

Etude par DAFS de la structure locale des couches épitaxiées (travail de thèse d'Ovidiu Ersen soutenue en décembre 2001) (collaboration avec H. Renevier de l'ESRF et A. Marty du DRFMC-CEA Grenoble)

Depuis la découverte des techniques de dépôt sous ultraviolet, l'étude des structures artificielles constituées de films minces est en pleine effervescence, en particulier du fait de leurs nombreuses applications potentielles. Les contraintes induites par l'épitaxie sur des substrats monocristallins et la mobilité atomique en surface permettent de stabiliser des structures cristallographiques anisotropes soit inexistantes dans les diagrammes de phase des massifs, soit difficiles à obtenir sous la forme d'un monocristal (un seul variant) en utilisant les techniques de préparation classiques. Comme les propriétés magnétiques sont sensibles à l'environnement local, ces structures peuvent présenter des propriétés magnétiques nouvelles, différentes de celles des alliages massifs. En particulier, les couches minces à base de Co et de Pt sont susceptibles de développer de fortes énergies d'anisotropie magnétocristalline, et par conséquent peuvent être envisagées pour l'enregistrement magnéto-optique à haute densité (limite superparamagnétique repoussée à des tailles plus petites).

Système CoPt avec direction de croissance [001]

L'intérêt de l'étude des alliages CoPt à la stoechiométrie 50/50 est lié à la présence de la phase $L1_0$, très anisotrope cristallographiquement et magnétiquement, dans le diagramme de phase des alliages massifs à l'équilibre. Cependant, il est difficile de la préparer comme alliage massif sous la forme d'un seul variant, car les 3 directions de mise en ordre sont équiprobables (la phase $L1_0$ AB est formée à partir d'un cubique à faces centrées en alternant des plans purs de A et de B le long d'une direction de type $\langle 001 \rangle$). Un champ magnétique intense (10 T) ou une pression uniaxiale conséquente (40 MPa) doivent être appliqués pendant le recuit pour permettre la mise en ordre en un seul variant d'une phase $L1_0$. La préparation par MBE sur substrat *ad hoc* (avec une croissance de l'alliage selon la direction [001]) permet d'obtenir majoritairement le variant dont l'axe de mise en ordre est l'axe de croissance, qui est favorisé par les contraintes entre le substrat monocristallin et la couche d'alliage, d'une part, et par les interactions et la ségrégation de surface, d'autre part.

Le paramètre d'ordre maximum atteint, déterminé à partir de l'intensité des raies de surstructure par diffraction des rayons X, est égal à 0.75. Dans les massifs, les paramètres d'ordre observés sont compris entre 0.85 et 1, car la transition ordre-désordre est fortement du premier ordre. Comme le paramètre d'ordre des couches est inférieur à la valeur minimum d'équilibre, deux microstructures différentes sont envisageables: la première correspond à un état d'ordre homogène (dans ce cas, une seule phase partiellement ordonnée est présente dans les échantillons), alors que la deuxième est associée à un état d'ordre inhomogène (où le paramètre d'ordre déterminé par diffraction est un paramètre apparent, lié à la présence d'un mélange de phase ordonnée et désordonnée). La microscopie électronique en transmission a montré que les grains dont la direction de croissance est [001] sont les seuls ordonnés. Les images en champ sombre obtenues en sélectionnant la tache de diffraction correspondant à l'ordre sont peu concluantes : elles montrent que les grains [001] sont inhomogènes, mais les zones de l'échantillon qui apparaissent en sombre peuvent être attribuées à des zones légèrement désorientées. Par conséquent, la microscopie électronique n'est pas capable de choisir entre les deux états d'ordre (homogène ou inhomogène) possibles dans nos couches d'alliage CoPt.

Pour décrire l'état d'ordre local des couches minces d'alliage CoPt et (Co,Fe)Pt préparées par MBE, nous avons mesuré les oscillations de l'intensité de diffraction au voisinage d'un seuil d'absorption (DAFS: diffraction absorption fine structure). Cette technique est très appropriée aux cas de phases ordonnées ou de mélanges de phases, car elle permet de déterminer les concentrations vraies (sur le réseau cristallin) des différentes phases,

ainsi que l'environnement de chaque élément dans la phase choisie en analysant les oscillations après seuil par une méthode d'analyse semblable à l'EXAFS.

Dans notre cas, l'analyse de la structure locale enregistrée simultanément sur les pics de surstructure (associé à l'ordre chimique) et fondamental (associé au réseau cristalin) permet de distinguer entre les deux microstructures possibles et de vérifier ainsi l'homogénéité des couches. Cette homogénéité est cruciale car la prochaine étape que nous avons envisagé est de nanostructurer ces couches magnétiques (par lithographie électronique et gravure ionique, ainsi que par irradiation ionique sélective).

CoPt

Afin de déterminer les environnements des atomes de Pt et de Co dans les phases ordonnée et désordonnée, des spectres DAFS ont été enregistrés à l'ESRF (ligne BM02) aux seuils K de Co et L_{III} de Pt pour les raies fondamentale et de surstructure, avec la polarisation du faisceau incident orientée soit dans le plan des couches, soit perpendiculairement à ce plan. Nous avons choisi un échantillon CoPt déposé directement sur substrat de MgO. L'analyse détaillée au premier ordre des 8 spectres obtenus (figures) a révélé que le pourcentage de phase désordonnée est négligeable et que le paramètre d'ordre dans la phase ordonnée est similaire à celui déterminé par diffraction de rayons X, ce qui signifie que les parois d'antiphase ne sont pas nombreuses dans cet échantillon. Ce sont d'autres défauts qui sont responsables de la valeur plus faible du paramètre d'ordre dans les couches épitaxiées. Une publication est en cours de rédaction.

(Co,Fe)Pt

Dans le contexte de l'étude des alliages ternaires de type (Co,Fe)Pt (étude motivée par le fait que la présence du Fe peut modifier considérablement les propriétés magnétiques des couches), des mesures DAFS ont été effectuées sur un échantillon Co_xFe_{1-x}Pt préparé par MBE en utilisant les conditions de dépôt optimales trouvées pendant l'étude des alliages CoPt. Les spectres ont été enregistrés aux seuils K de Co et Fe, et au seuil L_{III} de Pt, sur les raies fondamentale et de surstructure. Ils nous ont permis de montrer que la concentration relative du Fe par rapport au Co est différente de celle attendue (30at% au lieu de 50 at%). Ceci est dû à l'utilisation d'une cible de CoFe (notre installation de MBE ne comporte que deux canons électroniques) et à l'incertitude sur la composition évaporée du fait de la forme du diagramme de phase binaire Fe-Co (liquidus très plat). L'analyse des résultats en terme d'environnements des atomes de Fe et de Co dans les phases présentes est en cours.

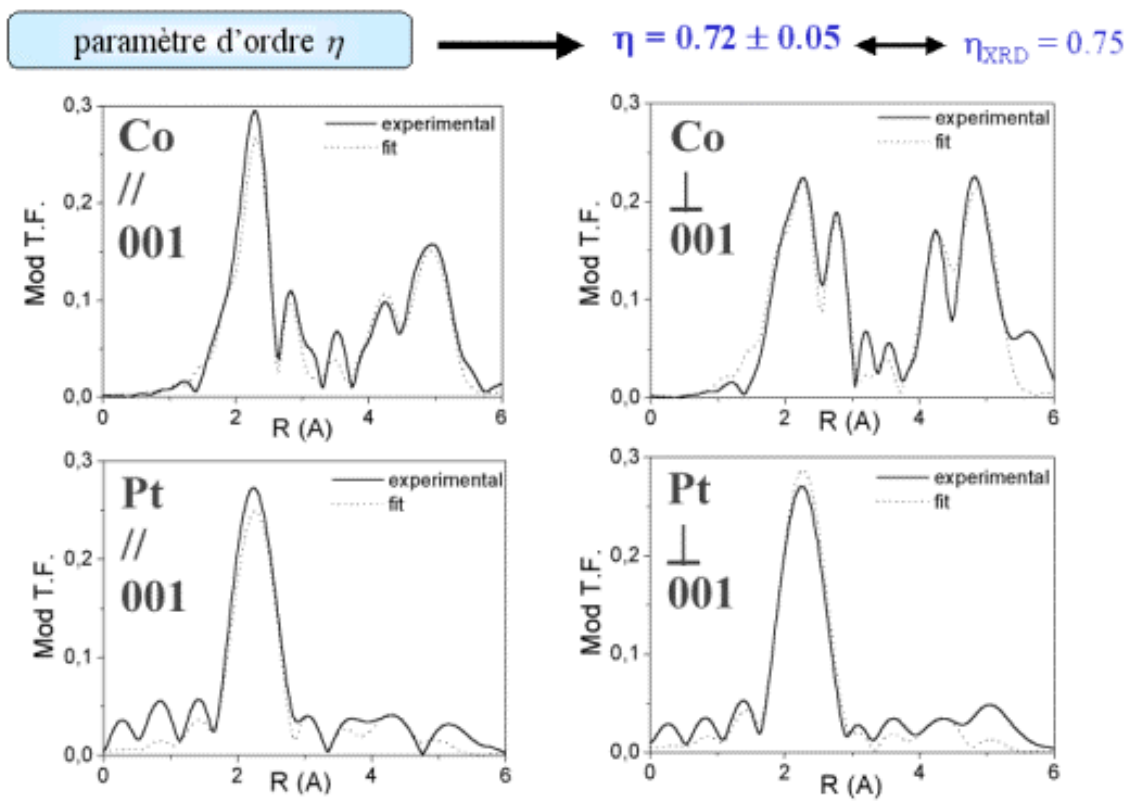


Fig. 3-1 : Transformée de Fourier des parties oscillantes de la Diffraction Anomale sur le pic (001) de CoPt aux seuils du cobalt et du platine ainsi que leur ajustement par FEFFIT

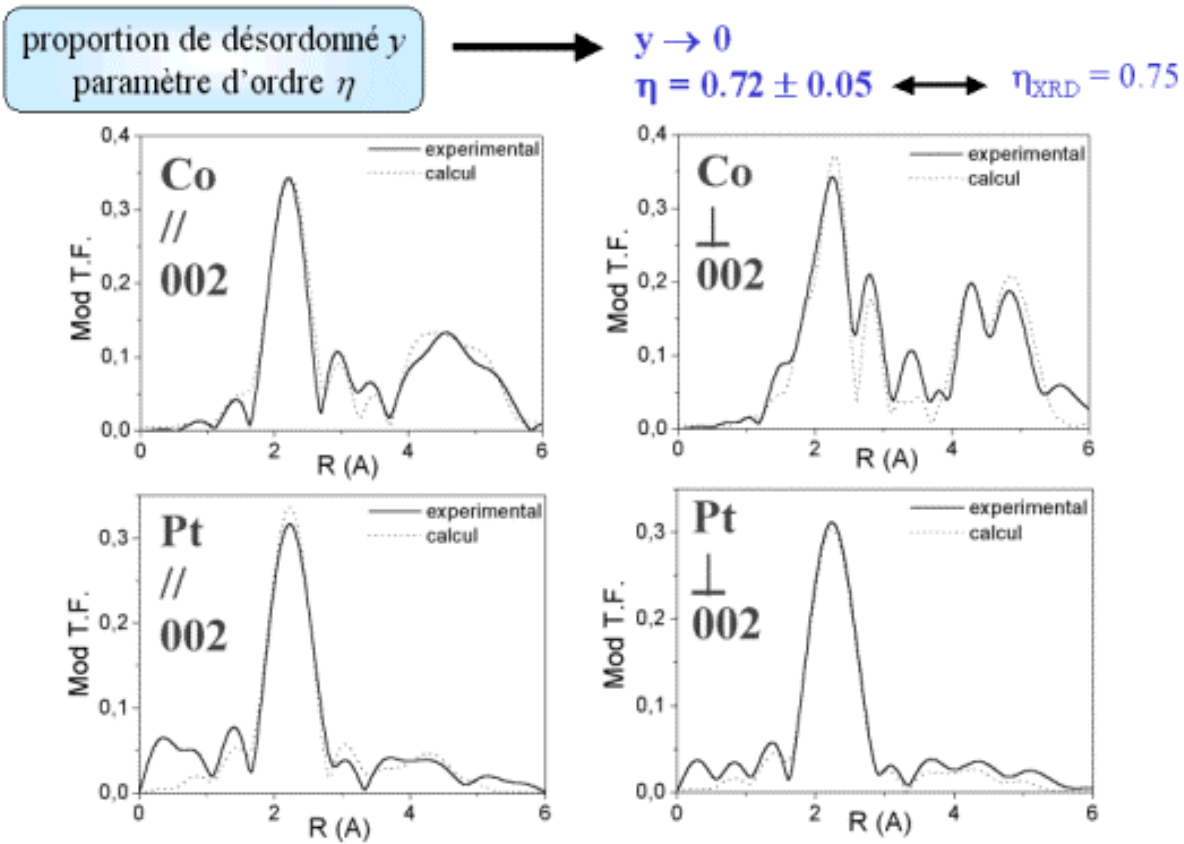


Fig. 3-2 : Transformée de Fourier des parties oscillantes de la Diffraction Anomale sur le pic (002) de CoPt aux seuils du cobalt et du platine ainsi que leur ajustement par FEFFIT