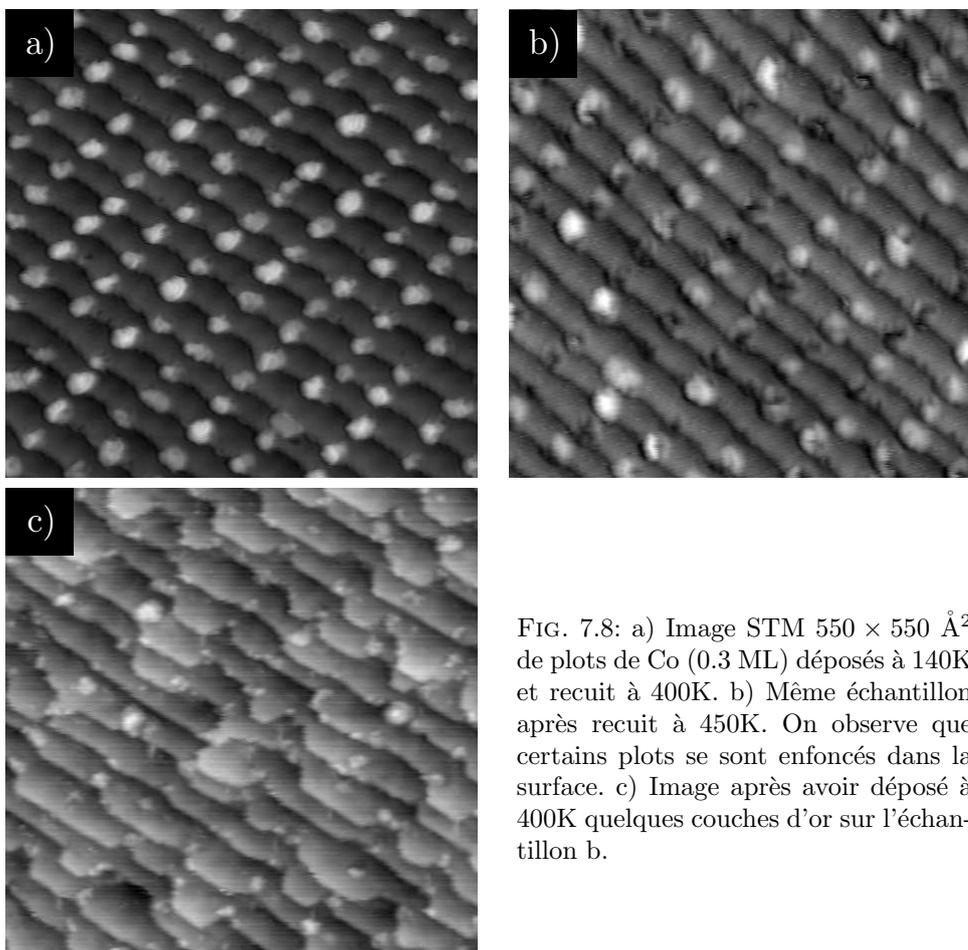


FIG. 7.8: a) Image STM $550 \times 550 \text{ \AA}^2$ de plots de Co (0.3 ML) déposés à 140K et recuit à 400K. b) Même échantillon après recuit à 450K. On observe que certains plots se sont enfoncés dans la surface. c) Image après avoir déposé à 400K quelques couches d'or sur l'échantillon b.

nouvelle couche d'or déposée crée un nouveau réseau de reconstruction qui n'est plus en phase avec le précédent. Les marches sont aussi de puissants centres de nucléation en compétition avec les îlots enfouis. Ceci n'est pas le cas sur la surface plane Au(111) où seuls les îlots enfouis peuvent capturer les atomes de Co déposés ultérieurement.

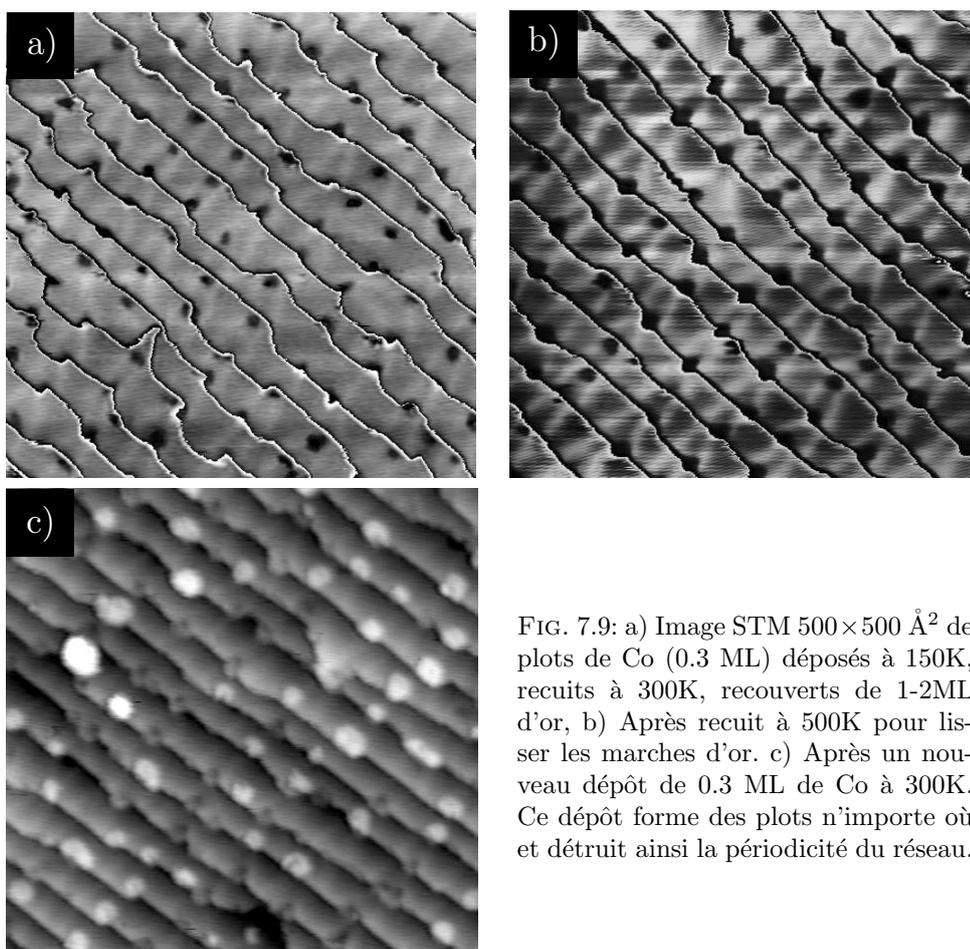


FIG. 7.9: a) Image STM $500 \times 500 \text{ \AA}^2$ de plots de Co (0.3 ML) déposés à 150K, recuits à 300K, recouverts de 1-2ML d'or, b) Après recuit à 500K pour lisser les marches d'or. c) Après un nouveau dépôt de 0.3 ML de Co à 300K. Ce dépôt forme des plots n'importe où et détruit ainsi la périodicité du réseau.

Chapitre 8

Développement de la nouvelle expérience

Au chapitre 3, nous avons décrit l'expérience avec laquelle ont été réalisés tous les résultats présentés dans ce rapport. Durant ce projet de thèse, une grande partie du temps a été consacrée au développement, à la réalisation et à la mise en place d'une nouvelle expérience qui remplacera la précédente. La nouvelle expérience a été conçue dans le but de pouvoir réaliser des mesures Kerr en conjonction avec des mesures STM à température variable sous UHV. Elle sera, en outre, capable de fournir un champ magnétique beaucoup plus intense et de direction orientable.

Le cahier des charges imposé pour la conception de cette expérience est le suivant :

1. L'expérience doit être menée dans un environnement Ultra Haut Vide (Pression caractéristique dans la gamme 10^{-11} mbar).
2. La préparation de l'échantillon, les dépôts, les mesures Kerr et STM doivent se faire à la même place.
3. Des sources d'évaporation, une source Knudsen, un Auger, un quadrupôle, un canon à ions sont présents sur l'expérience.
4. Le champ magnétique pour le Kerr doit être le plus intense possible et sa direction doit être orientable dans un plan entier.
5. Le STM est de type Beetle.
6. Le porte-échantillon doit pouvoir supporter la préparation de métaux réfractaires (chauffés à $\sim 2000\text{K}$ lors des recuits).
7. La température de l'échantillon doit être mesurée précisément et être variable à loisir entre 50K et 2000K .
8. La chambre doit pouvoir accueillir plusieurs échantillons. Les échantillons doivent pouvoir être déplacés dans la chambre ou sortis sans briser le vide de l'enceinte.

Ce cahier des charges présente de nombreuses contraintes (présence de basses et hautes températures, champ magnétique intense, compatibilité UHV) qui limitent beaucoup le choix des matériaux utilisables pour la fabrication des pièces. Ainsi, aucun matériau magnétique ne sera utilisé dans la chambre à l'exception de l'acier inox qui n'est que faiblement magnétique ($\mu_r < 1.005$). Les pièces devant résister à des températures élevées seront faites en titane, molybdène, tungstène, saphir ou céramique. Dans les autres cas nous utiliserons l'aluminium, le cuivre ou le téflon.

Le point 2 est celui qui conditionne le plus le développement de l'enceinte. Le but principal de cette expérience est, en effet, de pouvoir créer des nanostructures par MBE et de les caractériser magnétiquement et morphologiquement. Comme nous l'avons vu dans les chapitres précédents, la formation des nanostructures se fait souvent à des températures inférieures à la température ambiante. Pour ne pas modifier de façon incontrôlée la morphologie des nanostructures, il est donc impératif de maîtriser la température lors des trois processus suivants : fabrication des nanostructures, mesures Kerr et mesures STM. Effectuer ces trois processus à des endroits différents de la chambre implique qu'il faut pouvoir déplacer l'échantillon d'une position à une autre, tout en gardant le contrôle de sa température. Ce choix nous a semblé trop compliqué à mettre en oeuvre et n'a pas été retenu. Nous avons préféré garder l'échantillon à un seul et même endroit pour les trois processus. L'échantillon peut toutefois être déplacé dans l'enceinte, à l'aide d'un wobble-stick, soit pour être échangé avec un autre, soit pour le positionner en face de l'auger ou de la source Knudsen.

Dans ce chapitre, nous présentons les solutions qui ont été adoptées pour répondre aux exigences du cahier des charges.

8.1 L'enceinte UHV

Le corps de l'enceinte UHV est faite entièrement en acier inox 316L, ses flasques et ses tubes en 316LN. Ces aciers contiennent une faible teneur en carbone (0.02%) et sont quasiment non-magnétiques ($\mu_r < 1.005$). L'épaisseur de la paroi de l'enceinte est de 5 mm. Le diagramme 8.1 illustre la chambre UHV avec les divers éléments utilisés pour le vide. Le vide est produit grâce à une pompe turbo [PT1] (Leybold 340M), une pompe ionique [PI] (Varian Starcell 300) renfermant un sublimateur titane. Une jauge à cathode froide [J1] (Balzers IKR070) permet de mesurer la pression jusqu'à $1 \cdot 10^{-11}$ mbar.

Une petite pompe turbo [PT2] (Leybold Turbovac50) est utilisée pour le pompage différentiel du canon à ions (argon) [CI] et permet d'atteindre la gamme 10^{-8} mbar. La mesure de la pression se fait avec une jauge à cathode

froide [J2] (Balzers IKR050). La turbo permet aussi de pomper sur le sas pendant son étuvage, chaque fois qu'un nouvel échantillon est introduit dans la chambre UHV.

La mini-enceinte 2 est connectée à la chambre UHV principale *via* une vanne à tiroir et est utilisée pour y faire entrer des gaz (O_2 , CO_2 ...). La vanne à tiroir permet d'isoler cette partie lorsqu'on l'étuve après avoir changé une bouteille de gaz.

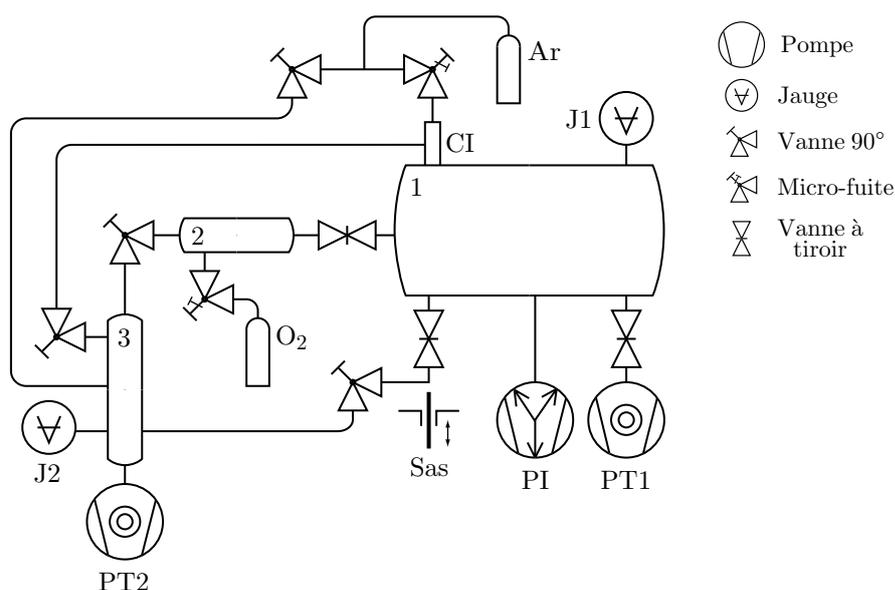


FIG. 8.1: Diagramme du vide de la chambre UHV et de ses éléments périphériques.

L'enceinte est fixée à un cadre en acier qui repose sur 4 pieds d'amortissement actifs (IDE, type TCN). Ces pieds permettent d'atténuer les vibrations mécaniques provenant du sol lorsque l'on fait des mesures STM.

8.2 Le système de mesure Kerr

8.2.1 L'électroaimant

Description de l'électroaimant

Le champ magnétique est produit par 4 bobines placées en-dehors de l'enceinte UHV. Les bobines sont refroidies à l'eau et produisent chacune un champ magnétique maximal en leur centre de 0.12 T lorsqu'elles sont alimentées par un courant de 40 A. Les 4 bobines sont regroupées en 2 paires qui sont chacune alimentées par leur propre source de courant (Kepco BOP20-20M) (cf. fig. 8.3). En ajustant les courants dans ces deux circuits, il est

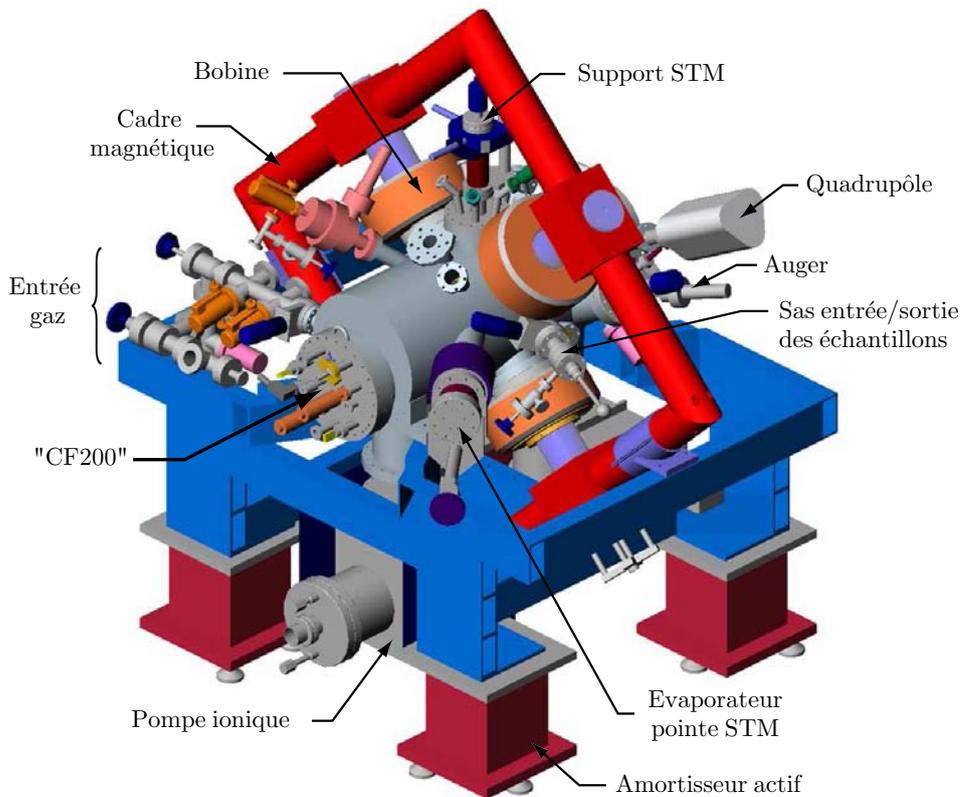


FIG. 8.2: Illustration de l'enceinte UHV.

possible de choisir l'amplitude et l'orientation (dans un plan) du champ magnétique.

A l'intérieur de la chambre, les 4 pôles de forme conique pointent en direction de l'échantillon. Ces pôles ont été soudés sur des flasques CF100 percées, pour assurer la continuité du circuit magnétique lors du passage air-vide. Pour les protéger de l'oxydation, les pôles ont été recouverts, par nickelage chimique, d'une couche de $12 \mu\text{m}$ de nickel-phosphore. Ce dépôt est très résistant à l'usure et à l'oxydation et est compatible UHV.

La forme des pôles est déterminante dans l'optimisation des performances de l'électroaimant. Nous voulons, en effet, obtenir le champ magnétique le plus élevé possible mais aussi garantir son homogénéité sur la surface de l'échantillon, soit sur un diamètre d'environ 10 mm. La distance entre les pôles ne peut être inférieure à 30 mm car la tête du STM doit pouvoir passer entre eux. Afin d'optimiser la forme des pôles, nous avons utilisé un programme de simulation numérique par éléments finis 3D : Ansys. Nous avons ainsi pu simuler le champ magnétique créé au cœur de l'entrefer pour de nombreuses formes de pôles, les deux paramètres géométriques importants étant l'angle du cône et le diamètre de son extrémité. Nous avons

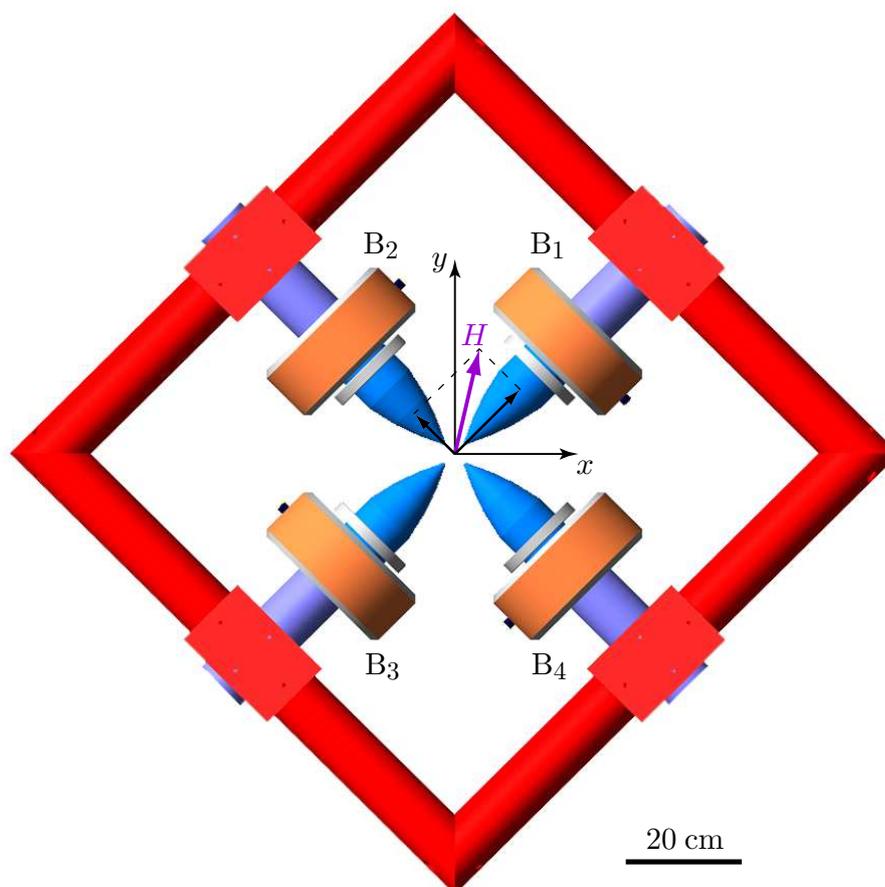


FIG. 8.3: Configuration de l'électroaimant. Les 4 bobines sont regroupées par paire, (B_1 - B_3) et (B_2 - B_4), pour former 2 circuits distincts. En ajustant convenablement le courant dans ces 2 circuits, on peut choisir l'amplitude et l'orientation du champ magnétique H .

finalement choisi la forme de pôle présenté sur la fig. 8.4. D'après les simulations, le champ magnétique maximal au niveau de l'échantillon, avec ces pôles, devrait être de ≈ 0.28 T.

Un cadre carré, constitué de barres de fer doux (Armco), permet de fermer les lignes de champ magnétique et de maintenir aussi les bobines en place. Ce cadre a été conçu afin d'avoir un circuit magnétique aussi court que possible tout en demeurant compatible avec les instruments (en particulier le STM) montés sur la chambre. Le cadre magnétique est tenu mécaniquement sur le cadre qui tient la chambre. Son poids est d'environ 400 Kg.

Caractérisation de l'électroaimant

A l'aide d'une sonde Hall placée dans l'enceinte, nous avons mesuré le

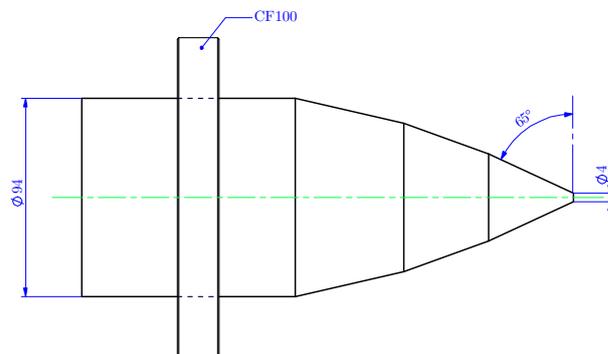


FIG. 8.4: Schéma d'un pôle de l'électroaimant. Le pôle est en fer doux et traverse une flasque CF100 sur laquelle il est soudé. Le circuit magnétique est ainsi continu lors du passage air-vide.

champ magnétique créé par l'électroaimant. Les résultats sont illustrés sur les figures suivantes. La fig. 8.5a représente le champ magnétique (orienté selon x ou y) en fonction du courant I qui circule dans chacun des circuits ($I = I_1 = I_2$). Le champ maximal mesuré est de 0.34 T, soit environ 20% de plus que le résultat de la simulation numérique. On observe que la courbe est légèrement ouverte autour de 0 avec une rémanence de 6.5 mT. La durée de ce cycle est de 106 s. Il est possible de décrire le comportement moyen de cette courbe $H(I)$ par une fonction cubique :

$$H(I) = 0.0122I - 2.273 \cdot 10^{-6}I^3, \quad |I| \leq 40 \text{ A} \quad (8.1)$$

Comme nous pouvons le voir sur la fig. 8.5b, la courbe $H(I)$ demeure linéaire jusqu'à $I = 20\text{A}$, avec toutefois un champ rémanent de 4 mT. Dans ce cas, le champ magnétique s'exprime en fonction de I par :

$$H(I) = 0.0116I, \quad |I| \leq 20 \text{ A} \quad (8.2)$$

L'amplitude du champ rémanent dépend de la vitesse à laquelle on exécute la boucle ainsi que du courant maximal. La rémanence est réduite lorsqu'on augmente la durée du cycle ou que l'on diminue le courant maximal. Une fois la boucle terminée et le courant revenu à 0, le champ magnétique résiduel au niveau de l'échantillon est inférieur à 1 mT. Ce champ est négligeable et ne perturbera pas les mesures STM ni la fabrication des nanostructures.

Les fig. 8.6a-b, illustrent les mesures du champ magnétique en fonction de la position autour de l'échantillon. On constate que sur des distance de $\pm 5 \text{ mm}$ autour de 0, la variation du champ n'excède pas 3%. On peut conclure que l'homogénéité du champ est très bonne sur toute la surface de l'échantillon ($\text{Ø}8 \text{ mm}$).

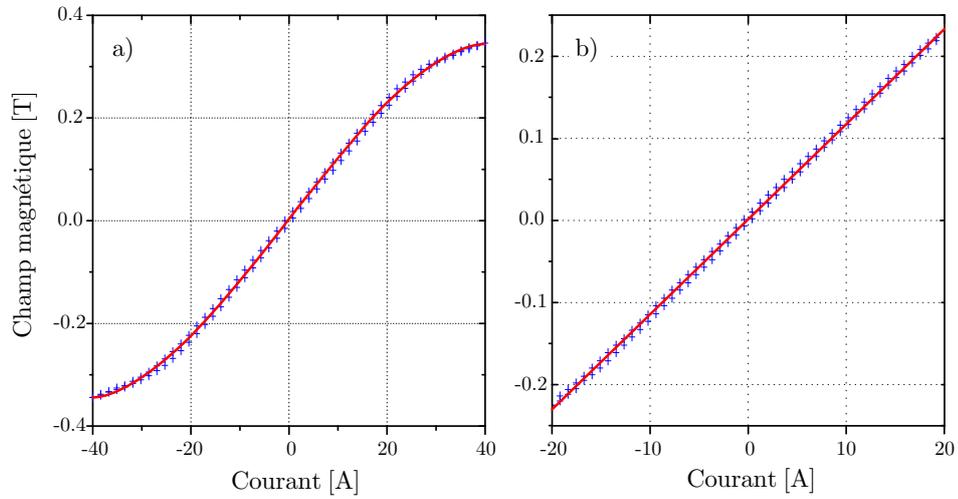


FIG. 8.5: Courbes $H(I)$ mesurées au niveau de l'échantillon lorsque $I = I_1 = I_2$ (ie. le champ est orienté selon l'axe x ou y). a) Le champ maximal au centre de l'échantillon est de 0.34 T. b) Pour des courants inférieurs à 20 A, la courbe $H(I)$ est linéaire. Le champ rémanent dépend de la vitesse à laquelle on exécute la boucle ainsi que du courant maximal. En fonction de ces deux paramètres, il varie entre 2 et 7 mT.

8.2.2 Le système optique

Dans un premier temps, nous avons réalisé un système optique situé à l'extérieur de la chambre UHV, semblable au système décrit au § 3.2. C'est en effet le montage le plus facile à mettre en oeuvre car la diode laser, les polariseurs et la photodiode sont maintenus sur des supports fixés aux hublots de la chambre. Pour valider le montage, nous avons réalisé une mesure Kerr sur un échantillon non-magnétique : Au(111). Nous devrions obtenir un signal constant en fonction du champ H . Or, nous avons mesuré la courbe 8.7a. La courbe 8.7b a été obtenue pour un échantillon de cuivre recouvert de ≈ 10 nm de Fe. On constate que l'hystérèse magnétique est visible mais qu'il s'y superpose un signal induit par les déformations de la chambre. En découplant complètement mécaniquement l'échantillon et les polariseurs de la chambre UHV, nous avons pu mettre en évidence que, sous l'effet du fort champ magnétique, la chambre se tord de quelques dixièmes de degrés. Par conséquent, l'angle relatif entre les axes de polarisations ainsi que l'orientation de la normale de l'échantillon varient en fonction du champ appliqué. Cette rotation mécanique se traduit directement par une rotation de la polarisation de la lumière et donc par une variation du signal Kerr mesuré.

Pour éviter ce problème, il faut développer un montage dans lequel l'orientation des polariseurs ainsi que la normale à l'échantillon demeurent tous trois constants les uns par rapport aux autres. L'idée que nous sommes

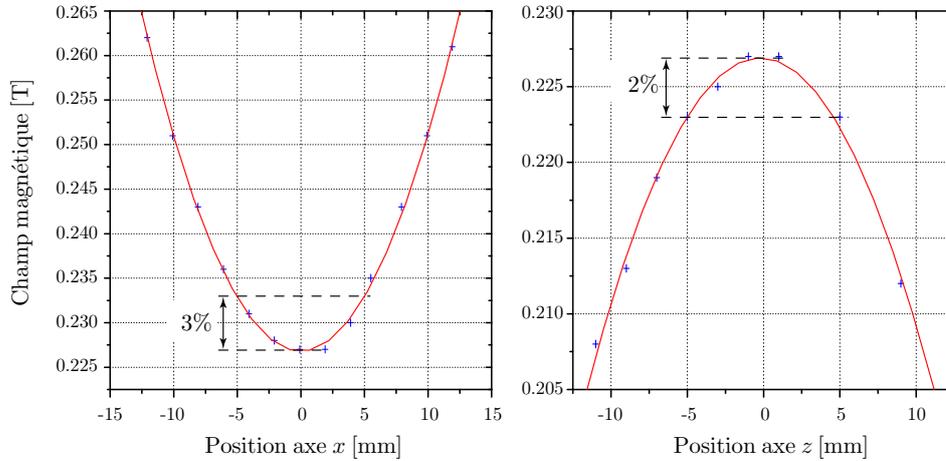


FIG. 8.6: Mesures du champ magnétique en fonction de la position x ou z , aux environs de l'échantillon (placé en 0). Pour ces mesures, le courant $I = I_1 = I_2 = 20$ A. La différence de champ entre le centre et les extrémités de l'échantillon n'excède pas 3%.

en train d'étudier est de placer le système optique à l'intérieur de la chambre UHV et de fixer les polariseurs sur la plaque qui soutient l'échantillon (la dernière plaque du système d'amortissement des vibrations). Ainsi, même si la chambre se déforme, cet ensemble se déplace d'un seul bloc et aucun artefact ne devrait être mesuré. Ce montage est difficile à mettre en oeuvre et est en cours d'étude. Il faut, en effet, utiliser des composants optiques compatibles UHV et trouver un système qui permet d'orienter précisément l'axe des polariseurs *in situ*. Pour cela, nous allons utiliser des moteurs piézos commandés depuis l'extérieur de l'enceinte.

8.3 Le bloc central

Le bloc central est l'endroit où se trouve l'échantillon que l'on étudie. C'est ici que se font les mesures STM et Kerr, la préparation du cristal ainsi que les évaporations. Ce bloc est composé du porte-porte-échantillon fixé sur la dernière plaque du système d'amortissement. Ce dernier repose sur une grande plaque d'inox vissée à deux barres fixées à une flasque CF200 (visible sur la fig. 8.2). Sur les photos de la fig. 8.8, nous pouvons voir les divers éléments qui composent ce bloc central.

8.3.1 Le porte-échantillon

Dans le porte-échantillon (cf. fig 8.9 et 8.10), le cristal est pris en sandwich entre deux pièces de saphir qui garantissent l'isolation électrique tout en assurant un bon échange thermique. Le saphir du dessous a une forme en

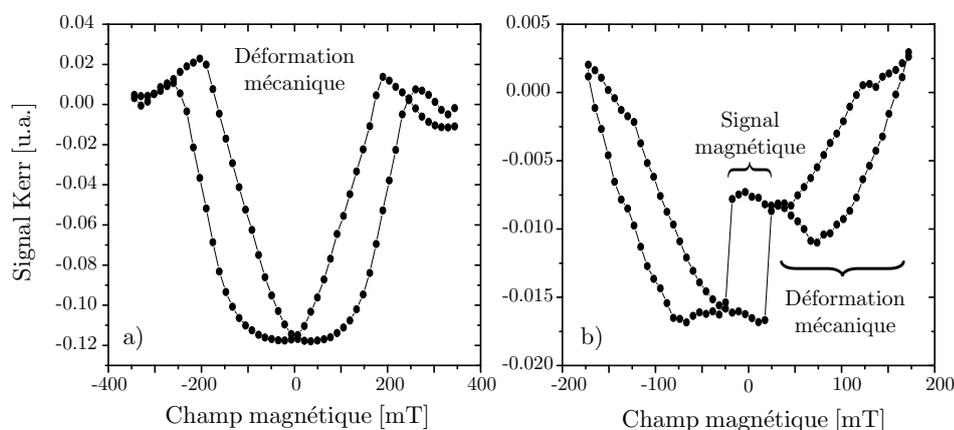


FIG. 8.7: Signal Kerr mesuré : a) sur un échantillon non magnétique. b) sur un film de 10 nm de Fe sur cuivre. On constate que les déformations mécaniques de la chambre génèrent un signal très important qui empêchera d'étudier des faibles recouvrements. La résolution de ce problème est en cours d'études.

T spécialement étudiée pour éviter les courts-circuits, entre l'échantillon et le porte-échantillon, produits par la métallisation. Le saphir du dessus est un anneau plat de 0.5 mm d'épaisseur. Un thermocouple de type K ou C est placé entre ce saphir et l'échantillon. Trois lamelles ressort de W (ép. 0.2 mm) maintiennent le sandwich sous pression. Les rampes pour le STM (dénivelé 0.4 mm), réalisées en Mo, sont ensuite posées et serrées avec 3 vis M1.4 en Ti. Les connexions électriques (potentiel de l'échantillon et thermocouples) se font sur la face arrière du porte-échantillon. Les fils (Chromel, Alumel, W5 et W26) de diamètre 0.1 mm ou 0.125 mm sont bobinés sur une plaquette d'alumine (ép. 1 mm) découpée au laser. La plaquette est fixée grâce à des vis M1.4. Pour être compatible avec les hautes températures, le porte-échantillon est réalisé en Mo et toutes les vis en Ti.

Une fourche montée sur un wooble-stick permet de saisir le porte-échantillon pour le déplacer dans l'enceinte.

8.3.2 Le porte-échantillon

Le porte-échantillon vient se loger dans une pièce en Mo fixe : le porte-échantillon. Cette pièce est tenue mécaniquement par trois pieds en inox fixés à la dernière plaque du système d'amortissement. Elle est reliée au cryostat à flux par une tresse métallique qui permet de la refroidir complètement. Pour minimiser les pertes thermiques par conduction, les trois pieds en inox sont des tubes minces ($\varnothing_{\text{ext}} = 5$ mm, ép. 0.2 mm) percés de nombreux trous de $\varnothing 2$ mm. L'inox est un très bon isolant thermique à basse température, avec une conductivité thermique, κ , de 9 W/mK à 100K et 3 W/mK à 30K.

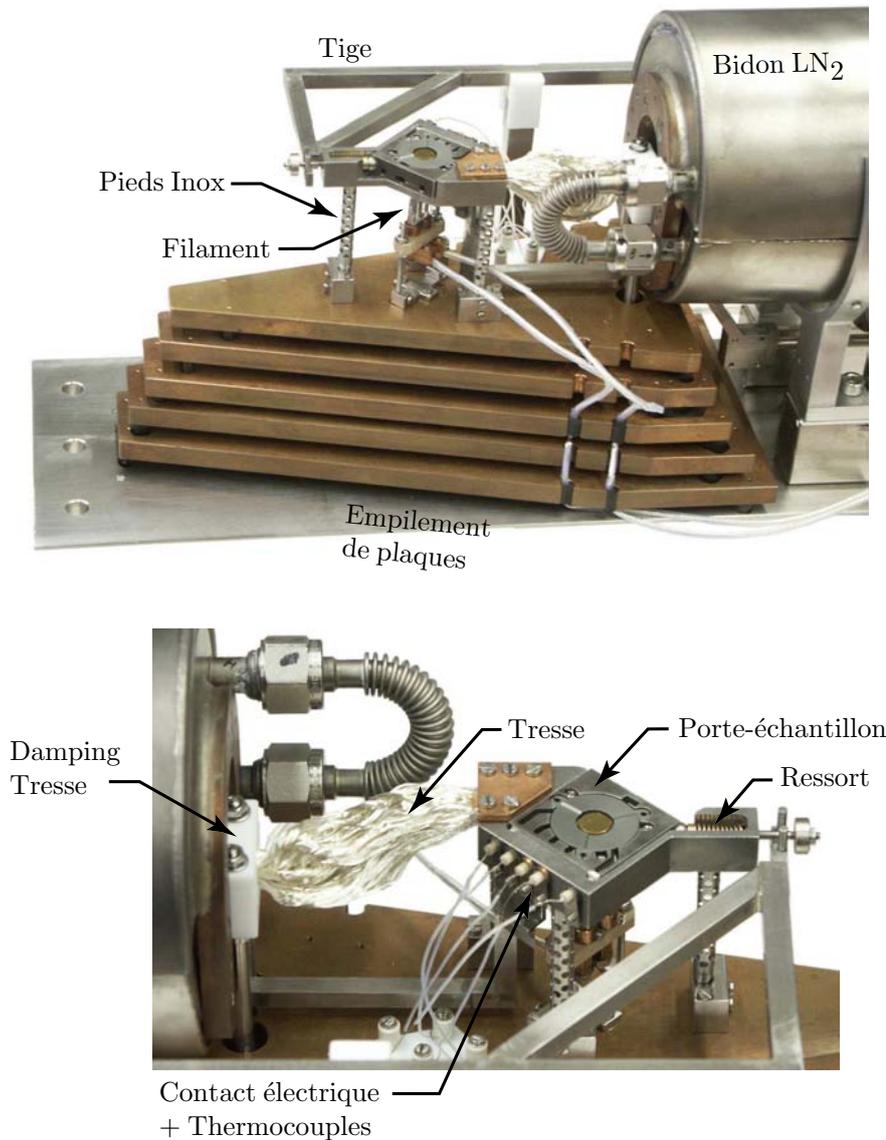


FIG. 8.8: Photos du bloc central.

Pour assurer un bon contact mécanique, électrique et thermique, un ressort hélicoïdal en Inconel-625 de $\varnothing 0.6$ mm pousse une bille de Ti sur le porte-échantillon. Lorsque l'on veut sortir ce dernier, on utilise une tige, montée sur un translateur linéaire, pour tirer sur le ressort et ainsi débloquer la bille. Le translateur linéaire étant limité à une force axiale maximale de 22 N, la pression du ressort sur le porte-échantillon sera forcément inférieure. En optimisant les paramètres géométriques du ressort, nous parvenons à une force de compression de 17 N. Pour ne pas arracher le bloc central durant l'opéra-

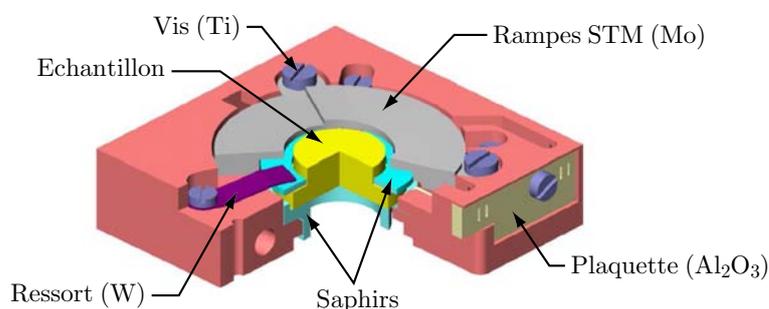


FIG. 8.9: Vue en coupe du porte-échantillon.

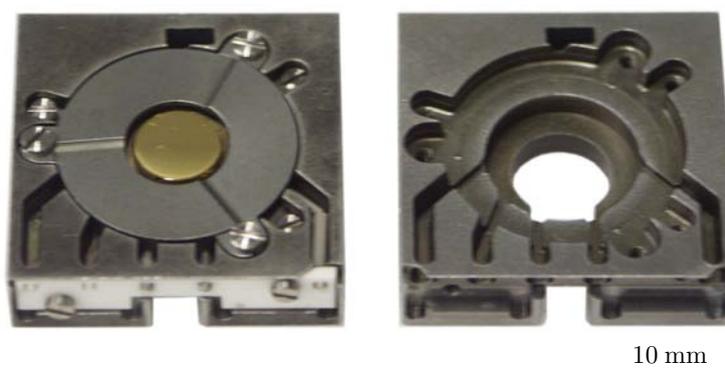


FIG. 8.10: Photos du porte-échantillon nu et avec un échantillon d'or monté. Sur la plaquette d'alumine (en blanc en bas), on distingue le bobinage des fils du thermocouple Chromel-Alumel et celui servant à mettre l'échantillon à un potentiel électrique.

tion de déblocage de la bille, une autre tige, montée aussi sur un translateur linéaire, permet de le retenir fermement.

Les connexions électriques sont faites de fils (Chromel, Alumel, W5 et W26) de $\varnothing 0.2$ mm bobinés dans une tige d'alumine ($\varnothing 2.3$ mm) comportant 4 trous. Ces tiges sont retenues par une lamelle ressort de W qui maintient une pression bien définie et reproductible et garantit ainsi une bonne connexion électrique. Un filament d'une lampe halogène 50 W est placé sous le cristal et permet de le chauffer par simple rayonnement ou par bombardement électronique si l'on applique une tension de plusieurs centaines de volts sur l'échantillon.

8.3.3 Le système d'amortissement

Un empilement de 5 plaques de Cu, espacées par des vitons en forme de U, permet d'isoler le porte-échantillon des vibrations lors des mesures STM (cf. fig. 8.8). Cet empilement repose sur une grande plaque en inox fixée d'un

côté à la flasque CF200 et de l'autre à une plaquette soudée dans la chambre UHV.

8.4 Le cryostat

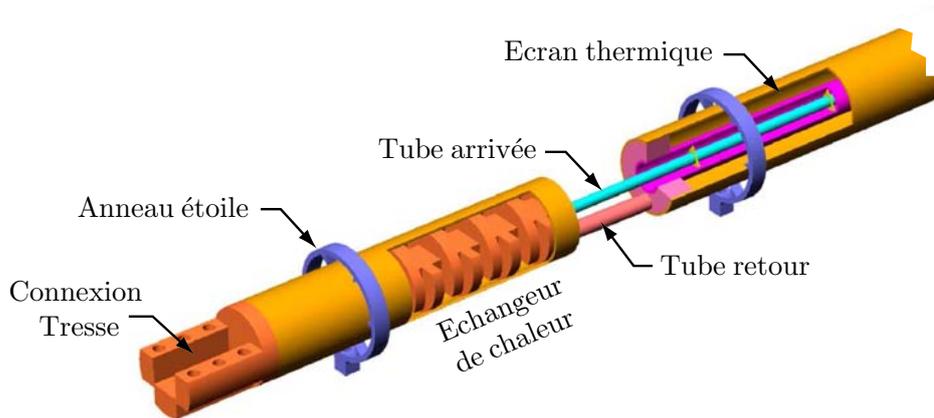


FIG. 8.11: Vue en coupe du cryostat à flux.

La fig. 8.11 illustre le montage du cryostat à flux. Le fluide cryogénique (hélium ou azote liquide) arrive par un tube d'incox central ($\varnothing_{\text{ext}} = 2 \text{ mm}$, ép. 0.2 mm) jusqu'à l'échangeur de chaleur en Cu. Le liquide (ou le gaz) ressort ensuite par un tube concentrique au tube d'arrivée et permet ainsi de l'écraner du rayonnement thermique environnant. Ces tubes concentriques sont isolés l'un de l'autre par du vide et ne sont mis en contact que par des fils d'incox en certains points pour assurer le centrage et la tenue mécanique du tube central. Le tube externe est tenu par 3 anneaux, découpés en étoile, vissés sur les deux barres fixées à la flasque CF200.

La tresse est fixée à l'extrémité de l'échangeur de chaleur. Sa longueur est de 12 cm. Elle est composée de fils de $\varnothing 50 \mu\text{m}$ de Cu recouvert d'Ag. La tresse est serrée en son milieu par un bloc de téflon qui est fixé à la troisième plaque du système d'amortissement. Ceci a pour but de diminuer, au niveau de l'échantillon, les vibrations mécaniques provenant du cryostat.

Un bidon, pouvant être rempli avec 1.5 L d'azote liquide, entoure le cryostat à flux. Il permet d'écraner l'échangeur de chaleur et une partie de la tresse du rayonnement thermique ambiant. Il a une autonomie de 4 h et sert aussi de cryo-pompe.

Lors des tests de refroidissement, nous avons mesuré la température en divers points en utilisant une diode (LakeShore DT470SD13). Contrairement aux thermocouples, les diodes sont en effet très précises aux basses températures (erreur $< 0.2^\circ\text{C}$). Comme illustré sur la fig. 8.12, les quatre points où nous avons fait des mesures sont : 1) sur la pièce en cuivre qui

sert la tresse, 2) sur le porte-porte-échantillon au niveau du ressort, 3) sur le porte-échantillon et 4) sur l'échantillon.

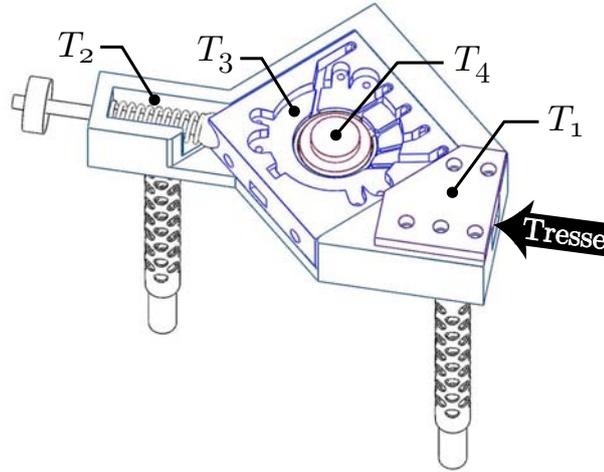


FIG. 8.12: Emplacements où nous avons mesuré les températures, à l'aide d'une diode, lors des tests de refroidissement.

Les résultats obtenus pour l'hélium et l'azote liquide sont reportés dans le tableau suivant.

	T_1	T_2	T_3	T_4
Hélium	22 K	26 K	52 K	59 K
Azote	101 K	105 K	111 K	116 K

Le fait que, sur le porte-porte-échantillon, la différence de température entre le point d'arrivée de la tresse (T_1) et l'extrême opposé (T_2) soit de 4K nous permet de conclure que les pertes thermiques *via* les trois pieds en inox sont, comme prévu, relativement faibles. Nous avons pu confirmer ce fait en ôtant complètement deux des trois pieds en inox. Nous avons alors mesuré $T_2 = 21\text{K}$ pour de l'hélium liquide soit 5K de moins que la situation originale (avec les trois pieds). De plus, nous constatons que la plus grande partie de la chute thermique se fait entre le porte-échantillon et son support. Ceci est bien évidemment dû au fait que le contact mécanique n'est produit que par la poussée horizontale de 1.7 Kg du ressort hélicoïdal. Pour connaître la température minimale que nous pourrions obtenir en optimisant ce contact, nous avons retiré le ressort hélicoïdal et fermement serré le porte-échantillon contre son support, vers le bas, à l'aide d'une vis M6. De ce fait, la surface de contact ainsi que la force de serrage sont toutes deux maximales. Les températures mesurées sur le porte-échantillon (T_3) ont été de 28K pour l'hélium et 107K pour l'azote liquide. L'amélioration la plus spectaculaire est donc celle pour l'hélium où nous avons gagné 24K. Ce résultat laisse à penser que des améliorations au niveau du contact entre

le porte-échantillon et le porte-porte-échantillon permettraient d'optimiser ostensiblement le refroidissement. Pour finir, les interfaces multiples entre Mo/saphir/échantillon font encore perdre quelques degrés ($5 - 7\text{K}$) pour la température de l'échantillon.

8.5 Le STM

8.5.1 Construction

Le STM utilisé est du même type que celui décrit au chap. 2 avec quelques petites modifications apportées (cf. fig. 8.13). Dans cette version le corps du STM est fait en titane. Ce matériau est rigide, léger et a un coefficient de dilatation thermique faible ($8.6 \cdot 10^{-6} \text{K}^{-1}$). Le haut de la tête a été modifié pour changer la façon dont celle-ci est tenue mécaniquement. Dans cette version, c'est une griffe à 3 dents qui la tient au niveau du cône. Ainsi, à chaque fois que l'on remonte le STM, la tête se recentre automatiquement.

La fig. 8.14 illustre le STM complètement monté. Les fils électriques provenant de l'extérieur sont connectés à une plaque de Cu posée sur des vitons afin d'amortir les vibrations mécaniques. Les fils qui repartent en direction de la tête sont des fils de $50 \mu\text{m}$ recouverts de kapton.

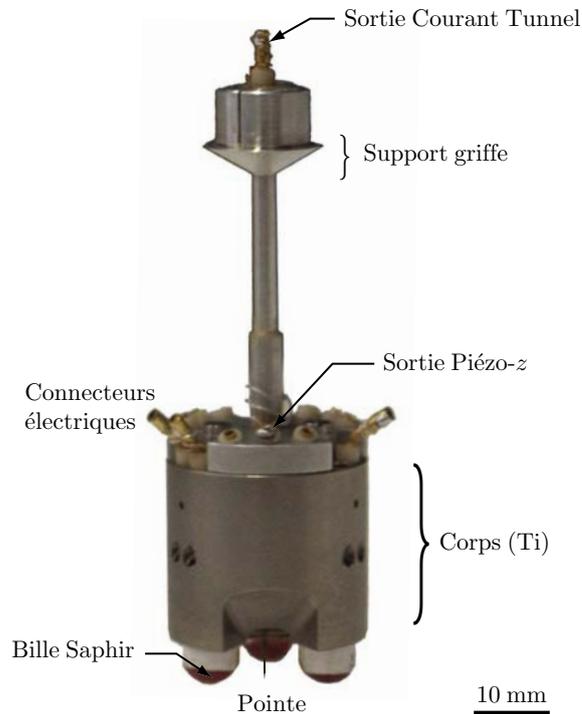


FIG. 8.13: Photo de la tête du STM construit pour la nouvelle expérience. Le bas de la tête est en Ti et le haut en Al.

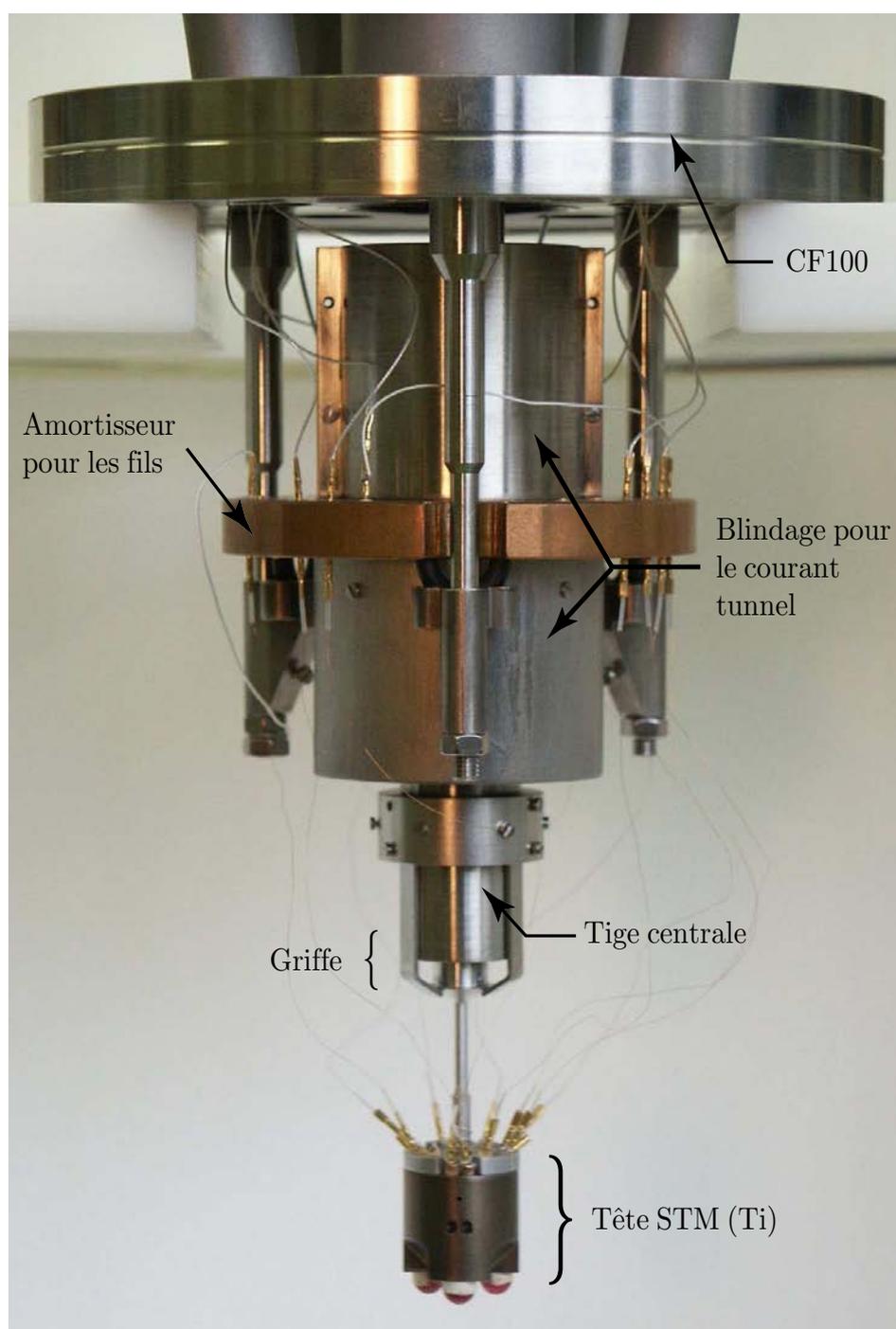


FIG. 8.14: Nouveau STM monté. Une plaque de Cu posée sur des vitons permet d'amortir les vibrations mécaniques transmises par les fils électriques. Entre cette plaque et la tête nous utilisons des fils de $50 \mu\text{m}$.

Une source d'évaporation a été construite pour pouvoir déposer du métal sur la pointe du STM. En déposant par exemple une couche de Cr, il est possible de réaliser des expériences de STM polarisé en spin. Elle peut accueillir 2 sources d'évaporation refroidies à l'eau et contient aussi un filament de W qui sert à chauffer la pointe du STM et à la préparer par bombardement ionique.

8.5.2 Fonctionnement du programme

Pour piloter le STM, nous utilisons un module Keithley ADwin-Pro, comportant un processeur temps réel (DSP Sharc 32 bits, 40 MHz pourvu de 16 MB de RAM), de 4 convertisseurs ADC et 4 DAC (± 10 V, 16 bits, 100 KHz non-multiplexés), de 16 entrées et 16 sorties numériques. Ce module est relié à un PC par une liaison Fast Ethernet à 100 Mbauds. Ce DSP est uniquement programmé pour effectuer le balayage de la pointe sur une zone désirée et faire l'acquisition des signaux arrivant sur les ADC (topographie- z , courant tunnel...). La boucle de régulation, qui asservit le piézo- z pour garder le courant tunnel constant, est prise en charge indépendamment par une électronique analogique. Ce module de Keithley a l'avantage d'exécuter le programme de façon parfaitement déterministe et d'être aisément programmable grâce à un langage de haut niveau. Chacune des instructions prend un nombre défini de cycles d'horloge (à raison d'un cycle d'horloge toutes les 25 ns) et est exécutée l'une après l'autre sans que rien ne puisse venir perturber l'avancement du programme. Toutefois, la façon dont le programme est exécuté sur ce DSP diffère de ce qu'on a l'habitude de voir pour les programmes tournants sur des architectures "standard". Ici, le programme chargé en mémoire est exécuté périodiquement par le DSP à raison d'une seule fois (c'est un cycle) toutes les ΔT secondes, le paramètre ΔT étant défini par le programmeur. Par conséquent, le paramètre ΔT doit nécessairement être supérieur à la durée maximale t' que peut prendre un seul cycle (chacun des cycles pouvant prendre un temps différent t_i suivant ce que le programme doit faire, on a $t' = \max\{t_i\}$). Pour le $i^{\text{ème}}$ cycle, après avoir exécuté toutes ses commandes, il reste $(\Delta T - t_i)$ secondes pendant lesquelles le DSP n'exécute aucune instruction. Ce temps sert au transfert des données entre le PC et le DSP (cf. fig 8.15). Notre programme est conçu de telle sorte que le convertisseur ADC ne fasse qu'une mesure par cycle. Par conséquent, il s'écoule toujours le même temps ΔT entre deux mesures consécutives. Compte tenu que nous avons réussi à considérablement optimiser le programme pour aboutir à $t' = 12 \mu\text{s}$ (rem : t' ne peut être inférieur au temps d'activation de $10 \mu\text{s}$ des ADC), nous avons choisi $\Delta T = 15 \mu\text{s}$. Cela implique que la fréquence d'échantillonnage apparente de nos ADC et DAC est de $f_0 = 1/\Delta T \approx 66,67 \text{ KHz}$.

La calibration de nos piézos- $\{x, y, z\}$ est d'environ $\{1643, 2212, 38\} \text{ \AA/V}$.

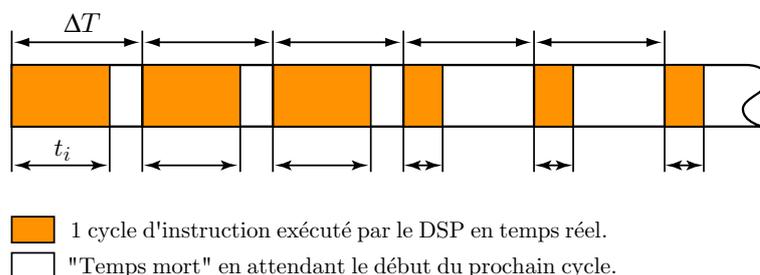


FIG. 8.15: Schématisation du déroulement du programme temps réel. Toutes les $\Delta T = 15 \mu\text{s}$, le DSP exécute une seule fois le programme, c'est un cycle. Puis, il ne fait rien jusqu'au départ du prochain cycle. Ce "temps mort" permet de transférer les données entre le PC et le DSP.

Avec les 16 bits de nos convertisseurs, sur la plage $\pm 10 \text{ V}$, 1 bit correspond donc à une résolution spatiale de $\{0.5, 0.67, 0.012\} \text{ \AA}$. Lorsque l'on balaye des petites zones, pour obtenir une image en résolution atomique par exemple, nous divisons d'un facteur dix le gain des amplificateurs de tension qui pilotent les piézos x et y afin d'accroître la résolution latérale.

L'interface graphique qui tourne sur le PC (cf. fig 8.16) est réalisée en Labview et sert à envoyer les paramètres de l'utilisateur au temps réel ainsi qu'à récupérer les données mesurées sur les différents canaux (max. 4 canaux).

Les paramètres que l'utilisateur définit sont :

- le nombre de lignes et de pixels.
- la direction du balayage.
- la fréquence du balayage (ligne/s).
- l'angle θ de la zone balayée.
- la largeur et la hauteur (\AA).
- la position du centre de la zone balayée.

A partir de ces informations Labview calcule et envoie au DSP les paramètres suivants :

- le nombre de mesures par ligne.
- le nombre de mesures par pixel.
- la position, en volt, (U_{x_0}, U_{y_0}) du coin bas-gauche (ou bas-droite suivant la direction de balayage).
- les incréments de tensions $dU_x, dU_y, d\hat{U}_x, d\hat{U}_y$. Les tensions dU sont les incréments à ajouter pour passer d'un point de mesure au suivant (situé sur la même ligne) et $d\hat{U}$ pour passer d'une ligne à l'autre.

Pour écourter un peu l'algorithme, nous avons fixé par avance un ensemble de fréquences que l'utilisateur peut employer. Ces fréquences sont

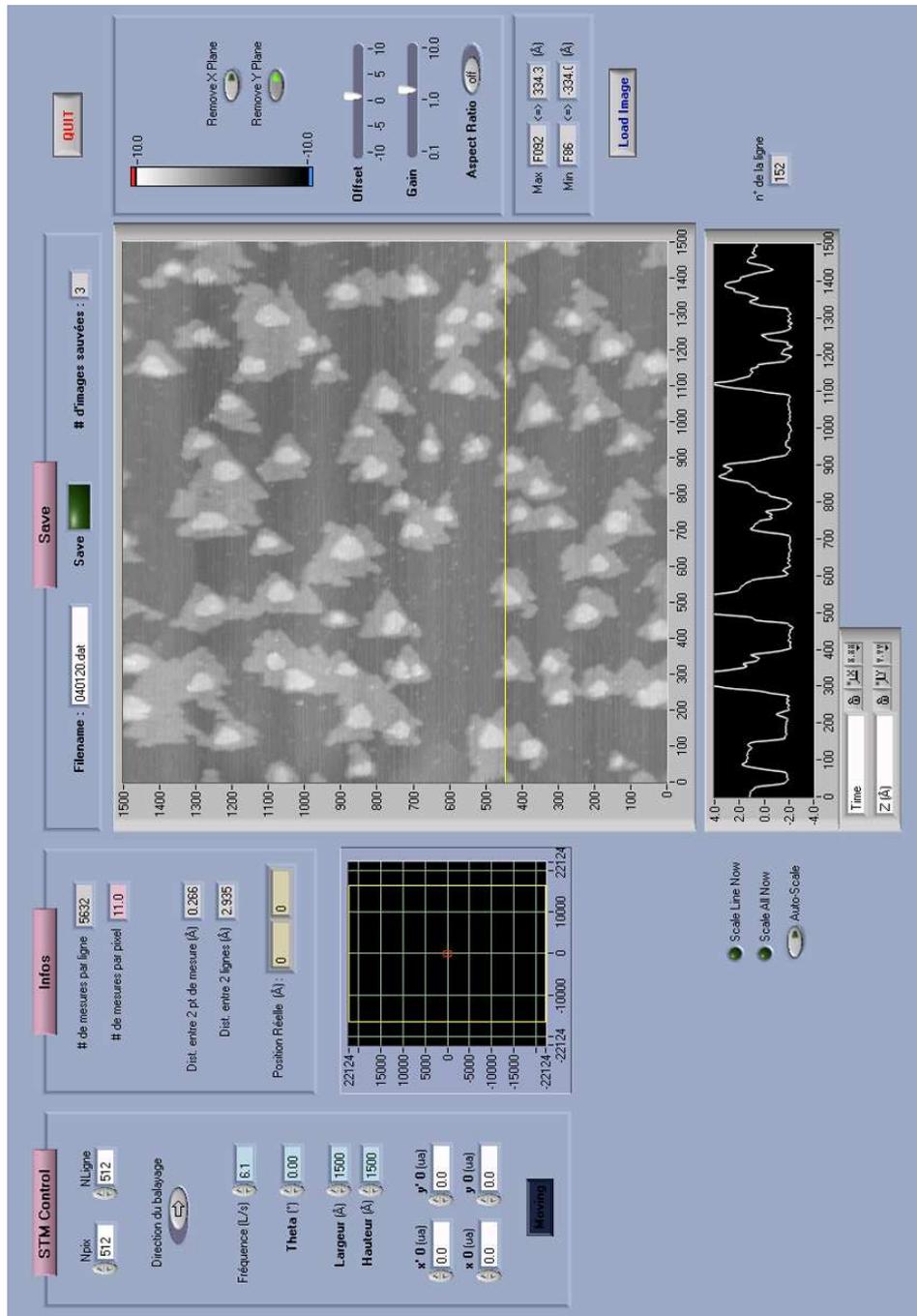


FIG. 8.16: Capture d'écran de l'interface graphique du STM programmée en Labview. Le programme Labview communique avec le programme temps réel, exécuté par le DSP, pour envoyer les paramètres de l'utilisateur et recevoir les données mesurées.

telles que le "nombre de mesure par pixel" soit un nombre entier ou demi-entier.

Le DSP a alors tous les paramètres nécessaires pour balayer la zone définie par l'utilisateur avec la bonne vitesse. De façon simplifiée, pendant un seul cycle, 2 DAC (qui commandent les piézos x et y) appliquent la tension permettant de déplacer la pointe du STM d'un point à un autre puis les ADC font une mesure par canal sur ce point. C'est la fin du cycle. Le DSP calcule la moyenne des mesures pour fournir un pixel. Ce pixel est placé dans un buffer cyclique situé dans la RAM du DSP. Le programme Labview vide régulièrement ce buffer et affiche les données sous la forme d'une image 2D ainsi qu'une ligne de balayage.

Une fois qu'une ligne de balayage a été achevée, les 2 DAC ramènent progressivement la pointe au début de la prochaine ligne, toujours à raison d'un pas par cycle. Ainsi, le temps que met la pointe pour balayer dans un sens est égal au temps pour revenir au début de la ligne suivante. Pendant le retour, les ADC ne font pas de mesures, ce qui réduit la durée où le DSP est occupé et donne plus de temps libre ($\sim 12 \mu\text{s}$) pour les transferts de données avec le PC (cf. fig. 8.17).

C'est principalement le temps pendant lequel les données peuvent être transférées qui limite la fréquence maximale de balayage. Pour une image de 512×512 pixels, nous avons pu vérifier que la fréquence maximale est d'environ 25 l/s. Au-delà, Labview n'arrive pas à vider le buffer aussi vite que le DSP le remplit conduisant inévitablement à un "buffer overflow" et à la perte des mesures. Si le besoin s'en faisait sentir, il serait tout à fait possible de créer un programme spécial qui permettrait d'atteindre des fréquences plus élevées. Le transfert des données pourrait, par exemple, se faire d'un seul coup une fois un certain nombre d'images stockées dans les 16 Mo de RAM du DSP.

8.5.3 Premiers tests du STM

Nous avons effectué les premiers tests de ce STM à l'air. La surface choisie est celle de HOPG car elle se prépare très facilement en clivant le cristal à l'aide d'un simple morceau d'adhésif. Le STM n'était pas monté sur la chambre UHV mais était fixé à un support posé sur les pieds pneumatiques. Un gros bloc de mousse était posé sous l'échantillon pour l'isoler des vibrations mécaniques. Pour obtenir une résolution atomique sur le HOPG, le courant tunnel doit être de 1-3 nA et la tension de polarisation comprise entre 50 et 200 mV. Il est aussi impératif de ne jamais planter la pointe dans la surface car les feuillets de graphite collés au bout de la pointe empêchent d'obtenir une résolution atomique. L'image 8.19 a été obtenue avec une pointe de Pt/Ir.

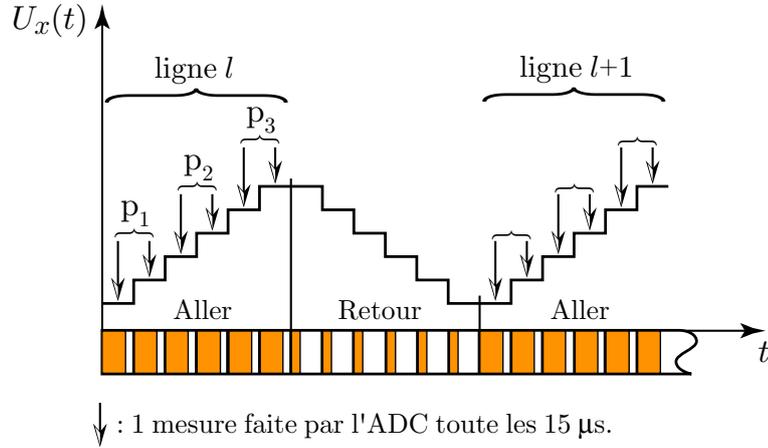


FIG. 8.17: Exemple de l'évolution de la tension $U_x(t)$ sur le piézo de balayage x . Dans cet exemple, 6 mesures de l'ADC sont faites sur une ligne et sont ensuite moyennées par 2 pour finalement fournir les 3 pixels/ligne imposés par l'utilisateur.

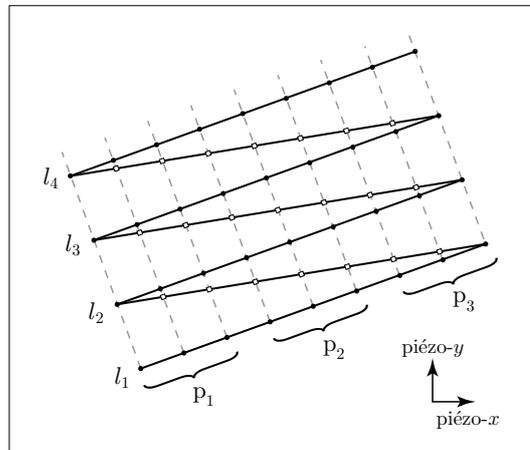


FIG. 8.18: Schématisation du balayage effectué avec la pointe du STM dans le cas où la zone est tournée d'un angle $\theta = 20^\circ$. L'image sera ici de 3 pixels par ligne, chaque pixel étant la moyenne de 3 mesures. Les points noirs sont les endroits où la pointe s'arrête et l'ADC fait une mesure (ligne de balayage *aller*). Les carrés blancs sont les endroits où la pointe s'arrête mais aucune mesure n'est faite (ligne de *retour*). Entre chaque symbole, le même temps $\Delta T = 15 \mu$ s s'est écoulé.

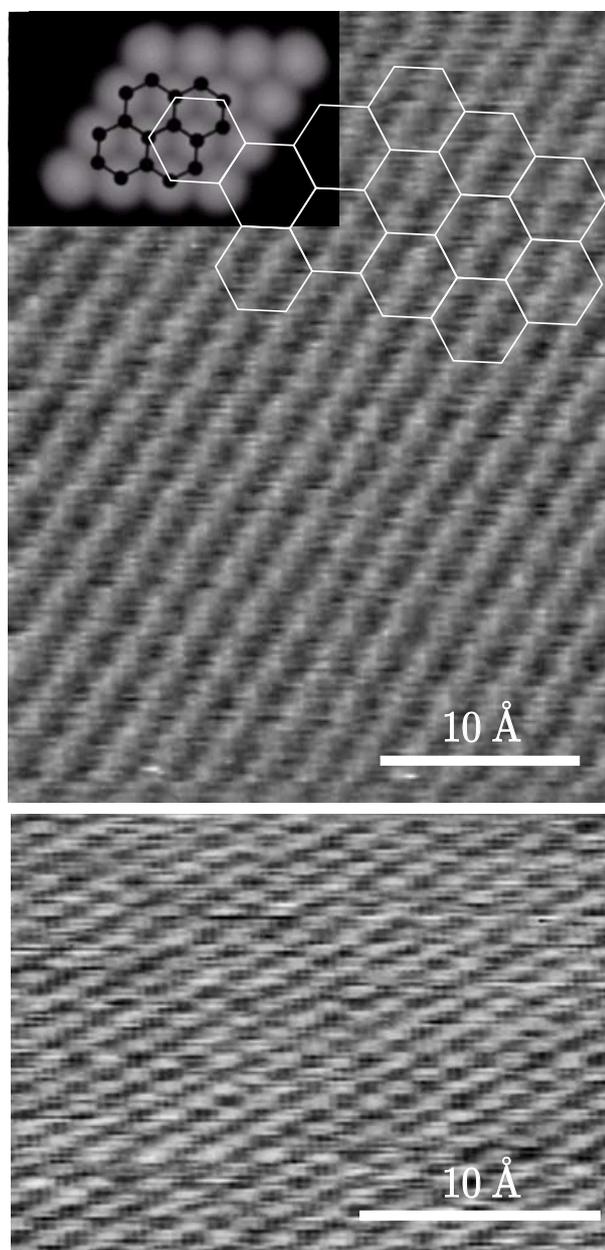


FIG. 8.19: Images obtenues avec le nouveau STM, à l'air sur un échantillon de HOPG. Les images n'ont pas subi de filtre informatique pour ôter le bruit. La dérive thermique est responsable de la déformation allongée des structures visibles. En encart, les boules blanches représenteraient l'image STM de cette zone avec les atomes de carbone (points noirs) en surimpression.

Conclusion

Durant ce projet de thèse, nous nous sommes intéressés aux propriétés magnétiques de nanostructures 2D déposées sur une surface métallique. En particulier, nous avons visé à : 1) comprendre, au niveau atomique, l'origine de l'énergie d'anisotropie magnétocristalline et 2) créer et étudier un réseau ultra-dense de nanostructures possédant des propriétés magnétiques homogènes (même axe d'aimantation facile et même énergie d'anisotropie).

Pour éviter les problèmes de pollution et d'oxydation, accentués par la taille réduite de nos nanostructures (< 2000 atomes), nos recherches ont été menées *in-situ* dans une enceinte à ultra haut vide (UHV). Les deux techniques de mesure que nous avons employées sont : le STM (Scanning Tunneling Microscope) et le SMOKE (Surface Magneto-Optical Kerr Effect). Le SMOKE nous a permis de mesurer les courbes de susceptibilité magnétique en fonction de la température, $\chi'(T)$, de nos échantillons. Toutefois, l'étude quantitative de ces courbes ne peut se faire sans connaître précisément les distributions en taille et en périmètre des nanostructures. Le STM est, de ce fait, un outil complémentaire indispensable qui permet la caractérisation morphologique des objets nanométriques et l'extraction de ces distributions. Il devient alors possible d'étudier la corrélation entre les propriétés magnétiques et la morphologie des nanostructures.

Le système Co/Pt(111) s'est révélé être un système idéal pour comprendre les origines de l'anisotropie magnéto-cristalline à l'échelle atomique dans les nanostructures 2D. Grâce au STM, nous avons pu étudier la croissance et la forme des îlots de Co en fonction des températures de dépôt et de recuit. C'est ainsi que nous avons appris à fabriquer des îlots de différentes formes : ramifiés, compacts et bi-couches. Nous avons pu montrer que la transition entre des îlots mono- et bi-couches s'effectue lorsque la température de recuit est supérieure à 330K. Les mesures SMOKE sur ces échantillons nous ont permis de tracer les courbes de susceptibilité magnétique en fonction de la température, $\chi'(T)$. Grâce à la grande dispersion en taille et en périmètre de ces îlots ainsi qu'aux relations non-linéaires les reliant, nous avons pu séparer les contributions des atomes du bord de ceux du centre de l'îlot dans l'expression de l'anisotropie magnétique. Ainsi, nous

avons pu démontrer que les atomes du centre possèdent une énergie d'anisotropie faiblement négative (favorable à un axe d'anisotropie dans-le-plan). Nous en avons déduit que l'énergie d'anisotropie positive liée aux interfaces Co/Pt + Co/vidé est contrebalancée par l'effet du champ démagnétisant très élevé, lié à la forme extra-plate des îlots. Les atomes du bord, quant à eux, possèdent une énergie d'anisotropie positive élevée (favorable à un axe d'anisotropie hors-plan) attribuable à leur plus faible coordination. Pour les trois formes d'îlots étudiées, nous avons trouvé une énergie d'anisotropie par atome du bord similaire, de l'ordre de 1 meV, soit 20 fois plus que la valeur mesurée dans Co massif. Au final, pour ces îlots de Co, les anisotropies des atomes du bord et ceux du centre agissent en sens contraire. Les premiers tendent à créer un axe d'aimantation facile hors-plan tandis que les seconds sont favorables à une aimantation dans-le-plan. Toutefois, la grande contribution positive des atomes de la périphérie l'emporte et confère aux îlots de Co sur Pt(111) un axe d'anisotropie hors-plan.

Cette découverte permet, par exemple, d'ajuster séparément l'anisotropie et le moment magnétique en jouant sur la forme de la nanostructure. Nous avons pu vérifier cela en fabricant des îlots de Co contenant un cœur non-magnétique de Pt. Comme prévu, ces îlots bi-métalliques ont révélé une énergie d'anisotropie identique et un moment inférieur aux îlots de Co purs de forme extérieure comparable.

Afin d'accroître l'énergie d'anisotropie positive des nanostructures de Co, et donc leur température de blocage, il suffirait, par exemple, de créer des nanostructures de forme allongée, tels des piliers verticaux. Dans cette géométrie, le champ démagnétisant est minimal lorsque l'aimantation est parallèle à l'axe de révolution ce qui se traduit par une énergie d'anisotropie des atomes du centre de cette nanostructure positive.

L'étude du système Co/Au(788) nous a permis de mesurer les propriétés magnétiques d'un réseau ultra-dense de nanoparticules magnétiques auto-assemblées. En faisant varier le recouvrement de Co, Θ , nous avons pu obtenir diverses distributions en taille. Pour $\Theta = 0.75$ ML, la distribution en taille des îlots est très piquée autour de la valeur moyenne de 250 atomes. Cette mono-dispersion se manifeste naturellement par une distribution d'énergie d'anisotropie magnétique très piquée elle aussi, avec une largeur à mi-hauteur de seulement 35%. Cette valeur est deux fois plus faible que la meilleure mesure obtenue à l'heure actuelle sur d'autres réseaux de nanoparticules auto-assemblées. La température de blocage de ces îlots est de 50K. Pour le recouvrement de 1.1 ML, la distribution en taille s'est révélée bimodale, signe d'un début de coalescence entre les plots de Co. La présence de ces deux populations d'îlots se manifeste dans la courbe $\chi'(T)$ par un double pic. Pour des recouvrements supérieurs, la coalescence s'accroît et finit par former des chaînes de Co orientées perpendiculairement aux marches de la vicinale. Finalement, à partir de la forme des courbes

$\chi'(T)$ et du calcul des champs démagnétisants et d'anisotropie, nous avons pu conclure que, malgré la densité de 26 Tdot/in², l'interaction dipolaire entre îlots est très faible. Ce résultat est encourageant pour les applications qui utiliseront des réseaux magnétiques ultra-denses.

A propos du projet de construction, nous avons montré le bon fonctionnement des deux STM à température variable que nous avons conçus et assemblés. Les tests effectués sur la nouvelle expérience sont très concluants. Le transfert de l'échantillon fonctionne très bien et la reproductibilité des contacts électriques est excellente.

Bibliographie

- [1] A. P. Alivisatos, *J. Phys. Chem.* **100**, 13226 (1996).
- [2] S. H. Tolbert et A. P. Alivisatos, *Rev. Phys. Chem.* **46**, 595 (1995).
- [3] E. W. Wong *et al.*, *Science* **277**, 1971 (1997).
- [4] T. Voissmeyer *et al.*, *J. Phys. Chem* **98**, 7665 (1994).
- [5] M. Bruchez Jr., M. Moronne, P. Gin, S. Weiss, et A. P. Alivisatos, *Science* **281**, 2013 (1998).
- [6] P. A. Buffat et J.-P. Borel, *Phys. Rev. A* **13**, 2287 (1976).
- [7] A. N. Goldstein *et al.*, *Science* **256**, 1425 (1992).
- [8] C. Schonenberger *et al.*, *Appl. Phys. A* **69**, 283 (1999).
- [9] W. Heisenberg, *Z. Phys.* **49**, 619 (1928).
- [10] F. Bloch, *Z. Phys.* **57**, 545 (1929).
- [11] J. C. Slater, *Phys. Rev.* **49**, 537 (1936).
- [12] E. C. Stoner, *Proc. R. Soc. A* **165**, 372 (1938).
- [13] H. Bethe, *Ann. Phys.* **3**, 133 (1929).
- [14] F. Bloch et G. Gentile, *Z. Phys.* **70**, 395 (1931).
- [15] H. Brooks, *Phys. Rev.* **58**, 909 (1940).
- [16] M. Julliere, *Phys. Lett. A* **54**, 225 (1975).
- [17] M. N. Baibich *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2472 (1988).
- [18] A. Moser *et al.*, *J. Phys. D* **35**, R167 (2002).
- [19] S. S. P. Parkin *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2304 (1990).
- [20] S. Litvinov *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.* **241**, 453 (2002).

- [21] S. Sun *et al.*, *Science* **287**, 1989 (2000).
- [22] M. Faraday, *Trans. R. Soc.* **5**, 592 (1846).
- [23] J. Kerr, *Phil. Mag* **3**, 321 (1877).
- [24] J. Kerr, *Phil. Mag* **5**, 161 (1878).
- [25] E. R. Moog, J. Zak, M. L. Huberman, et S. D. Bader, *Phys. Rev. B* **39**, 9496 (1989).
- [26] E. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids* (Academic Press, Orlando FL, 1985).
- [27] E. R. Moog, C. Liu, S. D. Bader, et J. Zak, *Phys. Rev. B* **39**, 6949 (1989).
- [28] H. R. Hulme, *Proc. R. Soc. London, Ser A* **135**, 237 (1932).
- [29] L. Onsager, *Phys. Rev* **37**, 405 (1931).
- [30] L. Onsager, *Phys. Rev* **38**, 2265 (1931).
- [31] M. Born et E. Wolf, *Principle of Optics* (Pergamon Press, 1970), 4th ed.
- [32] S. Sugano et N. Kojima, *Magneto-Optics* (Springer, 1970).
- [33] J. W. Lee *et al.*, *Rev. Sci. Instrum.* **71**, 3801 (2000).
- [34] Z. J. Yang et M. R. Scheinfein, *J. Appl. Phys.* **74**, 6810 (1993).
- [35] S. D. Bader, *J. Magn. Magn. Mater.* **100**, 440 (1991).
- [36] Z. Qiu et S. D. Bader, *J. Magn. Magn. Mater.* **200**, 664 (1999).
- [37] Z. Qiu et S. D. Bader, *Rev. Sci. Instrum.* **71**, 1243 (2000).
- [38] R. P. Hunt, *IEEE Trans. Magn.* **mag-5**, 700 (1969).
- [39] S. Huard, *Polarisation de la lumière* (Masson, 1994).
- [40] G. Binnig et H. Rohrer, *Helv. Phys. Acta* **55** (1982).
- [41] G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber, et E. Weibel, *Phys. Rev. Lett.* **49** (1982).
- [42] J. Bardeen, *Phys. Rev. Lett.* **6** (1961).
- [43] J. Tersoff et D. R. Hamann, *Phys. Rev. Lett.* **50**, 1998 (1983).
- [44] K. Besocke, *Surf. Sci.* **181** (1987).

-
- [45] H. Brune, H. Röder, K. Bromann, et K. Kern, *Thin Solid Films* **264**, 230 (1995).
- [46] B. Gasser, A. Menck, H. Brune, et K. Kern, *Rev. Sci. Instrum.* **67**, 1925 (1996).
- [47] T. A. Land *et al.*, *Appl. Phys. A* **53**, 414 (1991).
- [48] E. D. Lawrence *et al.*, *Handbook of Auger Electron Spectroscopy* (Perkin-Elmer Corporation, 1978), 2nd ed.
- [49] H. Schlichting et D. Manzel, *Rev. Sci. Instrum.* **64**, 2013 (1993).
- [50] W. Xu *et al.*, *J. Vac. Sci. Technol. B* **13**, 2372 (1995).
- [51] B. Khamsehpour *et al.*, *J. Vac. Sci. Technol. B* **14**, 3361 (1996).
- [52] J. Fujita *et al.*, *J. Appl. Phys.* **66**, 3064 (1995).
- [53] C. X. Guo et D. J. Thomson, *Ultramicroscopy* **42-44**, 1452 (1992).
- [54] A. D. Kent *et al.*, *Science* **262**, 1249 (1993).
- [55] S. Wirth et S. von Molnár, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 3283 (2000).
- [56] M. Faucher *et al.*, *Physica C* **368**, 211 (2002).
- [57] D. M. Eigler et E. K. Schweizer, *Nature* **344**, 524 (1990).
- [58] S.-W. Hla, K.-F. Braun, et K.-H. Rieder, *Phys. Rev. B* **67**, R201402 (2003).
- [59] J. I. Martín *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.* **256**, 449 (2003).
- [60] H. Brune, *Surf. Sci. Rep.* **31**, 121 (1998).
- [61] A. V. Voter et J. D. Doll, *J. Chem. Phys.* **80**, 5832 (1984).
- [62] K.-D. Shiang, C. M. Wei, et T. T. Tsong, *Surf. Sci.* **301**, 136 (1994).
- [63] C. L. Liu, J. M. Cohen, J. B. Adams, et A. F. Voter, *Surf. Sci.* **253**, 334 (1991).
- [64] H. Brune *et al.*, *Phys. Rev. B* **60**, 5991 (1999).
- [65] H. Brune *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1955 (1994).
- [66] W. Ostwald, *Z. Phys. Chem.* **34**, 495 (1900).
- [67] J. G. McLean *et al.*, *Phys. Rev. B* **55**, 1811 (1997).
- [68] J. B. Hannon *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2506 (1997).

- [69] H. Röder, E. Hahn, H. Brune, J. P. Bucher, et K. Kern, *Nature* **366**, 141 (1993).
- [70] J. P. Bucher, E. Hahn, P. Fernandez, C. Massobrio, et K. Kern, *Europhys. Lett.* **27**, 473 (1994).
- [71] H. Brune, M. Giovannini, K. Bromann, et K. Kern, *Nature* **394**, 451 (1998).
- [72] C. Kittel, *Rev. Mod. Phys.* **21**, 541 (1949).
- [73] L. Onsager, *Phys. Rev* **65**, 117 (1944).
- [74] C. M. Schneider, P. Bressler, P. Schuster, et J. Kirschner, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1059 (1990).
- [75] G. U. Kulkarni, K. R. Kannan, T. Arunarkavalli, et C. N. R. Rao, *Phys. Rev. B* **49**, 724 (1994).
- [76] T. Shinjo, *Surf. Sci. Rep.* **12**, 49 (1991).
- [77] L. Néel, *Journal de Physique et le Radium* **15**, 225 (1954).
- [78] O. Fruchart, P.-O. Jubert, C. Meyer, M. Klaua, J. Barthel, et J. Kirschner, *J. Magn. Magn. Mater.* **239**, 224 (2002).
- [79] W. Wernsdorfer *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1791 (1997).
- [80] P. F. Carcia *et al.*, *J. Appl. Phys.* **63**, 5066 (1988).
- [81] W. B. Zeper *et al.*, *J. Appl. Phys.* **65**, 4971 (1989).
- [82] F. J. A. den Broeder *et al.*, *Appl. Phys. A* **49**, 507 (1989).
- [83] B. N. Engel *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 1910 (1991).
- [84] N. Nakajima *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5229 (1998).
- [85] P. Gambardella *et al.*, *Science* **300**, 1130 (2003).
- [86] M. Jamet *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 4676 (2001).
- [87] C. S. Shern *et al.*, *Surf. Sci.* **429**, L497 (1999).
- [88] E. Lundgren, B. Stanka, W. Kropolin, M. Schmid, et P. Varga, *Surf. Sci.* **423**, 357 (1999).
- [89] P. Bulushek, S. Rusponi, et H. Brune (to be published).
- [90] E. Lundgren, B. Stanka, M. Schmid, et P. Varga, *Phys. Rev. B* **62**, 2843 (2000).

-
- [91] S. Ferrer, J. Alvarez, E. Lundgren, X. Torrelles, P. Fajardo, et F. Boschering, *Phys. Rev. B* **56**, 9848 (1997).
- [92] J. W. Evans et M. C. Bartelt, *Phys. Rev. B* **63**, 235408 (2001).
- [93] A. B. Klautau et S. Frota-Pessôa, *Surf. Sci.* **497**, 385 (2002).
- [94] B. Lazarovits, L. Szunyogh, et P. Weinberger, *Phys. Rev. B* **67**, 24415 (2003).
- [95] R. Wu, C. Li, et A. Freeman, *J. Magn. Magn. Mater.* **99**, 71 (1991).
- [96] D. Weller, G. R. Harp, R. F. C. Farrow, A. Cebollada, et J. Sticht, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 2097 (1994).
- [97] T. Cren, S. Rusponi, N. Weiss, M. Epple, et H. Brune (Soumis à *J. Chem. Phys.*).
- [98] D. Weller, G. R. Harp, R. F. C. Farrow, A. Cebollada, et J. Sticht, *Phys. Rev. B* **48**, 17538 (1993).
- [99] S. Esch, Ph.D. thesis, Jülich (1996).
- [100] P. Gambardella *et al.*, *Nature* **416**, 301 (2002).
- [101] R. W. Chantrell, N. Walmsley, J. Gore, et M. Maylin, *Phys. Rev. B* **63**, 024410 (2000).
- [102] C. Haginoya *et al.*, *J. Appl. Phys.* **85**, 8327 (1999).
- [103] C. Petit, A. Taleb, et M. P. Pileni, *J. Phys. Chem. B* **103**, 1805 (1999).
- [104] M. L. Plumer, J. van Ek, et D. Weller, *The Physics of Ultra-high-Density Magnetic Recording*, vol. 41 of *Springer Series in Surface Science* (Springer, Berlin, 2001).
- [105] S. I. Woods, J. R. Kirtley, S. Sun, et R. H. Koch, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 137205 (2001).
- [106] G. A. Held, G. Grinstein, H. Doyle, S. Sun, et C. B. Murray, *Phys. Rev. B* **64**, 012408 (2001).
- [107] C. T. Black, C. B. Murray, R. L. Sandstrom, et S. Sun, *Science* **290**, 1131 (2000).
- [108] B. Voigtländer, G. Meyer, et N. Amer, *Phys. Rev. B* **44**, 10354 (1991).
- [109] H. A. Dürr, S. S. Dhesi, E. Dudzik, D. Knabben, G. van der Laan, J. B. Goedkoop, et F. U. Hillebrecht, *Phys. Rev. B* **59**, R701 (1999).

- [110] S. Padovani, I. Chado, F. Scheurer, et J. P. Bucher, Phys. Rev. B **59**, 11887 (1999).
- [111] E. Dudzik, H. A. Dürr, S. S. Dhesi, G. van der Laan, D. Knabben, et J. B. Goedkoop, J. Phys.-Condens. Mat. **11**, 8445 (1999).
- [112] O. Fruchart, M. Klaua, J. Barthel, et J. Kirschner, Phys. Rev. Lett. **83**, 2769 (1999).
- [113] H. Brune, M. Giovannini, K. Bromann, et K. Kern, Nature **394**, 451 (1998).
- [114] S. L. Silva, C. R. Jenkins, S. M. York, et F. M. Leibsle, Appl. Phys. Lett. **76**, 1128 (2000).
- [115] J. Shen, R. Skomski, M. Klaua, H. Jenniches, S. S. Manoharan, et J. Kirschner, J. Appl. Phys. **81**, 3901 (1997).
- [116] D. D. Chambliss, R. J. Wilson, et S. Chiang, Phys. Rev. Lett. **66**, 1721 (1991).
- [117] B. Voigtländer, G. Meyer, et N. M. Amer, Surf. Sci. Lett. **255**, L529 (1991).
- [118] E. I. Altman et R. J. Colton, Surf. Sci. Lett. **304**, L400 (1994).
- [119] A. Stephenson, C. Baddeley, M. Tikhov, et R. Lambert, Surf. Sci. **398**, 172 (1998).
- [120] J. V. Barth, H. Brune, G. Ertl, et R. J. Behm, Phys. Rev. B **42**, 9307 (1990).
- [121] J. A. Meyer, I. D. Baikie, E. Kopatzki, et R. J. Behm, Surf. Sci. **365**, L647 (1996).
- [122] C. Tölkes, P. Zeppenfeld, M. A. Krzyzowski, R. David, et G. Comsa, Phys. Rev. B **55**, 10932 (1997).
- [123] V. Repain *et al.*, Appl. Surf. Sci. **162**, 30 (2000).
- [124] V. Repain, G. Baudot, H. Ellmer, et S. Rousset, Europhys. Lett. **58**, 730 (2002).
- [125] V. Repain *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 5367 (2000).
- [126] D. Zhang, K. J. Klabunde, C. M. Sorensen, et G. C. Hadjipanayis, Phys. Rev. B **21**, 14167 (1998).
- [127] P. Beauvillain *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **121**, 503 (1993).
- [128] T. Koide *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 257201 (2001).

Remerciements

J'aimerais remercier mon directeur de thèse Harald Brune qui m'a donné l'opportunité d'effectuer cette recherche au sein de son groupe et d'être, par la même occasion, son premier doctorant.

Je veux remercier Stefano Rusponi avec qui j'ai travaillé pendant ces quatre années et qui a supervisé ce travail. Je veux le remercier pour son encadrement, ses compétences expérimentales et pour toutes nos discussions techniques qui nous ont permis de trouver des solutions optimales lors de la conception de la nouvelle expérience. Je veux aussi remercier Tristan Cren pour toutes les lumières qu'il a su apporter à nos problèmes et pour toutes ses discussions scientifiques fort enrichissantes.

Je veux remercier toute la fine équipe de doctorants et post-docs adeptes de la Banane et avec qui nous avons passé de savoureux moments : Fabien Silly, Sarah Longwitz, Sylvain Clair, Christian Klinke, Eric le Viking, Stephane Pons et Katharina Franke.

Je tiens aussi à remercier les autres membres du groupe qui ont su contribuer à l'atmosphère de travail agréable et détendue : Max Epple, Philipp Bulushek, Laurent Claude, Pietro Gambardella et Imad Arfaoui.

La réalisation de ce travail n'aurait pas été possible sans le concours de l'équipe technique. Un grand merci à Dédé, Claude Blanc, Philippe Zürcher, Gilles Grandjean, Pascal Cattin, Michel Fazan et Claude Amendola pour la réalisation des pièces mécaniques, aussi compliquées furent elles. Merci à Martial Doy pour son support informatique et à Philippe Cordey et José Grandjean pour leurs prouesses en électronique. Je remercie finalement Françoise Jenny, Claire-Lise Bandelier et Andrée Schläfli pour leur support technique et administratif.

Curriculum vitae

Nom : Nicolas Weiss
Nationalité : Français
Date de naissance : 28/07/1977

Etudes

avril 2004 Docteur ès science, EPFL

avril 2000 Diplôme Ingénieur Physicien, EPFL
Travail de diplôme : *Etude des propriétés d'émission de champ de films structurés de nanotubes de carbone.*
Responsables : Dr. J.-M. Bonard et Prof. A. Châtelain

juin 1995 Bac Scientifique avec mention Bien, Lycée International de Ferney-Voltaire (France)

Publications

The remarkable difference between surface and step atoms in the magnetic anisotropy of 2D nanostructures, S. Rusponi, T. Cren, N. Weiss, M. Epple, P. Bulushek, L. Claude et H. Brune, Nature Materials 2, 546 (2003).

Magnetism of ultra-high density Co cluster superlattices on Au(788), N. Weiss, T. Cren, M. Epple, S. Rusponi, H. Brune, G. Baudot, V. Repain et S. Rousset, soumis à Applied Physics Letters.

Oxidation induced enhanced magnetic susceptibility of Co/Pt(111), T. Cren, S. Rusponi, N. Weiss, M. Epple et H. Brune, soumis à Journal of Chemical Physics.

Spin-polarized STM to read individual magnetic nanoparticles, S. Rusponi, N. Weiss, T. Cren, M. Epple et H. Brune, soumis à Journal of Applied Physics.