



**HAL**  
open science

# Etude de couches minces magnétiques par réflectivité de neutrons polarisés. Diffusion hors spéculaire sur des structures périodiques.

Frédéric Ott

► **To cite this version:**

Frédéric Ott. Etude de couches minces magnétiques par réflectivité de neutrons polarisés. Diffusion hors spéculaire sur des structures périodiques.. Matière Condensée [cond-mat]. Université Paris Sud - Paris XI, 1998. Français. NNT: . tel-00429503

**HAL Id: tel-00429503**

**<https://theses.hal.science/tel-00429503>**

Submitted on 3 Nov 2009

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

N° d'ordre :

Orsay 1998

Université de Paris Sud  
U.F.R Scientifique d'Orsay

***Thèse***

présentée par

***Frédéric OTT***

pour obtenir le titre de

**Docteur de l'Université Paris XI Orsay**

Spécialité : **Physique des Solides**

Etude de couches minces magnétiques par  
réflectivité de neutrons polarisés.  
Diffusion hors spéculaire sur des structures périodiques.

*Soutenue le 26 novembre 1998*

*Composition du jury :*

Président : Alain GIBAUD  
Rapporteurs : Philippe MANGIN  
Francis TASSET  
Examineurs : Claude CHAPPERT  
Claude FERMON  
Jacques FERRE

Thèse préparée au CEA Saclay  
au sein du Laboratoire Léon Brillouin

Deuxième Edition  
Juillet 2000

*Laboratoire Léon Brillouin CEA/CNRS*

# ***Remerciements***

Je remercie Claude Fermon et Jacques Ferré d'avoir dirigé mon travail de thèse. J'ai particulièrement apprécié la grande liberté qui m'a été accordée. Cela m'a permis d'aborder des domaines de la physique très variés et de m'ouvrir de nombreux horizons.

Je remercie Charles-Henri de Novion et Jacques Hamman, directeurs du Laboratoire Léon Brillouin et du Service de l'Etat Condensé, qui en m'accueillant dans leurs services, m'ont permis de réaliser ma thèse dans de très bonnes conditions matérielles.

Je remercie Messieurs les membres du jury, Claude Chappert, Alain Gibaud, Philippe Mangin et Francis Tasset d'avoir accepté de juger mon travail.

Je remercie Alain Menelle qui m'a initié à la réflectivité de neutrons en temps de vol et a énormément contribué aux mesures de diffusion hors spéculaire.

Je remercie Gilbert Salczer pour son aide en ellipsométrie.

Je remercie Gérard Francinet, Gérald Saux, Maurice Eisenkremer, Claudine Chaleil, et Pierre-François Orfila pour leur aide technique.

J'ai eu l'occasion d'utiliser de nombreux équipements disponibles dans d'autres groupes, je remercie leurs responsables de m'y avoir laissé accéder : Eric Vincent, Jean Daillant, Jean-Jacques Benattar.

Et je remercie tout particulièrement l'ensemble du groupe RMN du SPEC avec lequel le travail a toujours été un plaisir, Jacques-François Jacquinet, Gérard Francinet, Hans Glattli, Corinne Miramond, Gérald Saux, Michel Viret, Patrick Warin, Vianney Wittenberger...



# Sommaire

<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>I. La réflectivité de neutrons polarisés avec analyse de polarisation.</b>	<b>9</b>
<b>A. Interaction neutron-matière.</b>	<b>9</b>
1. Le neutron.	9
2. Potentiels d'interaction neutron-matière.	10
3. Propagation d'un neutron dans un champ magnétique uniforme.	12
<b>B. Les techniques de réflectivité.</b>	<b>20</b>
1. Indice optique en neutrons.	20
2. Réflexion totale, angle critique.	21
3. Détermination des longueurs de diffusion et de l'indice optique.	22
4. Réflexion sur un milieu homogène.	23
5. Réflexion sur un système multicouche.	24
<b>C. Réflectivité d'un système de couches minces magnétiques.</b>	<b>27</b>
1. Informations accessibles en réflectivité de neutrons polarisés avec analyse de polarisation.	27
2. Géométrie de réflectivité.	29
3. Réflexion sur un système de couches magnétiques idéales : homogènes et sans rugosité.	29
4. Illustration de la réflectivité de neutrons polarisés sur un dioptre magnétique.	35
5. Sensibilité de la technique de réflectivité de neutrons polarisés dans la détermination de profils d'aimantation.	42
6. Inversion des profils expérimentaux.	45
7. Réflexion sur des couches non idéales.	50
<b>D. Description des dispositifs expérimentaux.</b>	<b>56</b>
1. Description du spectromètre PADA (G.2.2) du Laboratoire Léon Brillouin.	56
2. Utilisation pratique du spectromètre PADA.	61
3. Traitement des erreurs expérimentales.	62
<b>E. Nouvelle technique de mesure de cycles d'hystérésis par réflectivité de neutrons polarisés.</b>	<b>68</b>
1. Intérêt de faire des mesures des cycles d'hystérésis par réflectivité de neutrons.	68
2. Exemples de calculs théoriques.	69
3. Exemples d'un système de couches magnétiques simples.	71
4. Exemple d'un système de bicouches magnétiques.	74
5. Conclusion et perspective.	77
<b>F. Effet de l'énergie Zeeman dans les mesures de réflectivité de neutrons polarisés.</b>	<b>78</b>
1. Séparation spatiale.	78
2. Asymétrie des signaux de spin-flip non symétriques dans les mesures de réflectivité.	79
3. Effet des gradients de champ	80
<b>G. Problème de polarisation du faisceau de neutrons.</b>	<b>81</b>
1. Quelques mesures expérimentales.	81
2. Origine de l'effet et correction du problème.	82
<b>H. Conclusion</b>	<b>83</b>

<b>II. Détermination d'informations magnétiques vectorielles par technique magnéto-optique.</b>	<b>87</b>
<b>A. Effets magnéto-optiques. Définitions et terminologie.</b>	<b>87</b>
<b>B. Réflectivité d'un système de multicouches non isotropes.</b>	<b>89</b>
1. Notations et formalisme.	89
2. Propagation d'une onde plane dans un milieu non isotrope.	90
3. Réflectivité optique d'un système de multicouches.	93
<b>C. Dispositif expérimental de mesures par effet Kerr.</b>	<b>95</b>
1. Description générale du montage.	95
2. Description du modulateur électro-optique.	96
<b>D. Détermination des composantes planaires de l'aimantation d'un film mince par technique magnéto-optique.</b>	<b>97</b>
1. Méthode utilisant une rotation du champ magnétique.	97
2. Détermination de la direction de l'aimantation sans rotation du champ magnétique extérieur.	99
3. Conclusion.	104
<b>E. Obtention d'informations magnétiques résolues en profondeur par technique magnéto-optique.</b>	<b>106</b>
1. Technique basée sur le principe de l'analyseur tournant.	106
2. Approche plus systématique.	108
<b>F. Parallèle entre les techniques magnéto-optiques et de réflectivité de neutrons.</b>	<b>112</b>
<b>G. Conclusion.</b>	<b>114</b>
<b>III. Détermination de profils d'aimantation dans des multicouches magnétiques soumises à des déformations mécaniques.</b>	<b>117</b>
<b>A. Les anisotropies magnétiques.</b>	<b>117</b>
1. Energie magnéto-cristalline.	117
2. Energie d'anisotropie de forme.	118
3. Energie magnéto-élastique.	119
4. Relations entre les constantes magnéto-élastiques et les constantes de magnétostriction.	121
5. Comportement magnétique de couches minces soumises à des contraintes de déformation.	122
<b>B. Profils de constantes magnéto-élastiques dans des couches simples de nickel.</b>	<b>123</b>
1. Détermination de profils d'aimantation dans des couches simples de nickel soumises à des déformations mécaniques.	125
2. Modélisation des résultats par un gradient de constantes ME.	130
3. Conclusion.	133
<b>C. Création de couplages magnétiques quadratiques dans des systèmes de tricouches par application de déformations mécaniques.</b>	<b>133</b>
1. Système d'alliage nickel-fer à composition modulée.	134
2. Effet de déformations mécaniques sur des systèmes de bicouches avec espaceur non magnétique.	137
<b>D. Conclusion.</b>	<b>141</b>
<b>IV. Problèmes à deux dimensions : diffusion sur des structures lithographiées.</b>	<b>145</b>
<b>A. Approximation de Born.</b>	<b>145</b>
1. Equation intégrale de la diffusion.	145
2. Approximation de Born.	147
3. Développement de Born.	148
4. Approximation de Born généralisée. Distorted Wave Born Approximation (DWBA).	149

<b>B. Calcul dynamique de la diffraction par un réseau.</b>	<b>151</b>
1. Cas non magnétique.	151
2. Cas magnétique.	155
<b>C. Techniques de lithographie de réseaux.</b>	<b>162</b>
1. Principe de la technique.	162
2. Résultats expérimentaux.	163
<b>D. Utilisation de réflectomètres en diffusion hors spéculaire.</b>	<b>167</b>
1. Géométrie de diffusion hors spéculaire.	167
2. Condition de diffraction.	167
3. Augmentation de la période effective d'un réseau.	168
4. Les différents modes de mesure sur un spectromètre deux axes.	171
5. Les différents modes de mesure sur un spectromètre en temps de vol.	172
6. Fonction de résolution du spectromètre EROS.	173
<b>E. Diffusion hors spéculaire sur des structures lithographiées.</b>	<b>174</b>
1. Influence des différents paramètres d'un réseau sur les modes de diffraction.	174
2. Diffusion sur des réseaux lithographiés. Comparaison entre mesures expérimentales et simulations numériques.	176
3. Augmentation des efficacités de diffraction.	183
4. Conclusion.	189
<b>F. Etude par diffusion hors spéculaire de neutrons du comportement magnétique de nanostructures lithographiées.</b>	<b>190</b>
1. Diffraction sur des réseaux de lignes lithographiées.	191
2. Diffraction de surface sur un réseau de domaines magnétiques ordonnés.	196
3. Conclusion.	200
<b>G. Utilisation de supermiroirs gravés pour l'analyse en énergie d'un faisceau de neutrons.</b>	<b>201</b>
1. Principe du système d'analyse par réseau gravé.	201
2. Problèmes de résolution et optimisation du dispositif.	202
<b>H. Conclusion.</b>	<b>203</b>
 <b>Conclusions et perspectives.</b>	 <b>205</b>
 <i>Annexe A : Interaction neutron-couche magnétique infinie.</i>	 <i>213</i>
<i>Annexe B : Calcul de la réflectivité optique d'un système de couches minces.</i>	<i>215</i>
<i>Annexe C : Fonction de transfert d'un ellipsomètre à polariseur tournant.</i>	<i>217</i>
<i>Annexe D : Détails du calcul dynamique de la diffraction sur un grating et description de l'implémentation numérique.</i>	<i>219</i>
<i>Annexe E : Analyse d'un faisceau de neutrons par utilisation d'un dispositif de Stern-Gerlach : analyse de spin et analyse en énergie.</i>	<i>222</i>
 <b>Références bibliographiques.</b>	 <b>231</b>



# ***Introduction***



## ***Introduction***

Lors de la dernière décennie, des phénomènes nouveaux et inattendus ont été découverts dans le domaine du magnétisme des couches minces. Dans les années 80, des progrès importants ont été faits dans le domaine des films minces magnétiques liés au besoin de moyens d'enregistrements de données performants pour les secteurs de l'électronique. A la fin des années 80, la fabrication de structures artificielles à l'échelle atomique a conduit à l'effet de magnéto-résistance géante (GMR) (Baibich, 1988). Cela a provoqué un regain d'enthousiasme dans le domaine de la recherche fondamentale : les nouvelles techniques de dépôts sous ultra-vide permettent de créer des systèmes magnétiques présentant des propriétés physiques inédites. Parmi les autres nouveaux domaines d'études on trouve aussi : les anisotropies de surface (couches ultraminces de Fe, Ni, Co...), les couplages magnétiques (couplage d'échange oscillant entre couches minces magnétiques), les ordres magnétiques complexes (super-réseaux de terres rares), le magnétisme d'interface (magnétisme de monocouches atomiques).

La fabrication de systèmes magnétiques modèles était accessible (multicouches  $[\text{Fe}/\text{Cr}]_n$  à couplage oscillant, sandwiches  $[\text{Au}/\text{Co}/\text{Au}]$  ou  $[\text{Pt}/\text{Co}/\text{Pt}]$  pour l'étude des anisotropies de surface, ordre ferromagnétique et hélicoïdal dans des superréseaux de terres rares  $[\text{Y}/\text{Dy}/\text{Y}]$  ou  $[\text{Er}/\text{Dy}/\text{Er}]$ ). Il fallait cependant pouvoir mesurer les propriétés de ces systèmes. Les méthodes expérimentales « classiques » de mesures magnétiques étaient essentiellement globales (VSM, SQUID, AGFM) et ne donnaient pas d'information sur le comportement local du magnétisme. Certaines techniques ont été adaptées pour mesurer des propriétés magnétiques de films très minces (résonance ferromagnétique pour l'étude des anisotropies et RMN de surface par exemple). Un certain nombre d'outils permettant d'imager le magnétisme de films minces ont été améliorés voire inventés : imagerie magnéto-optique (résolution submicronique), microscopie à force de Lorentz (Chapman, 1984), Microscopie à Force Magnétique (MFM), microscope électronique à balayage avec analyse de polarisation SEMPA (Scheinfein, 1990)... Par ailleurs, un certain nombre d'outils permettent de mesurer un magnétisme sélectif en espèce chimique (Dichroïsme circulaire magnétique XDCM, effet Mössbauer sur le fer).

De nouvelles techniques d'étude des films minces magnétiques émergent encore actuellement : génération de second harmonique en optique pour l'étude des interfaces, diffraction aux petits angles en rayons X, réflectivité X magnétique, magnetic scanning tunnelling microscopy (MSTM) (Wiesendanger, 1990), microscopie optique en champ proche (SNOM).

Les neutrons ont toujours été un outil de choix pour les études de structures magnétiques. Ils ont naturellement trouvé leur application dans l'étude des films minces. Dans la panoplie d'outils d'études de films minces magnétiques cités

précédemment, la réflectivité de neutrons polarisés avec analyse de polarisation est la seule technique actuelle directe permettant de déterminer des profils du vecteur aimantation résolu en profondeur dans des couches minces magnétiques. Une des premières suggestions de l'utilisation des neutrons pour l'étude des couches minces magnétiques émane de (Felcher, 1987). Depuis cette période un certain nombre de spectromètres de neutrons polarisés ont été construits à travers le monde : à l'Intense Pulsed Neutron Source (IPNS) Argonne National Laboratory, au laboratoire ISIS, au Laboratoire Léon Brillouin à Saclay, au HMI à Berlin, à l'Institut Laue Langevin (ILL)... Ce type de spectromètre fait maintenant partie de la panoplie indispensable de tout laboratoire de neutronique.

Une évolution récente dans le domaine des couches minces est l'intérêt croissant porté au comportement magnétique de petits objets de taille nanométrique (Hehn, 1997 ; Miramond, 1997 ; Fruchart, 1998) . Dans ces cas, les techniques de mesure deviennent plus délicates que dans le cas de films minces continus : les quantités de matière en jeu deviennent infimes ; on souhaite mesurer les propriétés magnétiques très localement. Certaines des techniques de mesure citées précédemment peuvent encore s'appliquer à l'étude de ces nanostructures, en particulier les techniques d'imagerie. Cependant les techniques d'imagerie ne donnent que des informations qualitatives sur l'aimantation (up ou down).

La diffusion de neutrons n'a pas encore été appliquée à l'étude de telles structures faute de techniques de calcul appropriées mais la diffusion non spéculaire de neutrons possède un potentiel lui permettant de déterminer (dans l'espace réciproque) des structures magnétiques de manière quantitative. On peut envisager des mesures de magnétométrie 3D sur des nanostructures magnétiques périodiques qui donnent des informations magnétiques avec à la fois une résolution magnétique latérale (de 10 nm à 10  $\mu$ m) dans le plan du substrat et en profondeur dans l'épaisseur du film mince.

\* \* \*

Ce travail de thèse développe la technique de réflectivité de neutrons polarisés avec analyse de polarisation appliquée à l'étude de films minces magnétiques.

Dans le premier chapitre nous présenterons un formalisme permettant de décrire la réflectivité de neutrons polarisés (PNR) sur un système magnétique en couches minces. Ce formalisme est un traitement dynamique de la diffusion qui tient compte des effets du champ extérieur appliqué.

Nous discuterons les différentes utilisations de la PNR et en particulier nous présenterons les possibilités ouvertes en magnétométrie des couches minces.

Des effets liés à l'énergie Zeeman ont récemment été observés en réflectivité de neutrons polarisés . Nous montrerons que le formalisme développé dans ce chapitre permet de les décrire quantitativement.

Dans le deuxième chapitre, nous faisons le parallèle entre la réflectivité de neutrons et les techniques de magnéto-optique. En particulier nous présenterons un formalisme matriciel similaire à celui des neutrons et qui permet de calculer la réponse d'un système de couches magnétiques quelconque.

Pour faire le pendant avec les possibilités offertes par la PNR présentées au chapitre 1, nous discuterons une technique permettant de déterminer la direction de l'aimantation dans un film mince. Nous explorerons ensuite le potentiel des méthodes magnéto-optiques pour la *détermination de profils d'aimantation en profondeur* dans des couches minces et nous proposerons des systèmes dans lesquels ce type de mesures pourrait être validé.

Dans le troisième chapitre nous montrons des exemples de mesures de PNR sur des films minces soumis à des contraintes mécaniques. Nous montrons que l'utilisation de la réflectivité de neutrons polarisés avec analyse de polarisation permet de déterminer des profils d'aimantation relativement précis sur des systèmes de couches simples. Cela contraste avec les études plus classiques sur des systèmes de multicouches périodiques. Nous montrons des exemples de mesures sur des systèmes de couches simples de nickel et de tricouches soumises à des contraintes mécaniques.

Pour conclure, dans le quatrième chapitre nous nous intéressons à la réflectivité non spéculaire en réflectivité de neutrons. Les systèmes étudiés sont des systèmes modèles à « rugosité contrôlée » : des réseaux lithographiés dans des systèmes de couches minces dont nous présentons brièvement les techniques de fabrication.

Un formalisme basé sur un calcul dynamique associé à une formulation matricielle est développé. Nous vérifierons expérimentalement que ces algorithmes de calcul s'appliquent dans le cas de réseaux très profonds. L'utilisation de réseaux gravés en optique neutronique et en particulier leur application potentielle comme analyseur en énergie est discutée.

Nous développerons ensuite un formalisme pour calculer *la diffusion non spéculaire dans le cas de structures magnétiques*. Ce formalisme permet de traiter deux types de problèmes nouveaux :

- la détermination de structures magnétiques périodiques dans le plan, ayant pour origine soit une autoorganisation en lignes des domaines magnétiques ou bien la création artificielle de motifs magnétiques par lithographie.
- la diffusion non spéculaire magnétique due à l'existence de domaines magnétiques.

Nous montrerons qu'on peut ainsi envisager d'étendre l'utilisation de la réflectivité de neutrons polarisés pour obtenir des mesures sur des systèmes de couches magnétiques résolues non seulement en profondeur mais aussi latéralement dans le plan de la couche : cela ouvre le champ encore inexploré d'une nouvelle technique de magnétométrie en trois dimensions.



## *Chapitre 1*

*La réflectivité de neutrons polarisés avec  
analyse de polarisation.  
Cas unidimensionnel.*

<b>I. La réflectivité de neutrons polarisés avec analyse de polarisation.</b>	<b>9</b>
<b>A. Interaction neutron-matière.</b>	<b>9</b>
1. Le neutron.	9
2. Potentiels d'interaction neutron-matière.	10
3. Propagation d'un neutron dans un champ magnétique uniforme.	12
<b>B. Les techniques de réflectivité.</b>	<b>20</b>
1. Indice optique en neutrons.	20
2. Réflexion totale, angle critique.	21
3. Détermination des longueurs de diffusion et de l'indice optique.	22
4. Réflexion sur un milieu homogène.	23
5. Réflexion sur un système multicouche.	24
<b>C. Réflectivité d'un système de couches minces magnétiques.</b>	<b>27</b>
1. Informations accessibles en réflectivité de neutrons polarisés avec analyse de polarisation.	27
2. Géométrie de réflectivité.	29
3. Réflexion sur un système de couches magnétiques idéales : homogènes et sans rugosité.	29
4. Illustration de la réflectivité de neutrons polarisés sur un dioptre magnétique.	35
5. Sensibilité de la technique de réflectivité de neutrons polarisés dans la détermination de profils d'aimantation.	42
6. Inversion des profils expérimentaux.	45
7. Réflexion sur des couches non idéales.	50
<b>D. Description des dispositifs expérimentaux.</b>	<b>56</b>
1. Description du spectromètre PADA (G.2.2) du Laboratoire Léon Brillouin.	56
2. Utilisation pratique du spectromètre PADA.	61
3. Traitement des erreurs expérimentales.	62
<b>E. Nouvelle technique de mesure de cycles d'hystérésis par réflectivité de neutrons polarisés.</b>	<b>68</b>
1. Intérêt de faire des mesures des cycles d'hystérésis par réflectivité de neutrons.	68
2. Exemples de calculs théoriques.	69
3. Exemples d'un système de couches magnétiques simples.	71
4. Exemple d'un système de bicouches magnétiques.	74
5. Conclusion et perspective.	77
<b>F. Effet de l'énergie Zeeman dans les mesures de réflectivité de neutrons polarisés.</b>	<b>78</b>
1. Séparation spatiale.	78
2. Asymétrie des signaux de spin-flip non symétriques dans les mesures de réflectivité.	79
3. Effet des gradients de champ	80
<b>G. Problème de polarisation du faisceau de neutrons.</b>	<b>81</b>
1. Quelques mesures expérimentales.	81
2. Origine de l'effet et correction du problème.	82
<b>H. Conclusion</b>	<b>83</b>

## I. La réflectivité de neutrons polarisés avec analyse de polarisation.

Dans ce chapitre nous discuterons les différentes utilisations de la réflectivité de neutrons polarisés et en particulier nous développerons les possibilités ouvertes en magnétométrie des couches minces.

Nous présenterons un formalisme permettant de décrire la réflectivité de neutrons polarisés (RNP) sur un système magnétique en couches minces. Ce formalisme est un traitement dynamique de la diffusion qui tient compte des effets du champ extérieur appliqué.

Nous décrirons ensuite le réflectomètre à neutrons polarisés avec analyse de polarisation PADA du Laboratoire Léon Brillouin ainsi que le traitement des données lié à l'utilisation de neutrons polarisés et à l'analyse de polarisation.

Un nouveau type de mesure de réflectivité de neutrons sera présenté. Cette technique de mesure permet de s'affranchir de mesurer la réflectivité pour chaque condition extérieure de champ magnétique ou de température. Elle permet en particulier de réaliser des mesures de magnétométrie résolues en profondeur en des temps raisonnables.

Nous concluons sur les nouveaux effets observés en réflectivité de neutrons polarisés et liés à l'énergie Zeeman. Nous montrerons que le formalisme développé dans ce chapitre permet de décrire ces effets.

### A. Interaction neutron-matière.

Dans cette partie, nous allons décrire le neutron et ses principales interactions avec la matière. Nous discuterons par ailleurs la description quantique d'un neutron se propageant dans une zone de champ magnétique.

#### 1. Le neutron.

Le neutron est une particule non chargée de spin  $\frac{1}{2}$ . Sa durée de vie est de l'ordre de la demi-heure. Un neutron est indifféremment caractérisé par son énergie  $E$ , sa longueur d'onde  $\lambda$  ou son vecteur d'onde  $k_0$ . Les relations entre ces trois grandeurs sont données par :

$$E = \frac{\hbar^2 k_0^2}{2m} \quad \text{et} \quad k_0 = \frac{2\pi}{\lambda} \quad (\text{I.2})$$

Il est possible de produire des neutrons dans des réacteurs à flux continu (en utilisant une source d'uranium enrichie en  $^{235}\text{U}$ ) ou bien en bombardant des cibles de métaux lourds avec des protons de haute énergie. Pour les études de matière condensée, les énergies utiles des neutrons s'étalent de 100  $\mu\text{eV}$  à 100  $\text{meV}$ . En effet dans ces gammes

d'énergies, les longueurs d'onde associées aux neutrons varient de 0.1 nm à 3 nm. Ce spectre de longueur d'onde permet des études extrêmement variées en physique des solides et des liquides : diffraction (magnétique et non magnétique), diffusion inélastique (phonons, magnons), étude des polymères et de la " matière molle ", matériaux désordonnés, dynamique de molécules biologiques...

### *Description quantique du neutron.*

Soit  $\psi$  la fonction d'onde associée au neutron. Elle obéit à l'équation de Schrödinger :

$$\frac{-\hbar^2}{2m} \Delta \psi(\mathbf{r}, t) + V(\mathbf{r}, t) \psi(\mathbf{r}, t) = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(\mathbf{r}, t) \quad (\text{I.4})$$

Dans le cas d'un potentiel d'interaction  $V$  ne dépendant pas du temps, on peut séparer les variables en posant :

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \varphi(\mathbf{r}) e^{-i\omega t} \quad (\text{I.6})$$

l'énergie du neutron étant donnée par  $E = \hbar\omega$ . (I.8)

L'équation stationnaire se met sous la forme :

$$\frac{-\hbar^2}{2m} \Delta \varphi(\mathbf{r}) + V(\mathbf{r}) \varphi(\mathbf{r}) = E \varphi(\mathbf{r}) \quad (\text{I.10})$$

Le neutron étant une particule de spin  $\frac{1}{2}$ , sa fonction d'onde se décompose sur la base des états de spin ( $|+\rangle$  et  $|-\rangle$ ) et s'écrit :

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \psi^+(\mathbf{r}, t)|+\rangle + \psi^-(\mathbf{r}, t)|-\rangle \quad (\text{I.12})$$

Lorsqu'il existe un champ magnétique, on désignera par " up " (resp. " down ") un neutron dans l'état propre  $|+\rangle$  (resp.  $|-\rangle$ ), c'est-à-dire un neutron dont le moment magnétique est aligné parallèlement (resp. antiparallèlement) au champ magnétique appliqué.

*N.B.* : dans la suite, on omettra souvent l'indice  $\mathbf{r}$  de dépendance spatiale de la fonction d'onde.

## 2. Potentiels d'interaction neutron-matière.

### a) Interaction neutron-noyau.

La diffusion d'un neutron sur un noyau a pour origine l'interaction forte entre les deux particules. Cette interaction est à courte portée, typiquement  $10^{-15}$  m, ce qui est

négligeable devant la longueur d'onde des neutrons. On la modélise par un puits de potentiel infini ponctuel dit pseudo-potentiel de Fermi<sup>1</sup>, isotrope dans l'espace :

$$V(\mathbf{r}) = \frac{2\pi\hbar^2}{m} b_n \delta(\mathbf{r}) \quad (\text{I.14})$$

où  $b_n$  est appelée *longueur de diffusion* (généralement exprimée en fermi).

La valeur de la longueur de diffusion  $b$  dépend du noyau et du spin nucléaire du noyau :

$$b_n = b_0 + \frac{1}{2} b_N \mathbf{I} \cdot \boldsymbol{\sigma}$$

où  $\mathbf{I}$  est un spin nucléaire.

La contribution de l'interaction avec le spin nucléaire peut être négligée en raison de la très faible polarisation nucléaire à des températures supérieures à quelques dixièmes de kelvin<sup>2</sup>. Cette interaction intervient essentiellement dans la diffusion incohérente (voir ci-après).

N.B. : les longueurs de diffusion peuvent être négatives.

### b) Interaction neutron-milieu magnétique.

Le neutron porte un moment magnétique  $\boldsymbol{\mu} = g_n \mu_n \boldsymbol{\sigma}$  où  $g_n = -1.91$ ,  $\mu_n$  est le magnéton de Bohr nucléaire et  $\boldsymbol{\sigma}$  est l'opérateur de Pauli<sup>3</sup>. L'interaction d'un neutron avec un champ magnétique  $\mathbf{B}(\mathbf{r})$  se met sous la forme :

$$V(\mathbf{r}) = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r}) = -g_n \mu_n \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r}) \quad (\text{I.16})$$

Le champ peut être dû à un champ magnétique extérieur appliqué  $\mathbf{B}_0(\mathbf{r})$  ou bien aux électrons non appariés d'un milieu magnétique. Dans ce cas, le champ créé par les électrons d'un atome contient une partie orbitale et une partie de spin :

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}) = \frac{\mu_0}{4\pi} \left( \nabla \times \left( \frac{\boldsymbol{\mu}_e \times \mathbf{r}}{r^3} \right) - \frac{e\mathbf{v}_e \times \mathbf{r}}{r^3} \right) \quad (\text{I.18})$$

où  $\boldsymbol{\mu}_e = -g\mu_B \mathbf{S}$  est le moment magnétique de l'électron,  $\mathbf{v}_e$  sa vitesse,  $g$  le facteur de Landé et  $\mu_B$  le magnéton de Bohr.

---

<sup>1</sup> On utilise le terme pseudo-potentiel de Fermi car lors de la résolution de l'équation de Schrödinger, on ne peut pas appliquer directement l'approximation de Born pour déterminer la longueur de diffusion en approximant la fonction d'onde dans le noyau car le potentiel a une valeur d'environ 40 MeV et une portée de quelques fermis et le premier terme du développement de Born n'est pas négligeable devant l'onde plane. Pour remédier à ce problème, Fermi a proposé d'introduire un potentiel fictif  $\tilde{V}(r) = 10^{-6} \times V(10^{-2}r)$  qui change la fonction d'onde en une fonction d'onde fictive mais laisse la longueur de diffusion inchangée.

<sup>2</sup> Cependant il est possible d'utiliser cette interaction afin de moduler la longueur de diffusion. Cette technique de variation continue de contraste est actuellement utilisée dans notre groupe par (Glättli, 1994) pour des expériences de diffusion de neutrons aux petits angles.

<sup>3</sup> On rappelle l'expression des matrices de Pauli :

$$\sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad \sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} \quad \sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}$$

La diffraction de neutrons ne permet pas de séparer les contributions orbitales et de spin<sup>4</sup>.

c) *Problème de l'absorption.*

L'absorption des neutrons par la matière est en général très faible. Il existe pourtant un certain nombre de matériaux pour lesquels l'absorption est non négligeable et doit être prise en compte dans les calculs. On peut tenir compte de l'absorption en introduisant une partie imaginaire dans la longueur de diffusion :

$$b = b' - ib'' \quad (\text{I.20})$$

La section efficace d'absorption est donnée par :

$$\sigma_a = \frac{4\pi}{k} b'' \quad (\text{I.22})$$

Il faut remarquer que la forme (I.22) n'est pas valable lorsqu'on est proche d'une résonance d'absorption, ce qui est le cas des éléments les plus absorbants (Gd et Sm en particulier). Dans ce cas, la section efficace d'absorption n'est plus proportionnelle à la longueur d'onde.

d) *Diffusion incohérente.*

Dans le cas d'un système de spins nucléaires désordonnés ou d'un matériau contenant des isotopes du même matériau, une correction dite de diffusion incohérente apparaît. Le coefficient de diffusion incohérente est défini par :

$$b_i^2 \equiv \langle b^2 \rangle - \langle b \rangle^2 \quad (\text{I.24})$$

où les moyennes sont prises sur les longueurs de diffusions  $b$  de tous les noyaux qui présentent soit une distribution isotopique soit une distribution de spin nucléaire  $I$ .

En réflectivité ces corrections sont en général faibles sauf dans le cas particulier de l'hydrogène où la diffusion incohérente est dominante.

Si on souhaite ou s'il est nécessaire d'en tenir compte, on inclut la diffusion incohérente dans la partie imaginaire de la longueur de diffusion (voir (I.20)).

### 3. *Propagation d'un neutron dans un champ magnétique uniforme.*

Dans ce paragraphe nous allons présenter les différentes descriptions quantiques d'un neutron évoluant dans un champ magnétique  $\mathbf{B}_0$ . Nous distinguerons différentes situations expérimentales et nous discuterons les descriptions quantiques adaptées. Nous montrerons en particulier que suivant la préparation de l'état quantique, la "précession" du neutron peut être statique ou dynamique.

---

<sup>4</sup> Des techniques de rayons X permettent de séparer cette partie orbitale de la partie de spin. On peut citer en particulier le dichroïsme circulaire magnétique de rayons X.

a) *Neutron immobile dans un champ  $\mathbf{B}_0$ .*<sup>5</sup>

Considérons un neutron au repos dans un champ magnétique  $\mathbf{B}_0$  aligné suivant (Oz). L'hamiltonien d'interaction du neutron avec le champ magnétique s'écrit :

$$\mathbf{H} = g_n \mu_n \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}_0 = \omega_0 \mathbf{S}_z \quad (\text{I.26})$$

où  $\omega_0 = -\gamma \mathcal{B}_0$ .<sup>6</sup>

Cet hamiltonien est indépendant du temps et donc la résolution de l'équation de Schrödinger se ramène à celle de la résolution de l'équation aux valeurs propres. Les vecteurs propres de  $\mathbf{H}$  sont les vecteurs propres de  $\mathbf{S}_z$ ,  $|+\rangle$  et  $|-\rangle$ . Les deux énergies propres  $E_0^+$  et  $E_0^-$  associées aux deux états propres sont données par :

$$E_0^+ = g_n \mu_n B_0 = \hbar \omega_0 / 2 \quad \text{et} \quad E_0^- = -g_n \mu_n B_0 = -\hbar \omega_0 / 2 \quad (\text{I.28})$$

Supposons qu'à l'instant  $t = 0$ , le neutron est dans l'état de polarisation  $(\alpha, \beta)$ . La fonction d'onde est donnée par :

$$|\psi(t=0)\rangle = \alpha |+\rangle + \beta |-\rangle \quad (\text{I.30})$$

L'hamiltonien ne dépendant pas du temps, l'évolution de la fonction d'onde est donnée par :

$$|\psi(t)\rangle = \alpha e^{-iE_0^+ t / \hbar} |+\rangle + \beta e^{-iE_0^- t / \hbar} |-\rangle \quad (\text{I.32})$$

La présence du champ magnétique  $\mathbf{B}_0$  introduit un déphasage proportionnel au temps entre les coefficients affectés aux kets  $|+\rangle$  et  $|-\rangle$ . Il y a précession du spin du neutron autour de la direction du champ  $\mathbf{B}_0$ .

b) *Neutron immobile dans l'espace mais soumis à un champ magnétique qui augmente.*

Considérons un neutron immobile dans un champ  $\mathbf{B}_0$  très faible (fixant une direction de quantification).

Augmentons le champ de la valeur  $B_0$  à la valeur  $B_1$  mais en gardant la direction du champ constante. Il n'y a pas de changement dans la forme de la fonction d'onde, il y a simplement augmentation du splitting Zeeman ( $E_0^+ \rightarrow E_1^+$  et  $E_0^- \rightarrow E_1^-$ ). La précession devient simplement plus rapide et dans le champ  $\mathbf{B}_1$ , la forme de la fonction d'onde est donnée par :

$$|\psi(t)\rangle = \alpha e^{-iE_1^+ t / \hbar} |+\rangle + \beta e^{-iE_1^- t / \hbar} |-\rangle \quad (\text{I.34})$$

Le cas où l'on change la direction du champ magnétique est plus complexe. Dans le cas où le changement de direction du champ est suffisamment lent (*processus adiabatique*), la polarisation du neutron suit la direction du champ et on est ramené au cas précédent.

---

<sup>5</sup> Cette situation est décrite dans tous les ouvrages de mécanique quantique, e.g. (Cohen, 1973).

<sup>6</sup> on rappelle  $\hbar \gamma_n = 2 g_n \mu_n$

Dans le cas où le changement de direction est trop rapide, on induit une précession du spin dont les variations sont non triviales.

c) *Neutron en mouvement dans un champ qui augmente de  $\mathbf{B}_0$  à  $\mathbf{B}_1$ .*

Considérons maintenant le cas d'un neutron se propageant avec un vecteur d'onde  $k_0$  dans une zone de champ magnétique homogène. Nous allons supposer que le champ magnétique augmente dans tout l'espace d'une valeur  $\mathbf{B}_0$  à une valeur  $\mathbf{B}_1$ .

Au départ, le neutron est quantifié dans un très faible champ magnétique  $\mathbf{B}_0$  aligné suivant (Oz) et supposé très faible. Il ne possède que son énergie cinétique  $E_0 = \hbar^2 k_0^2 / 2m$  (on suppose que l'énergie Zeeman  $E_z$  est négligeable). A  $t = 0$ , on augmente le champ de la valeur  $B_0$  à une valeur  $B_1$ .

Les énergies propres  $E_1^+$  et  $E_1^-$  dans le champ  $\mathbf{B}_1$  sont données par :

$$E_1^\pm = E_0 \pm g_n \mu_n B_1 = \frac{\hbar^2 k_0^2}{2m} \pm g_n \mu_n B_1 \quad (\text{I.36})$$

Pour  $t < 0$ , la fonction d'onde est de la forme :

$$|\psi(t)\rangle_0 = e^{i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}} \cdot e^{-iE_0 t / \hbar} (\alpha_0 |+\rangle + \beta_0 |-\rangle) \quad (\text{I.38})$$

*N.B.* : On suppose que le champ  $B_0$  est suffisamment faible pour qu'on puisse négliger les effets de précession.

Pour  $t > 0$ , la forme générale de la fonction d'onde peut s'écrire sous la forme :

$$|\psi(t)\rangle = (\alpha_1 e^{i\mathbf{k}_1^+ \cdot \mathbf{r}} \cdot e^{-iE_1^+ t / \hbar} |+\rangle + \beta_1 e^{i\mathbf{k}_1^- \cdot \mathbf{r}} \cdot e^{-iE_1^- t / \hbar} |-\rangle) \quad (\text{I.40})$$

Cependant, à l'instant  $t = 0$ , on a appliqué uniformément le champ magnétique  $B_1$  dans tout l'espace. La condition de continuité des composantes de spin de la fonction d'onde quel que soit le point  $\mathbf{r}$  de l'espace à l'instant  $t = 0$  impose la forme suivante de la fonction d'onde (avec  $\mathbf{k}_1^+ = \mathbf{k}_1^- = \mathbf{k}_0$ ) :

$$|\psi(t)\rangle = e^{i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}} (\alpha e^{-iE_1^+ t / \hbar} |+\rangle + \beta e^{-iE_1^- t / \hbar} |-\rangle) \quad (\text{I.42})$$

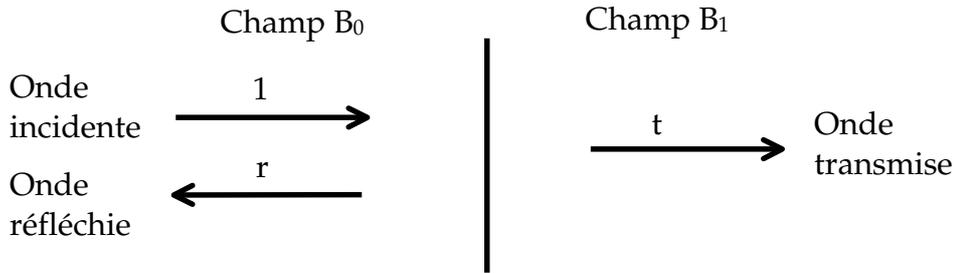
La vitesse de précession est proportionnelle à la différence entre les énergies propres  $E_1^+$  et  $E_1^-$ . On est ramené au cas précédent. Le déplacement du neutron avec le vecteur d'onde  $\mathbf{k}_0$  est simplement représenté par une exponentielle qui peut se mettre en facteur des termes de précession.

### *Equivalent classique.*

Il est possible de faire le parallèle entre ce problème et un problème de mécanique classique. Considérons une boule roulant sur un plan horizontal (correspondant à la zone de champ homogène  $\mathbf{B}_0$ ). L'augmentation du champ extérieur correspond à une force extérieure soulevant/abaissant le plan horizontal dans son ensemble : on fournit/prend une énergie potentielle au système mais il n'y a *pas modification de l'énergie cinétique* de la particule. Il y a un gain net ou une perte nette d'énergie pour la particule : *l'énergie totale du système n'est pas conservée.*

d) Neutron entrant dans une zone de champ magnétique  $B_1$ : "marche de champ magnétique".

Nous allons traiter le problème d'un neutron passant d'une zone de champ magnétique  $B_0$  à une zone de champ  $B_1$ .



Considérons le cas simple de neutrons incidents polarisés "up".

Dans le milieu "0", la fonction d'onde est de la forme :

$$|\psi(t)\rangle = e^{ik_0 \cdot r} e^{-i\omega_0 t} |+\rangle \quad (\text{I.44})$$

L'énergie du neutron est  $E_0$ ; elle correspond à son énergie cinétique car on suppose que le champ  $B_0$  est très faible.

$\omega_0$  et  $k_0$  sont définis par :  $E_0 = \hbar\omega_0$  et  $E_0 = \frac{\hbar^2 k_0^2}{2m}$ .

Dans le milieu "1" :

$$|\psi(t)\rangle = e^{ik_1 \cdot r} e^{-i\omega_1 t} |+\rangle \quad (\text{I.46})$$

On ne connaît a priori pas les valeurs de  $\omega_1$  et  $k_1$ .

Dans ce milieu (1), l'équation aux valeurs propres donne :

$$\frac{\hbar^2 k_1^2}{2m} \pm g_n \mu_n B_1 = E_1 \quad (\text{I.48})$$

On obtient les deux valeurs propres :

$$E_1^\pm = E_0 \pm g_n \mu_n B_1 = \frac{\hbar^2 k_0^2}{2m} \pm g_n \mu_n B_1 \quad (\text{I.50})$$

On place l'interface entre les deux zones de champ magnétique en  $r = 0$ .

L'amplitude de l'onde incidente est fixée à 1. Soit  $r$  l'amplitude de l'onde réfléchie et  $t$  l'amplitude de l'onde transmise au niveau de l'interface "virtuelle" entre les deux zones de champ.

La continuité de la fonction d'onde (en  $r = 0$ ) impose :

$$\psi_i + \psi_r = \psi_t \quad i.e. \quad e^{-i\omega_0 t} |+\rangle + r e^{-i\omega_0 t} |+\rangle = t e^{-i\omega_1 t} |+\rangle \quad (\text{I.52})$$

Cette relation doit être vérifiée quel que soit  $t$  et donc on obtient  $\omega_0 = \omega_1$ , l'énergie totale du système est conservée.

La conservation de l'énergie donne :

$$k_1^2 = k_0^2 - \frac{2m}{\hbar^2} g_n \mu_n B_1 \quad (\text{I.54})$$

Le terme d'énergie Zeeman modifie donc le vecteur d'onde  $k_1$  de propagation de l'onde, mais le terme d'évolution temporelle  $\exp(i \omega_0 t)$  est inchangé.

La forme de la fonction d'onde est donnée par :

$$|\psi(t)\rangle = e^{-iE_0 t/\hbar} (\alpha e^{ik_1^+ \cdot r} |+\rangle + \beta e^{ik_1^- \cdot r} |-\rangle) \quad (\text{I.56})$$

La précession du spin est décrite par les différences entre les vecteurs d'ondes  $k_1^+$  et  $k_1^-$ . Le terme de dépendance temporelle se met en facteur des termes de dépendance spatiale.

La continuité de la fonction d'onde  $\psi$  et de  $\text{grad } \psi$  à l'interface ( $r = 0$ ) donne les conditions :

$$\begin{aligned} 1 + r &= t \\ k_0(1 - r) &= k_1 t \end{aligned} \quad (\text{I.58})$$

On retrouve les formules de Fresnel classiques :

$$\begin{aligned} r &= \frac{k_0 - k_1}{k_0 + k_1} \\ t &= \frac{2k_0}{k_0 + k_1} \end{aligned} \quad (\text{I.60})$$

On peut développer ces expressions en fonction de  $\alpha = E_z/E_0$ .

Dans le cas où  $\alpha$  est petit (énergie Zeeman négligeable devant l'énergie cinétique) on obtient :

$$\begin{aligned} r &= \frac{1}{4}\alpha \\ t &= 1 + \frac{1}{4}\alpha \end{aligned} \quad (\text{I.62})$$

Tout ce qui a été dit ci-avant s'applique encore dans le cas où la marche de champ est plus douce (on peut alors la décomposer en une série de petites marches de champ). Cette situation correspondrait à une variation adiabatique du champ.

*Equivalent "classique".*

Ce cas d'une marche de potentiel magnétique correspond à un échange d'énergie cinétique et potentiel :

Considérons à nouveau une boule se déplaçant sur un plan horizontal et rencontrant soit une descente, soit une montée (voir Figure 1).

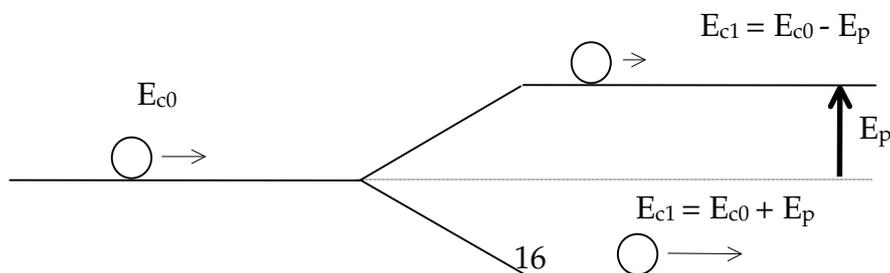


Figure 1 : boule d'énergie cinétique  $E_{c0}$  rencontrant soit une montée soit une descente. Dans le premier cas, une partie de son énergie cinétique est convertie en énergie potentielle, la boule ralentit ; dans le deuxième cas, une partie de son énergie potentielle est convertie en énergie cinétique, la boule accélère.

Lorsque la boule rencontre la marche de potentiel (en montée ou en descente), elle accélère ou décélère et donc échange son énergie cinétique pour de l'énergie potentielle mais l'énergie totale du système est conservée.

e) *En pratique, quelles sont les situations rencontrées ?*

Le cas de la marche de champ est la situation pratique effectivement rencontrée. La forme de la fonction d'onde à utiliser dans un formalisme de description de la réflectivité de neutrons est donc :

$$|\psi(t)\rangle = e^{-iE_0 t/\hbar} \left( \alpha e^{ik_0^+ \cdot r} |+\rangle + \beta e^{ik_0^- \cdot r} |-\rangle \right)$$

f) *Précession dynamique/précession statique.*

Nous avons vu qu'en fonction de la préparation de l'état du neutron, il est nécessaire d'utiliser deux descriptions différentes de la fonction d'onde du neutron.

**Précession dynamique.**

On désigne par le terme de "précession dynamique", la précession d'un neutron immobile dans un champ  $\mathbf{B}_0$  (aligné suivant (Oz)) ou bien d'un neutron se propageant dans un champ magnétique homogène dans tout l'espace. Dans ce cas, la forme générale de sa fonction d'onde est (voir ci-avant) :

$$|\psi(t)\rangle = e^{ik_0 r} \left( \alpha e^{-iE^+ t/\hbar} |+\rangle + \beta e^{-iE^- t/\hbar} |-\rangle \right) \quad (\text{I.64})$$

avec  $|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1$ .

Les valeurs moyennes de  $S_x$ ,  $S_y$  et  $S_z$  sont données par :

$$\begin{aligned} \langle \psi | S_x | \psi \rangle &= |\alpha\beta| \cos(\omega^+ + \omega^-)t \\ \langle \psi | S_y | \psi \rangle &= |\alpha\beta| \sin(\omega^+ + \omega^-)t \\ \langle \psi | S_z | \psi \rangle &= |\alpha|^2 - |\beta|^2 \end{aligned} \quad (\text{I.66})$$

où  $\omega_0 = \omega^+ + \omega^- = -\gamma \mathcal{B}_0$  représente une énergie égale au splitting Zeeman.

On constate évidemment que la composante  $S_z$  est constante dans le temps (il y a précession autour du champ  $\mathbf{B}_0$  aligné suivant (Oz)). Les autres composantes oscillent sinusoidalement avec le temps avec une pulsation  $\omega$  et leur valeur moyenne décrit un cercle de rayon constant.

En chaque point de l'espace, il y a précession temporelle des composantes de spin. Le déplacement du neutron introduit simplement un facteur de phase global dans la précession entre deux points de l'espace, donné par  $e^{ik_0\Delta r}$  où  $\Delta r$  est la distance entre les deux points.

**Précession statique.**

Nous désignons par " précession statique " la précession d'un neutron en mouvement dans un champ magnétique  $\mathbf{B}_0$  (zone de champ que le neutron a atteint en passant d'une zone de champ nul à la zone de champ  $\mathbf{B}_0$ ).

Nous rappelons que la fonction d'onde se met sous la forme (voir ci-avant) :

$$|\psi(t)\rangle = e^{-iE_0t/\hbar} \left( \alpha e^{ik_0^+ \cdot r} |+\rangle + \beta e^{ik_0^- \cdot r} |-\rangle \right) \quad (I.68)$$

Dans cette description, à chaque instant  $t$ , il y a précession spatiale des composantes de spin en fonction de la position. L'évolution temporelle n'introduit qu'un facteur de phase global à la fonction d'onde quel que soit le point de l'espace. En un point donné  $\mathbf{r}$ , il n'y a pas de précession en fonction du temps (voir Figure 2).

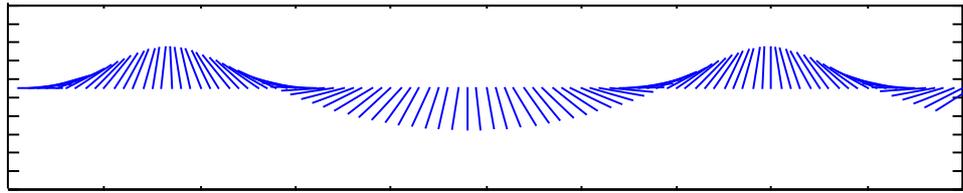


Figure 2 : Précession d'un neutron en mouvement. Les traits représentent les projections ( $S_x, S_y$ ) en fonction de la position de la particule (la particule se déplace suivant l'axe horizontal ( $Ox$ )).

De la même manière que ci-avant, on peut calculer les valeurs moyennes de  $S_x, S_y$  et  $S_z$  :

$$\begin{aligned} \langle \psi | S_x | \psi \rangle &= |\alpha\beta| \cos(k_0^+ - k_0^-) r \\ \langle \psi | S_y | \psi \rangle &= |\alpha\beta| \sin(k_0^+ - k_0^-) r \\ \langle \psi | S_z | \psi \rangle &= |\alpha|^2 - |\beta|^2 \end{aligned} \quad (I.70)$$

On rappelle la définition de  $\alpha = E_z/E_0$ .

De manière rigoureuse,  $k_0^+ - k_0^- = k_0(\sqrt{1+\alpha} - \sqrt{1-\alpha})$

Dans le cas où l'énergie Zeeman est une perturbation par rapport à l'énergie cinétique, c'est-à-dire  $\alpha \ll 1$ , on peut développer l'expression ci-dessus au premier ordre :

$$k_0^+ - k_0^- = k_0 \left( 1 + \frac{1}{2}\alpha \right) - k_0 \left( 1 - \frac{1}{2}\alpha \right) = \alpha k_0 \quad (I.72)$$

Et donc on obtient :

$$\begin{aligned} S_x &\propto \cos(\alpha k_0 r) \\ S_y &\propto \sin(\alpha k_0 r) \end{aligned} \quad (I.74)$$

Le terme de phase  $\alpha k_0 r$  peut se mettre sous la forme :

$$\alpha k_0 r = \frac{mv_0}{\hbar} \frac{E_z}{\frac{1}{2}mv^2} r = \frac{2E_z}{\hbar} \left( \frac{r}{v_0} \right) \leftrightarrow \omega_0 t = -\gamma \mathcal{B}_0 = \frac{2E_z}{\hbar} t \quad (\text{I.76})$$

On trouve que la précession induite après un temps  $\Delta t$  est égale à la précession dans l'espace pendant le parcours du neutron de la distance  $\Delta r = v_0 \Delta t$  pendant ce temps  $\Delta t$ .

Si on ne s'autorise pas d'approximation :

$$k_0^+ - k_0^- = k_0 (\sqrt{1+\alpha} - \sqrt{1-\alpha}) \quad (\text{I.78})$$

L'écart entre l'expression exacte et le développement au premier ordre est très faible même pour des valeurs de  $\alpha$  relativement grandes : l'écart est inférieur à 1% pour  $\alpha < 0.4$  !

Au premier ordre en  $\alpha$ , dans le référentiel de la particule, la précession du spin décrit un cercle. Cependant, de manière exacte, il y a un petit écart par rapport à ce cercle.

Dans le cas où l'on travaille avec des neutrons thermiques, l'énergie cinétique est de l'ordre de quelques meV tandis que l'énergie Zeeman est de l'ordre du  $\mu\text{eV}$ . Les Tableau 1 et Tableau 2 ci-dessous donnent l'ordre de grandeur de quelques énergies. En pratique on a bien toujours  $\alpha \ll 1$ .

$\lambda$ (nm)	$E_{\text{cinétique}}$ ( $\mu\text{eV}$ )
0.5	5000
3	90
10	10

Tableau 1 : énergie cinétique des neutrons pour quelques longueurs d'onde ( $E = \hbar^2/2m\lambda^2$ ). La longueur d'onde 0.5 nm correspond environ à la longueur d'onde du spectromètre PADA. 3 nm est la limite supérieure de longueur d'onde des spectromètres à temps de vol.

B (T)	E ( $\mu\text{eV}$ )
1	0.06
3	0.18
10	0.60

Tableau 2 : énergies Zeeman des neutrons  $E = g_n \mu_n B$  pour quelques valeurs de champs magnétiques.

## B. Les techniques de réflectivité.

La réflexion d'ondes sur des surfaces pour étudier leurs propriétés est une technique très répandue (ellipsométrie, réflectivité X, réflectivité d'atomes d'hélium  $\text{He}_2$ , réflectivité de neutrons). Le principe général consiste à réfléchir une onde sur une surface et à étudier sa réflexion en fonction de sa polarisation et de son incidence. Ces

techniques permettent de déterminer des propriétés caractéristiques des surfaces (indices optiques, absorption, composition chimique, épaisseur de couches minces, aimantation, rugosité...).

On peut en général définir un indice optique de la surface pour chaque type de rayonnement, par analogie avec la réflexion d'ondes lumineuses. Dans le cas du rayonnement X et des neutrons, l'interaction de diffusion avec la matière est très faible, de telle sorte que l'indice optique est très proche de 1 ( $1-n \sim 10^{-4}$ ). Cette propriété impose de travailler à des angles d'incidences rasants si l'on souhaite pouvoir observer des intensités réfléchies non négligeables.

Nous considérons un faisceau de particules incident sur une surface plane (voir Figure 3). Soit  $\theta_{inc}$  l'angle d'incidence sur la surface, soit  $\theta_{ref}$  l'angle de réflexion. Nous définissons le vecteur de diffusion par  $\mathbf{q} = \mathbf{k}_{ref} - \mathbf{k}_{inc}$ . La projection du vecteur de diffusion sur l'axe (Oz) est donnée par :

$$q = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \theta_{inc} \quad (I.80)$$

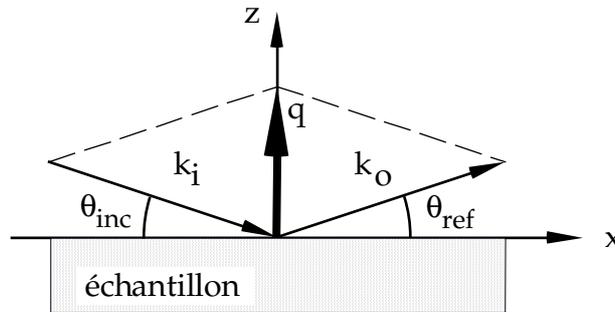


Figure 3 : géométrie de réflexion spéculaire :  $\mathbf{k}_i$  est le vecteur d'onde du faisceau incident,  $\mathbf{k}_o$  est le vecteur d'onde de l'onde réfléchie,  $\mathbf{q}$  est le vecteur de diffusion. Dans le cas d'une réflexion spéculaire,  $\mathbf{q}$  est dirigé suivant (Oz).

### 1. Indice optique en neutrons.

Les indices optiques des neutrons sont assez différents des indices dans le cas des rayons X et nous allons déterminer leur expression à partir de l'équation de Schrödinger. Nous supposons que le potentiel d'interaction dans le milieu est indépendant des coordonnées planaires  $x$  et  $y$ . En l'absence de champs magnétiques, l'équation de Schrödinger s'écrit :

$$\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2\psi}{dr^2} + (E - V)\psi = 0 \quad (I.82)$$

Cette équation peut se mettre sous la forme d'une équation de propagation de Helmholtz similaire au cas de la propagation d'ondes électromagnétiques :

$$\frac{d^2\psi}{dr^2} + k^2\psi = 0 \quad (I.84)$$

avec

$$k^2 = \frac{2m}{\hbar^2}(E - V) \quad (\text{I.86})$$

On définit l'indice optique comme :

$$n^2 = \frac{k^2}{k_0^2} \quad (\text{I.88})$$

Le potentiel d'interaction moyen  $V_z$  dans le milieu est donné par l'intégration du pseudo-potential de Fermi sur le volume de l'échantillon :

$$V = \frac{1}{v} \int V(r) dr = \frac{2\pi\hbar^2}{m} b\rho \quad (\text{I.90})$$

où  $\rho$  est la densité atomique par unité de volume et  $b$  est la longueur de diffusion nucléaire.

L'expression de l'indice optique devient donc :

$$n^2 = 1 - \frac{V}{E} = 1 - \frac{\lambda^2}{\pi} \rho b \quad (\text{I.92})$$

L'indice optique est en général inférieur à 1 à l'exception des matériaux dont la longueur de diffusion est négative (e.g. Ti et Mn). De plus la quantité  $1-n$  est de l'ordre de  $10^{-5}$  et donc il est possible de développer  $n$  au premier ordre. L'expression de  $n$  est alors donnée par :

$$n \approx 1 - \frac{\lambda^2}{2\pi} \rho b \quad (\text{I.94})$$

Le vecteur d'onde de propagation dans un milieu d'indice  $n$  est donc donné par :

$$k_1^2 = k_0^2 - 4\pi\rho b \quad (\text{I.96})$$

où  $k_0$  est le vecteur d'onde de propagation dans le vide.

## 2. Réflexion totale, angle critique.

A l'interface entre deux milieux, les lois de Descartes s'appliquent :

$$\cos \theta_i = n \cos \theta_{tr} \quad (\text{I.98})$$

Comme nous avons montré que l'indice est inférieur à 1 (sauf dans quelques cas particuliers), pour des angles  $\theta < \theta_c$ , il y a réflexion totale de l'onde incidente. L'angle critique  $\theta_c$  est donné par la condition  $\theta_{tr} = 0$  i.e. :

$$\cos \theta_c = n \quad (\text{I.100})$$

Comme cet angle critique est très faible, il est possible d'utiliser un développement de Taylor, et l'expression de  $\theta_c$  est donnée par :

$$\theta_c = \sqrt{\frac{\rho b}{\pi}} \lambda \quad (\text{I.102})$$

Le vecteur d'onde critique  $q_c$  correspondant est donné par :

$$q_c = \frac{4\pi \sin \theta_c}{\lambda} = 4\sqrt{\pi\rho b} \quad (\text{I.104})$$

### 3. Détermination des longueurs de diffusion et de l'indice optique.

Dans le cas de matériaux purs, la connaissance de  $b_n$  et de  $\rho$  caractérise complètement le matériau. Dans le cas de solides du type  $A_xB_y$  par exemple, il suffit de considérer une cellule unité. Le volume de la cellule unité permet de calculer une densité  $\rho$  de cellules unités par unité de volume. La longueur de diffusion moyenne  $b_{av}$  de la cellule unité est simplement donnée par  $b_{av} = \frac{xb_A+yb_B}{x+y}$ . La valeur  $\rho b_{av}$  peut être utilisée pour calculer l'indice du matériau.

Matériau	$b_n$ (fm)	$\rho$ ( $10^{28} \text{ m}^{-3}$ )	$\rho b$ ( $10^{13} \text{ m}^{-2}$ )	$\delta$ ( $10^{-6}$ )	$q_c$ ( $\text{nm}^{-1}$ )	Remarques
H	-3.73					hydrogène
D ( $^2\text{H}$ )	6.67					deutérium
C	6.64	11.3	75	19.1	0.19	graphite
C	6.64	17.6	117	29.8	0.24	diamond
O	5.80					
Si	4.15	5.00	20.8	5.28	0.10	
Ti	-3.44	5.66	-19.5	-5.0	-	
Fe	9.45	8.50	80.3	20.45	0.20	
Co	3.63	8.97	32.6	8.29	0.13	
Ni	10.3	9.14	94.1	24.0	0.22	
Cu	7.72	8.45	65.2	16.6	0.18	
Ag	5.92	5.85	34.6	8.82	0.13	
Au	7.63	5.90	45	11.5	0.15	
H <sub>2</sub> O	-1.68	3.35	-5.63	-1.43	-	
D <sub>2</sub> O	19.1	3.34	63.8	16.2	0.18	
SiO <sub>2</sub>	15.8	2.51	39.7	10.1	0.14	
GaAs	13.9	2.21	30.7	7.82	0.12	
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	24.3	2.34	56.9	14.5	0.17	saphir
pyrex			42	10.7	0.14	
C <sub>8</sub> H <sub>8</sub>	23.2	0.61	14.2	3.6	0.084	polystyrène
C <sub>8</sub> D <sub>8</sub>	106.5	0.61	65	16.5	0.18	

Tableau 3 : Longueurs de diffusion, densités atomiques, indices optiques (à 0.4 nm) et vecteurs d'ondes critiques de quelques matériaux usuels. Des données plus exhaustives peuvent être trouvées à '[www.neutron.anl.gov](http://www.neutron.anl.gov)'.

Le cas des liquides et des polymères est plus complexe car il n'est pas possible de définir une " cellule unité ". La meilleure méthode est de calibrer l'indice pour chaque type de polymère ou liquide. Le Tableau 3 donne les valeurs des longueurs de diffusion, de densité atomique, d'indice optique ( $\delta = 1 - n$ ) et le vecteur d'onde critique à 0.4 nm de quelques matériaux usuels.

### 4. Réflexion sur un milieu homogène.

Considérons la propagation d'un neutron d'un milieu homogène  $\alpha$  à un milieu homogène  $\alpha+1$ , l'interface entre les deux milieux étant à la position  $z_\alpha$  (voir Figure 4).

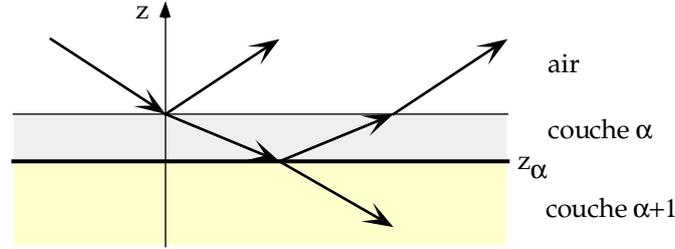


Figure 4 :trajet d'un neutron incident sur deux milieux \$\alpha\$ et \$\alpha+1\$. L'interface entre les deux milieux est à la position \$z\_\alpha\$

La solution de l'équation (I.82) dans chaque milieu est donnée par :

$$\begin{aligned}\psi_\alpha(z) &= A_\alpha \exp(ik_{z,\alpha}z) + B_\alpha \exp(-ik_{z,\alpha}z) \\ \psi_{\alpha+1}(z) &= A_{\alpha+1} \exp(ik_{z,\alpha+1}z) + B_{\alpha+1} \exp(-ik_{z,\alpha+1}z)\end{aligned}\quad (\text{I.106})$$

où \$A\$ et \$B\$ sont les amplitudes des ondes incidentes et réfléchies (se propageant respectivement vers les \$z\$ positifs et négatifs).

Le vecteur d'onde de propagation \$k\_\alpha\$ dans le milieu \$\alpha\$ est relié au vecteur d'onde incident \$k\_0\$ par (voir (I.96)):

$$k_{z,\alpha}^2 = k_{z,0}^2 - 4\pi\rho b_\alpha \quad (\text{I.108})$$

La continuité de la fonction d'onde et de sa dérivée au niveau de l'interface \$z\_\alpha\$ permet d'écrire :

$$\begin{aligned}\psi_\alpha(z_\alpha) &= \psi_{\alpha+1}(z_\alpha) \\ \psi'_\alpha(z_\alpha) &= \psi'_{\alpha+1}(z_\alpha)\end{aligned}\quad (\text{I.110})$$

Dans le cas de la réflexion sur un dioptre, les milieux \$\alpha\$ et \$\alpha+1\$ sont l'air et le substrat. Dans le substrat, le facteur \$B\_{\alpha+1}\$ est nul car aucun faisceau ne vient de \$z = -\infty\$.

Les fonctions d'onde dans le vide et le substrat sont de la forme :

$$\begin{aligned}\psi_0(z) &= A_0 \exp(ik_{z,0}z) + B_0 \exp(-ik_{z,0}z) = 1 \exp(ik_{z,0}z) + r \exp(-ik_{z,0}z) \\ \psi_s(z) &= A_s \exp(ik_{z,s}z) = t\end{aligned}\quad (\text{I.112})$$

où l'amplitude de l'onde incidente est égale 1, l'amplitude de l'onde réfléchie est \$r\$ et l'amplitude transmise est \$t\$.

Les conditions de continuité (I.110) au niveau de l'interface \$z = 0\$ donnent :

$$\begin{aligned}1 + r &= t \\ k_{z,0}(1 - r) &= k_{z,s}t\end{aligned}\quad (\text{I.114})$$

D'où l'on déduit l'expression des amplitudes des ondes réfléchies et transmises :

$$r = \frac{k_{z,0} - k_{z,s}}{k_{z,0} + k_{z,s}} \quad \text{et} \quad t = \frac{2k_{z,0}}{k_{z,0} + k_{z,s}} \quad (\text{I.116})$$

Les intensités réfléchies sont données par :

$$R = |r|^2 \quad \text{et} \quad T = |t|^2 \quad (\text{I.118})$$

Ces expressions correspondent aux formules de Fresnel classiques.  
L'expression de l'intensité réfléchie est donnée par :

$$R = \left| \frac{q_0 - q_s}{q_0 + q_s} \right|^2 = \left| \frac{q_0 - \sqrt{q_0^2 - q_c^2}}{q_0 + \sqrt{q_0^2 - q_c^2}} \right|^2$$

où le vecteur d'onde critique  $q_c$  est égal à  $\sqrt{16\pi\rho b_n}$ . Quand  $q_0 < q_c$ ,  $q_s$  est imaginaire pur et on trouve une intensité réfléchie égale à 1. Lorsque  $q_0$  est très grand, on peut montrer que l'intensité décroît en  $1/q_0^4$ .

La Figure 5 illustre le cas de la réflexion sur un substrat de silicium. On observe un plateau de réflectivité totale jusqu'à un vecteur d'onde critique  $q_c$ . Ce plateau est suivi d'une décroissance rapide qui au delà de  $3q_c$  est proportionnelle à  $1/q^4$ .

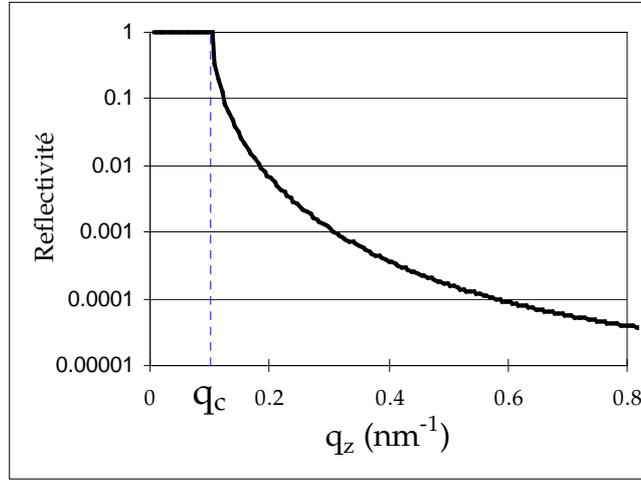


Figure 5 : réflectivité d'un faisceau de neutrons de longueur d'onde 0.4 nm sur une surface de silicium.

## 5. Réflexion sur un système multicouche.

Considérons le cas plus général d'une interface (située à la position  $z = d$ ) entre deux milieux  $\alpha$  et  $\alpha+1$ . Les conditions de continuité (I.110) appliquées à des fonctions d'ondes de la forme (I.106) permettent de relier les coefficients  $A$  et  $B$  des ondes se propageant vers les  $z$  positifs et négatifs :

$$\begin{pmatrix} A_\alpha \\ B_\alpha \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} (1 + k_{z,\alpha+1}/k_{z,\alpha})e^{i(k_{z,\alpha+1}-k_{z,\alpha})d}/2 & (1 - k_{z,\alpha+1}/k_{z,\alpha})e^{-i(k_{z,\alpha+1}+k_{z,\alpha})d}/2 \\ (1 - k_{z,\alpha+1}/k_{z,\alpha})e^{i(k_{z,\alpha+1}+k_{z,\alpha})d}/2 & (1 + k_{z,\alpha+1}/k_{z,\alpha})e^{-i(k_{z,\alpha+1}-k_{z,\alpha})d}/2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_{\alpha+1} \\ B_{\alpha+1} \end{pmatrix} \quad (\text{I.120})$$

On définit la matrice  $\mathbf{M}_\alpha$  de telle sorte qu'elle relie les amplitudes  $A$  et  $B$  d'un milieu  $\alpha$  et d'un milieu  $\alpha+1$  :

$$\begin{pmatrix} A_{\alpha+1} \\ B_{\alpha+1} \end{pmatrix} = \mathbf{M}_\alpha \begin{pmatrix} A_\alpha \\ B_\alpha \end{pmatrix} \quad (\text{I.122})$$

Dans le cas d'un système multicouche, indiquons le substrat par "0" et les couches successives par  $\alpha$ , le vide étant le milieu  $N+1$  (voir Figure 6).

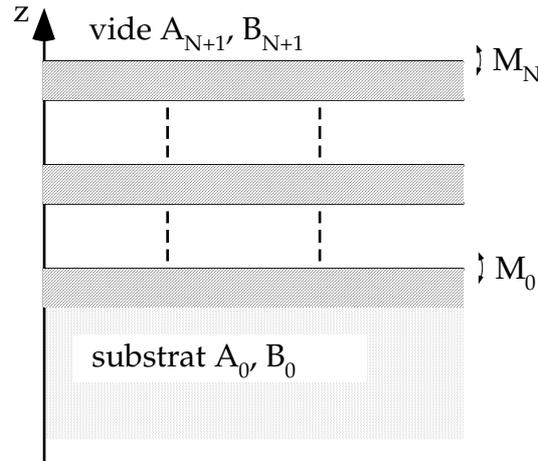


Figure 6 : système multicouches.  $A_i, B_i$  sont les amplitudes des ondes se déplaçant vers les  $z$  positifs et négatifs.  $M_i$  sont les matrices de transfert d'un milieu à l'autre.

Les amplitudes des ondes dans le vide et le substrat sont reliées par :

$$\begin{pmatrix} A_{N+1} \\ B_{N+1} \end{pmatrix} = \mathbf{M}_N \cdots \mathbf{M}_0 \begin{pmatrix} A_0 \\ B_0 \end{pmatrix} \quad (\text{I.124})$$

Les coefficients  $A$  et  $B$  de l'équation précédente sont les amplitudes physiquement intéressantes (car mesurables).  $A_{N+1}$  est l'amplitude de l'onde incidente, que l'on fixe à 1 ;  $B_{N+1}$  est l'amplitude de l'onde réfléchie  $r$  ;  $B_0$  est l'amplitude de l'onde transmise  $t$  ; et  $A_0$  est nul car il n'a pas d'onde venant de  $z = -\infty$ . On obtient ainsi l'équation matricielle suivante qui permet d'obtenir les coefficients des ondes réfléchie et transmise sur un milieu multicouche :

$$\begin{pmatrix} 1 \\ r \end{pmatrix} = \prod_{i=0}^N \mathbf{M}_i \begin{pmatrix} 0 \\ t \end{pmatrix} \quad (\text{I.126})$$

La Figure 7 illustre le cas simple de la réflexion sur une couche mince de Cu de 30 nm d'épaisseur déposée sur un substrat de silicium. Par rapport au cas du dioptre, il y a apparition d'oscillations caractéristiques de l'épaisseur de la couche mince, appelées franges de Kiessig (voir Figure 7). Ces oscillations ont pour origine les interférences des ondes réfléchies au niveau de chaque interface (surface de la couche mince et interface couche mince substrat). Ces interférences deviennent successivement constructives et destructives en fonction de l'angle d'incidence.

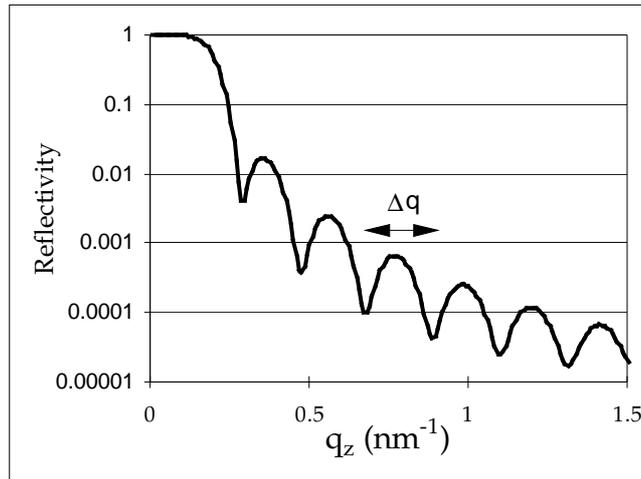


Figure 7 : réflectivité d'un faisceau de neutrons de longueur d'onde 4 nm sur une couche mince de cuivre de 30 nm d'épaisseur déposée sur un substrat de silicium.

La période des franges de Kiessig est directement reliée à l'épaisseur de la couche mince par :

$$\Delta q = \frac{2\pi}{d} \quad (\text{I.128})$$

où  $d$  est l'épaisseur de la couche mince.

Dans le cas de systèmes multicouches, les variations de la réflectivité deviennent complexes. Dans le cas d'un système bicouche Cu(50nm)Au(9nm) déposé sur un substrat de silicium (voir Figure 8), on retrouve les oscillations caractéristiques des épaisseurs des couches. Les oscillations de courte "longueur d'onde" correspondent à l'épaisseur totale de 59 nm du système. Sur ces oscillations, se superpose une modulation de plus grande longueur d'onde caractéristique de l'épaisseur de la fine couche d'or de 9 nm.

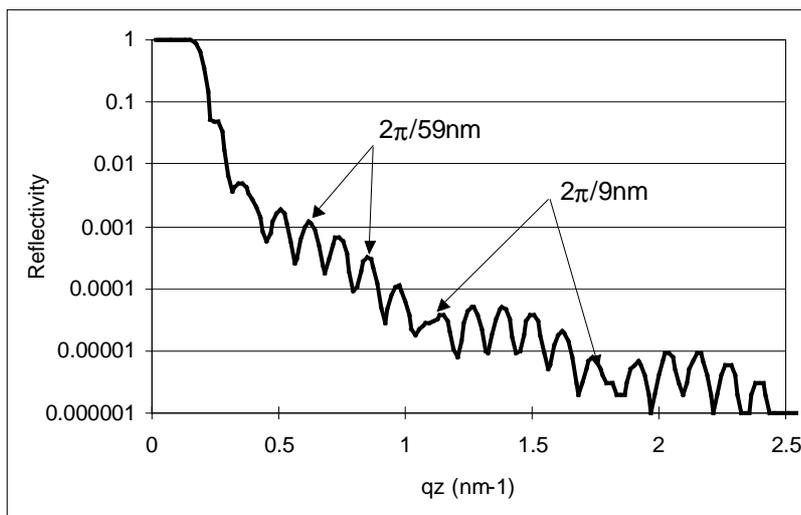


Figure 8 : réflectivité d'un système silicium/Cu(50nm)/Au(9nm). On observe des oscillations rapides correspondant à l'épaisseur totale du système sur lesquelles se superpose une modulation de plus grande "longueur d'onde" ayant pour origine la fine épaisseur de la couche d'or de protection (9 nm).

Dans cette partie, nous n'avons discuté que les problèmes de réflectivité sur des systèmes non magnétiques. La partie suivante va traiter en détail le cas de la réflectivité de neutrons polarisés avec analyse de polarisation.

### **C. Réflectivité d'un système de couches minces magnétiques.**

Dans cette partie nous présentons la technique de réflectivité de neutrons polarisés avec analyse de polarisation. Un formalisme matriciel détaillé permettant de calculer la réflectivité d'un système multicouche magnétique est développé. Nous présentons ensuite différents cas simples (dioptré et couche simple magnétique dans différentes configurations de champ et d'aimantation) puis nous illustrons la sensibilité de la technique dans la détermination de profils magnétiques résolus en profondeur. Les problèmes liés à l'inversion des courbes de réflectivité et à la rugosité des échantillons sont ensuite discutés.

#### **1. Informations accessibles en réflectivité de neutrons polarisés avec analyse de polarisation.**

La technique de réflectivité de neutrons polarisés avec analyse de polarisation permet d'obtenir de nombreuses informations magnétiques sur des systèmes de couches minces.

##### *a) Ordre magnétique dans les multicouches.*

L'observation des pics de diffraction de Bragg sur les multicouches en réflectivité de neutrons polarisés permet de déterminer rapidement et directement l'ordre magnétique entre couches magnétiques : ferromagnétique, antiferromagnétique, hélicoïdal... Cela correspond à environ 90% des études magnétiques déjà réalisées par réflectivité de neutrons (Majkrzak 1986 ; Beach 1993 ; Dumesnil 1996).

##### *b) Moments magnétiques très faibles.*

La sensibilité de la technique de réflectivité de neutrons polarisés permet de mesurer des moments inférieurs à  $0.1 \mu_B$  par atome. Les moments de très fines couches de fer (2-3 monocouches atomiques) en sandwich entre deux couches de tungstène ont pu être mesurés (McGrath, 1994). Sur des échantillons plus épais tels que des monocristaux de fer, la précision peut atteindre  $0.01 \mu_B$  (Fermon, 1996).

c) *Cycles d'hystérésis*

La réflectivité de neutrons permet de faire des mesures de cycles d'hystérésis et de mesurer le moment magnétique de manière absolue en  $\mu_B$  par atome. Ce point sera développé dans la partie E.

d) *Profils magnétiques de l'aimantation planaire.*

L'apport essentiel de la technique de réflectivité de neutrons polarisés avec analyse de polarisation est la mesure de profils magnétiques. La réflectivité de neutrons polarisés est un outil qui permet d'accéder à ces informations de manière directe<sup>7</sup>. Dans des couches simples, des rotations de l'aimantation dans l'épaisseur des couches minces peuvent apparaître sous l'effet d'anisotropies de surface (Train, 1996), de polarisation magnétique de surface ([b] Fermon, 1995) ou de contraintes mécaniques (Ott, 1997).

e) *Tailles de domaines magnétiques.*

La mesure du signal de réflectivité non spéculaire permet en théorie d'accéder à la taille des domaines magnétiques. Cependant en l'absence de théorie ad hoc et en raison des flux limités de neutrons, le développement de ce type d'études a été limité jusqu'à maintenant.

*N.B. : dans le cas de la réflectivité de neutrons polarisés, la notion d'indice optique est mal adaptée car le potentiel d'interaction magnétique n'est pas scalaire. C'est pourquoi nous n'utiliserons plus la notion d'indice optique dans la suite.*

## 2. Géométrie de réflectivité.

Considérons un faisceau incident sur une couche mince idéale. Soit  $\theta_{inc}$  l'angle d'incidence du faisceau. Le système d'axe est défini sur la Figure 9. Le plan d'incidence est le plan (xOz), le plan de la couche mince est le plan (xOy). Soient  $\mathbf{k}_i$  et  $\mathbf{k}_r$  les vecteurs d'onde de l'onde incidente et réfléchi. Le vecteur de diffusion  $\mathbf{q}$  est défini par  $\mathbf{q} = \mathbf{k}_r - \mathbf{k}_i$  (voir Figure 3).

---

<sup>7</sup> Les techniques Mössbauer ont été le premier outil permettant de déterminer des profils d'aimantation. Cependant, ces études Mössbauer sont essentiellement focalisées sur le magnétisme du fer.

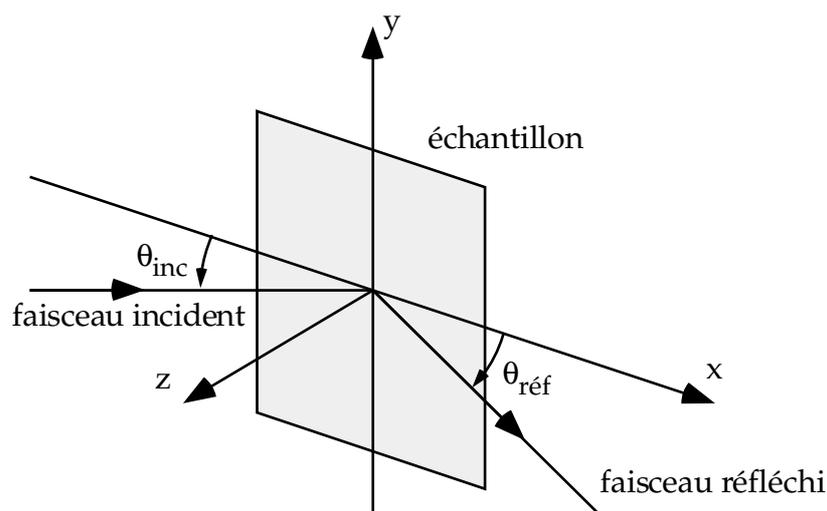


Figure 9 : géométrie de réflexion d'un faisceau de neutrons. Le plan d'incidence est le plan  $(xOz)$ , le plan de l'échantillon est le plan  $(xOy)$ .

### 3. Réflexion sur un système de couches magnétiques idéales : homogènes et sans rugosité.

Considérons un empilement de couches minces homogènes parallèles au plan  $(Oxy)$  (voir Figure 10). Nous supposons pour l'instant que les interfaces entre les couches sont parfaitement planes. Dans ce cas particulier idéal, la réflexion est spéculaire avec un vecteur de diffusion  $\mathbf{q}$  dirigé suivant  $(Oz)$ .

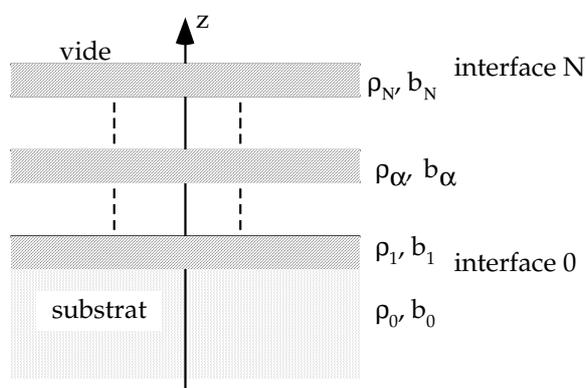


Figure 10 : profil d'un système de multicouches magnétiques (couches indicées de 0 à N).  $\rho$  est la densité atomique,  $b$  est la longueur de diffusion nucléaire.

#### a) Potentiel d'interaction non magnétique avec un milieu continu.

Le milieu étudié est une collection d'atomes de longueur de diffusion  $b$  et de densité atomique  $\rho$ . En géométrie de réflectivité, il est possible de se placer dans

l'approximation optique en supposant que le milieu est continu<sup>8</sup>. Le potentiel moyen  $V$  d'interaction est obtenu par intégration du pseudo-potentiel de Fermi :

$$V = \frac{1}{v} \int V(\mathbf{r}) d\mathbf{r} = \frac{2\pi}{\hbar^2} \rho b \quad (\text{I.130})$$

b) *Potentiel d'interaction magnétique avec un milieu continu.*

Dans le cas d'une couche infinie, le champ créé à l'extérieur de la couche par les moments magnétiques disparaît. Il est alors possible de considérer chaque couche séparément et de résoudre l'équation de Schrödinger dans chacune des régions. L'interaction magnétique entre les électrons non appariés d'une couche mince magnétique et le neutron se met sous la forme : (voir démonstration en Annexe A)

$$\hat{V}_{M\alpha} = -\mu_0 g_n \mu_n \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{M}_{//\alpha} \quad (\text{I.132})$$

où  $\mathbf{M}_{//\alpha}$  est la projection de l'aimantation dans le plan de la couche en A/m. Cela souligne une limitation de la réflectivité de neutrons polarisés : **la PNR est sensible uniquement à la composante planaire de l'aimantation.**

N.B. : on retrouve le résultat classique que la diffusion magnétique d'un neutron est sensible à la composante de l'aimantation perpendiculaire au vecteur de diffusion. Cependant le résultat classique est démontré uniquement dans l'approximation de Born. La démonstration de l'Annexe A ne fait pas cette hypothèse.

c) *Potentiel d'interaction avec une couche mince magnétique.*

Le potentiel d'interaction dans la région  $\alpha$  est donné par:

$$\hat{V}_\alpha = \frac{2\pi\hbar^2}{m} \rho_\alpha b_\alpha - \mu_0 g_n \mu_n \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{M}_{//\alpha} - g_v \mu_n \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}_0 \quad (\text{I.134})$$

où  $\rho_\alpha$  est la densité de la couche  $\alpha$ ,  $b_\alpha$  est la longueur de diffusion nucléaire et  $\mathbf{M}_\alpha$  est l'aimantation créée par les électrons non appariés de la couche  $\alpha$ .  $\mathbf{B}_0$  est le champ extérieur appliqué.

On peut mettre ce potentiel sous la forme d'un terme nucléaire et d'un terme magnétique faisant intervenir un champ effectif  $\mathbf{B}_{\text{eff}} = \mathbf{B}_0 + \mu_0 \mathbf{M}_\alpha$  :

$$\boxed{\hat{V}_\alpha = \frac{2\pi\hbar^2}{m} \rho_\alpha b_\alpha - g_v \mu_n \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}_{\text{eff}}} \quad (\text{I.136})$$

---

<sup>8</sup> Cette approximation est valable lorsque l'inverse du vecteur de diffusion est grand comparé aux distances interatomiques. Dans les expériences de réflectivité les angles d'incidence maximum sont de 5° pour une longueur d'onde de 0.4 nm. Cela correspond à des vecteurs de diffusion  $\mathbf{q}$  prenant des valeurs comprises entre 0 et 1.4 nm<sup>-1</sup>.  $2\pi/\mathbf{q}$  prend donc en général une valeur minimale de 5 nm environ, ce qui justifie l'approximation optique.

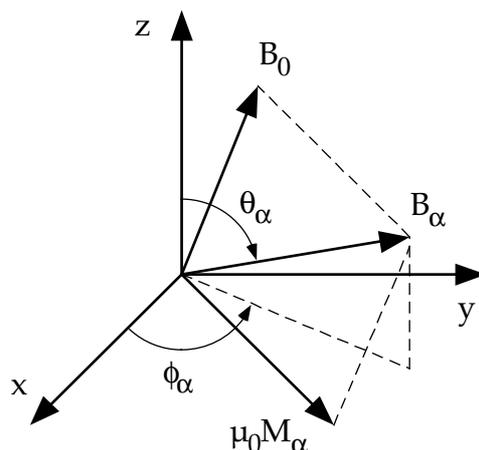


Figure 11 : Le champ effectif  $\mathbf{B}_{\text{eff},\alpha}$  dans la couche d'indice  $\alpha$ , est la somme du champ extérieur appliqué  $\mathbf{B}_0$  et de l'aimantation  $\mu_0 \mathbf{M}_\alpha$  de la couche  $\alpha$ . On définit par ailleurs les coordonnées sphériques  $\theta_\alpha$  et  $\phi_\alpha$  du vecteur  $\mathbf{B}_{\text{eff},\alpha}$ .

Si on veut comparer les amplitudes des deux interactions nucléaires et magnétiques, il est possible de mettre le terme d'interaction magnétique sous la forme :

$$V_M = \frac{2\pi\hbar^2}{m} \rho b_M \quad \text{avec} \quad b_M = \frac{m}{2\pi\hbar^2} \frac{g_n \mu_n \mu_0 M_{//}}{\rho}$$

Le tableau ci-dessous présente les valeurs numériques de quelques longueurs de diffusion nucléaires et magnétiques et des sections efficaces d'absorption.

éléments	$b_n$ (fm)	$b_M$ (fm)	$\sigma_a$ barn (100 fm <sup>2</sup> )
Co	2.49	4.5	37.2
Ni	10.3	1.6	4.49
Fe	9.45	5.4	2.56
Gd	6.5 - i 13.82	18.83	49700
Sm	0.8 - i 1.65		5922
Si	4.15	-	0.17
Ti	-3.44	-	6.1

Tableau 4 : longueurs de diffusion nucléaire et magnétique et absorption de quelques matériaux que nous utilisons (en particulier les quelques matériaux magnétiques les plus usuels). Ces valeurs tiennent compte des abondances naturelles des isotopes. D'après (Sears, 1992)

On remarquera que les longueurs de diffusion magnétiques sont du même ordre de grandeur que les longueurs de diffusion nucléaire. Cette propriété fait des neutrons une sonde particulièrement sensible aux propriétés magnétiques de la matière.

#### d) Résolution de l'équation de Schrödinger.

Dans les problèmes de réflectivité, il n'est pas possible d'appliquer de méthodes perturbatives (DWBA par exemple) car on travaille proche du plateau de réflectivité totale et les développements de Born sont divergents (l'intensité diffusée est du même ordre que l'intensité incidente.) Il est nécessaire d'effectuer un calcul dynamique

complet. La suite du paragraphe décrit un formalisme dans le cas de couches magnétiques.

On résout l'équation de Schrödinger dans chacune des régions  $\alpha$  :

$$H_\alpha \varphi(\mathbf{r}) = E \varphi(\mathbf{r}) \quad (\text{I.138})$$

On décompose la fonction d'onde sur ses composantes de spin :

$$H_\alpha (\varphi_+(\mathbf{r})|+\rangle + \varphi_-(\mathbf{r})|-\rangle) = E (\varphi_+(\mathbf{r})|+\rangle + \varphi_-(\mathbf{r})|-\rangle) \quad (\text{I.140})$$

L'équation précédente est une équation vectorielle que l'on peut écrire sous la forme :

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta \begin{pmatrix} \varphi_+ \\ \varphi_- \end{pmatrix} + \left( \frac{2\pi\hbar^2}{m} b_\alpha \rho_\alpha \right) \begin{pmatrix} \varphi_+ \\ \varphi_- \end{pmatrix} - g_n \mu_n (B_{\text{eff},x} \sigma_x + B_{\text{eff},y} \sigma_y + B_{\text{eff},z} \sigma_z) \begin{pmatrix} \varphi_+ \\ \varphi_- \end{pmatrix} = E \begin{pmatrix} \varphi_+ \\ \varphi_- \end{pmatrix} \quad (\text{I.142})$$

Par identification des deux composantes de spin, on obtient un jeu de deux équations<sup>9</sup>:

$$\left( -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + \frac{2\pi\hbar^2}{m} b_\alpha \rho_\alpha - g_n \mu_n \mathbf{B}_{\text{eff},z} \right) \varphi_+(\mathbf{r}) + \left( -g_n \mu_n \mathbf{B}_{\text{eff},x} + i g_n \mu_n \mathbf{B}_{\text{eff},y} \right) \varphi_-(\mathbf{r}) = E \varphi_+(\mathbf{r}) \quad (\text{I.144})$$

$$\left( -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + \frac{2\pi\hbar^2}{m} b_\alpha \rho_\alpha + g_n \mu_n \mathbf{B}_{\text{eff},z} \right) \varphi_-(\mathbf{r}) + \left( -g_n \mu_n \mathbf{B}_{\text{eff},x} - i g_n \mu_n \mathbf{B}_{\text{eff},y} \right) \varphi_+(\mathbf{r}) = E \varphi_-(\mathbf{r}) \quad (\text{I.146})$$

### e) Solution générale.

On cherche des solutions de la forme :

$$\varphi_+(\mathbf{r}) = a_+ \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \text{ et } \varphi_-(\mathbf{r}) = a_- \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \quad (\text{I.148})$$

Le système d'équations (I.144)-(I.146) n'admet alors des solutions que si le déterminant du système ci-dessus est nul. Cette condition impose que les seules valeurs de  $\mathbf{q}$  possibles sont :

$$k_\alpha^{\pm 2} = \frac{2m}{\hbar^2} E - 4\pi\rho_\alpha b_\alpha \pm \frac{2m\gamma\mu_n}{\hbar^2} |B_{\text{eff},\alpha}| \quad (\text{I.150})$$

Le champ effectif  $B_{\text{eff},\alpha}$  peut être écrit en utilisant ses coordonnées sphériques par rapport au champ extérieur de quantification  $(B_\alpha, \theta_\alpha, \varphi_\alpha)$  :

$$\begin{cases} B_{\alpha x} = B_\alpha \sin(\theta_\alpha) \cos(\varphi_\alpha) \\ B_{\alpha y} = B_\alpha \sin(\theta_\alpha) \sin(\varphi_\alpha) \\ B_{\alpha z} = B_\alpha \cos(\theta_\alpha) \end{cases} \quad (\text{I.152})$$

On injecte ensuite les formes (I.148) dans l'équation (I.144) pour imposer une condition sur les facteurs  $a_+$  et  $a_-$ . On peut effectuer cette substitution pour  $k^+$  et  $k^-$ . Si l'on

<sup>9</sup> on rappelle l'expression des opérateurs de Pauli :  $\sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}$   $\sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}$   $\sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}$

cherche les solutions du type  $\varphi_+(\mathbf{r}) = a_+ \exp(i\mathbf{k}^+ \cdot \mathbf{r})$  et  $\varphi_-(\mathbf{r}) = a_- \exp(i\mathbf{k}^- \cdot \mathbf{r})$  on obtient l'équation :

$$a_+ \left( -\frac{\hbar^2 k^{+2}}{2m} + \frac{2\pi\hbar^2}{m} b_\alpha \rho_\alpha - \mathcal{M}_n \mathbf{B}_z \right) e^{ik^+ r} + a_- \left( -\mathcal{M}_n \mathbf{B}_x + i\mathcal{M}_n \mathbf{B}_y \right) e^{ik^+ r} = a_+ E e^{ik^+ r} \quad (\text{I.154})$$

Celle-ci se simplifie sous la forme :

$$a_+ \sin(\theta/2) - a_- \cos(\theta/2) e^{-i\varphi} = 0 \quad (\text{I.156})$$

On obtient une équation similaire si on considère les solutions du type  $\varphi_+(\mathbf{r}) = a_+ \exp(i\mathbf{k}^- \cdot \mathbf{r})$  et  $\varphi_-(\mathbf{r}) = a_- \exp(i\mathbf{k}^- \cdot \mathbf{r})$  :

$$a_+ \cos(\theta/2) + a_- \sin(\theta/2) e^{-i\varphi} = 0 \quad (\text{I.158})$$

La composante planaire du vecteur d'onde est conservée (continuité de  $\varphi$  et de  $\nabla\varphi$ ) donc :

$$\begin{cases} k_{\alpha//}^+ = k_{0//}^+ \\ k_{\alpha//}^- = k_{0//}^- \end{cases} \quad (\text{I.160})$$

On obtient alors les quatre valeurs possibles des composantes perpendiculaires du vecteur d'onde :

$$\begin{cases} k_{\alpha,z}^{++} = \sqrt{k_0^{+2} - k_{\alpha//}^{+2}} \\ k_{\alpha,z}^{--} = \sqrt{k_0^{-2} - k_{\alpha//}^{-2}} \end{cases} \quad \begin{cases} k_{\alpha,z}^{+-} = \sqrt{k_0^{+2} - k_{\alpha//}^{-2}} \\ k_{\alpha,z}^{-+} = \sqrt{k_0^{-2} - k_{\alpha//}^{+2}} \end{cases} \quad (\text{I.162})$$

La solution générale des équations (I.144) et (I.146) est donc de la forme : (Fermon, 1995)

$$\begin{aligned} \psi_\alpha^+(\mathbf{r}) = & \exp(i\mathbf{k}_{\alpha//}^+ \cdot \mathbf{r}_{//}) \left( a_\alpha^{++} \exp(ik_{\alpha z}^{++} z) + b_\alpha^{++} \exp(-ik_{\alpha z}^{++} z) \right) \cdot \cos(\theta_\alpha / 2) \\ & + \exp(i\mathbf{k}_{\alpha//}^- \cdot \mathbf{r}_{//}) \left( a_\alpha^{+-} \exp(ik_{\alpha z}^{+-} z) + b_\alpha^{+-} \exp(-ik_{\alpha z}^{+-} z) \right) \cdot \cos(\theta_\alpha / 2) \\ & - \exp(i\mathbf{k}_{\alpha//}^+ \cdot \mathbf{r}_{//}) \left( a_\alpha^{-+} \exp(ik_{\alpha z}^{-+} z) + b_\alpha^{-+} \exp(-ik_{\alpha z}^{-+} z) \right) \cdot e^{-i\varphi_\alpha} \sin(\theta_\alpha / 2) \\ & - \exp(i\mathbf{k}_{\alpha//}^- \cdot \mathbf{r}_{//}) \left( a_\alpha^{--} \exp(ik_{\alpha z}^{--} z) + b_\alpha^{--} \exp(-ik_{\alpha z}^{--} z) \right) \cdot e^{-i\varphi_\alpha} \sin(\theta_\alpha / 2) \\ \psi_\alpha^-(\mathbf{r}) = & \exp(i\mathbf{k}_{\alpha//}^+ \cdot \mathbf{r}_{//}) \left( a_\alpha^{++} \exp(ik_{\alpha z}^{++} z) + b_\alpha^{++} \exp(-ik_{\alpha z}^{++} z) \right) e^{i\varphi_\alpha} \sin(\theta_\alpha / 2) \\ & + \exp(i\mathbf{k}_{\alpha//}^- \cdot \mathbf{r}_{//}) \left( a_\alpha^{+-} \exp(ik_{\alpha z}^{+-} z) + b_\alpha^{+-} \exp(-ik_{\alpha z}^{+-} z) \right) \cdot e^{i\varphi_\alpha} \sin(\theta_\alpha / 2) \\ & + \exp(i\mathbf{k}_{\alpha//}^+ \cdot \mathbf{r}_{//}) \left( a_\alpha^{-+} \exp(ik_{\alpha z}^{-+} z) + b_\alpha^{-+} \exp(-ik_{\alpha z}^{-+} z) \right) \cdot \cos(\theta_\alpha / 2) \\ & + \exp(i\mathbf{k}_{\alpha//}^- \cdot \mathbf{r}_{//}) \left( a_\alpha^{--} \exp(ik_{\alpha z}^{--} z) + b_\alpha^{--} \exp(-ik_{\alpha z}^{--} z) \right) \cdot \cos(\theta_\alpha / 2) \end{aligned} \quad (\text{I.164})$$

#### f) Conditions de continuité aux interfaces et formalisme matriciel.

Ayant obtenu la forme de la fonction d'onde, nous pouvons utiliser un formalisme matriciel pour résoudre le problème récursivement (Lekner, 1987 ; Blundell, 1992). Les

8 constantes  $a_{\alpha}^{\pm\pm}$  et  $b_{\alpha}^{\pm\pm}$  peuvent être déterminées par la continuité de  $\varphi_+$ ,  $\varphi_-$ ,  $\vec{\nabla}\varphi_+$  et  $\vec{\nabla}\varphi_-$  aux interfaces. La continuité des spineurs doit être vérifiée quel que soit  $r_{//}$ . La forme des spineurs dans l'équation (I.164) fait cependant intervenir deux types d'exponentielles. Après projection sur la base des  $e^{ik_{\alpha//}^+ r}$  et des  $e^{ik_{\alpha//}^- r}$  on obtient deux groupes d'équations reliant d'un côté les coefficients du type "++ et +- " et de l'autre côté les coefficients du type "-- et +- ". On peut mettre les équations de continuité entre les interfaces  $\alpha$  et  $\alpha+1$  sous la forme :

$$\mathbf{W}_{\alpha}^{+} \begin{pmatrix} a_{\alpha}^{++} \\ b_{\alpha}^{++} \\ a_{\alpha}^{-+} \\ b_{\alpha}^{-+} \end{pmatrix} = \mathbf{W}_{\alpha+1}^{+} \begin{pmatrix} a_{\alpha+1}^{++} \\ b_{\alpha+1}^{++} \\ a_{\alpha+1}^{-+} \\ b_{\alpha+1}^{-+} \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \mathbf{W}_{\alpha}^{-} \begin{pmatrix} a_{\alpha}^{--} \\ b_{\alpha}^{--} \\ a_{\alpha}^{+-} \\ b_{\alpha}^{+-} \end{pmatrix} = \mathbf{W}_{\alpha+1}^{-} \begin{pmatrix} a_{\alpha+1}^{--} \\ b_{\alpha+1}^{--} \\ a_{\alpha+1}^{+-} \\ b_{\alpha+1}^{+-} \end{pmatrix} \quad (\text{I.166})$$

La forme des matrices  $\mathbf{W}$  étant donnée par : (on néglige les indices  $\alpha$  et on note  $\theta = \theta_{\alpha} / 2$ )

$$\mathbf{W}^{+} = \begin{pmatrix} e^{ik_{//}^{+} r} \cos \theta & e^{ik_{//}^{+} r} \cos \theta & -e^{ik_{//}^{+} r} e^{-i\varphi} \sin \theta & -e^{ik_{//}^{+} r} e^{-i\varphi} \sin \theta \\ k^{++} e^{ik_{//}^{+} r} \cos \theta & -k^{++} e^{ik_{//}^{+} r} \cos \theta & -k^{++} e^{ik_{//}^{+} r} e^{-i\varphi} \sin \theta & k^{++} e^{ik_{//}^{+} r} e^{-i\varphi} \sin \theta \\ e^{ik_{//}^{+} r} e^{i\varphi} \sin \theta & e^{ik_{//}^{+} r} e^{i\varphi} \sin \theta & e^{ik_{//}^{+} r} \cos \theta & e^{ik_{//}^{+} r} \cos \theta \\ k^{++} e^{ik_{//}^{+} r} e^{i\varphi} \sin \theta & -k^{++} e^{ik_{//}^{+} r} e^{i\varphi} \sin \theta & k^{++} e^{ik_{//}^{+} r} \cos \theta & -k^{++} e^{ik_{//}^{+} r} \cos \theta \end{pmatrix} \quad (\text{I.168})$$

$$\mathbf{W}^{-} = \begin{pmatrix} -e^{ik_{//}^{-} r} e^{-i\varphi} \sin \theta & -e^{ik_{//}^{-} r} e^{-i\varphi} \sin \theta & e^{ik_{//}^{-} r} \cos \theta & e^{ik_{//}^{-} r} \cos \theta \\ -k^{--} e^{ik_{//}^{-} r} e^{-i\varphi} \sin \theta & k^{--} e^{ik_{//}^{-} r} e^{-i\varphi} \sin \theta & k^{--} e^{ik_{//}^{-} r} \cos \theta & -k^{--} e^{ik_{//}^{-} r} \cos \theta \\ e^{ik_{//}^{-} r} \cos \theta & e^{ik_{//}^{-} r} \cos \theta & e^{ik_{//}^{-} r} e^{i\varphi} \sin \theta & e^{ik_{//}^{-} r} e^{i\varphi} \sin \theta \\ -k^{--} e^{ik_{//}^{-} r} \cos \theta & -k^{--} e^{ik_{//}^{-} r} \cos \theta & k^{--} e^{ik_{//}^{-} r} e^{i\varphi} \sin \theta & -k^{--} e^{ik_{//}^{-} r} e^{i\varphi} \sin \theta \end{pmatrix}$$

On définit les matrices de propagation :

$$\mathbf{P}^{+} = \begin{pmatrix} e^{ik_z^{++} d} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & e^{-ik_z^{++} d} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e^{ik_z^{-+} d} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e^{-ik_z^{-+} d} \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \mathbf{P}^{-} = \begin{pmatrix} e^{ik_z^{--} d} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & e^{-ik_z^{--} d} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e^{ik_z^{+-} d} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e^{-ik_z^{+-} d} \end{pmatrix} \quad (\text{I.170})$$

On définit alors les matrices de transfert  $\mathbf{M}^{+}$  et  $\mathbf{M}^{-}$  par :

$$\mathbf{M}^{+} = \mathbf{W}_{N+1}^{+}{}^{-1} \cdot \left( \prod_{\alpha=1}^{\alpha=N} \mathbf{W}_{\alpha}^{+} \cdot \mathbf{P}_{\alpha}^{+} \cdot \mathbf{W}_{\alpha}^{+}{}^{-1} \right) \cdot \mathbf{W}_0^{+} \quad (\text{I.172})$$

$$\mathbf{M}^{-} = \mathbf{W}_{N+1}^{-}{}^{-1} \cdot \left( \prod_{\alpha=1}^{\alpha=N} \mathbf{W}_{\alpha}^{-} \cdot \mathbf{P}_{\alpha}^{-} \cdot \mathbf{W}_{\alpha}^{-}{}^{-1} \right) \cdot \mathbf{W}_0^{-}$$

Celles-ci relient respectivement les intensités incidentes, réfléchies et transmises par l'échantillon pour des neutrons polarisés " up " et " down ". Pour des neutrons polarisés " up " :

$$\begin{pmatrix} 1 \\ r^{++} \\ 0 \\ r^{-+} \end{pmatrix} = \mathbf{M}^{+} \begin{pmatrix} t^{++} \\ 0 \\ t^{-+} \\ 0 \end{pmatrix} \quad (\text{I.174})$$

Pour des neutrons polarisés " down " :

$$\begin{pmatrix} 1 \\ r^{--} \\ 0 \\ r^{+-} \end{pmatrix} = \mathbf{M}^{-1} \begin{pmatrix} t^{--} \\ 0 \\ t^{+-} \\ 0 \end{pmatrix} \quad (\text{I.176})$$

Les coefficients  $r^{++}$ ,  $r^{--}$  sont les coefficients de réflexion de non spin flip c'est à dire de neutrons incidents up (resp. down) réfléchis up (resp. down). Les coefficients  $r^{+-}$ ,  $r^{-+}$  sont les coefficients de réflexion de spin flip c'est à dire de neutrons incidents up (resp. down) et réfléchis down (resp. up).

Les intensités mesurées sont bien sûr proportionnelles aux carrés de ces coefficients.

Ce formalisme permet de calculer des profils de réflectivité de systèmes de couches minces magnétiques, quelle que soit la direction de l'aimantation et le champ magnétique appliqué.

#### 4. Illustration de la réflectivité de neutrons polarisés sur un dioptre magnétique.

Nous allons considérer le cas de la réflexion d'un faisceau de neutrons sur un dioptre magnétique. La géométrie considérée est présentée sur la Figure 12 ci-dessous.

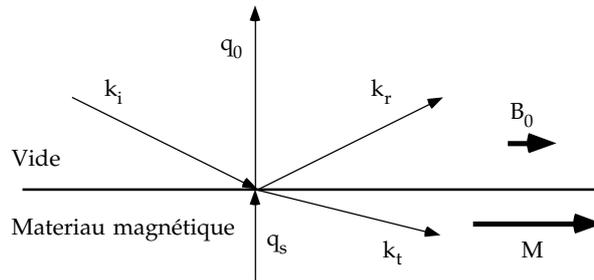


Figure 12 : incidence d'un faisceau de neutrons sur un substrat magnétique d'aimantation  $M$ .

Nous faisons l'hypothèse simplificatrice que le champ extérieur appliqué  $B_0$  est faible de telle sorte que  $q_0^+ \approx q_0^- = q_0$ . La composante du vecteur  $\mathbf{q}$  dans le milieu magnétique est donnée par (voir éq. (I.108))<sup>10</sup>:

$$q_s^\pm \approx \sqrt{q_0^2 - 16\pi\rho(b_n \pm b_m)} \quad (\text{I.178})$$

Nous allons supposer que le champ extérieur appliqué  $\mathbf{B}_0$  et la direction de l'aimantation  $\mathbf{M}$  dans le milieu sont planaires. Cela correspond à  $\theta = 90^\circ$  (voir Figure 11). Soit  $\phi$  l'angle entre  $\mathbf{B}_0$  et  $\mathbf{M}$ .

Dans ces hypothèses simplificatrices (en particulier champ extérieur appliqué faible), les expressions des coefficients de réflexion déduits des expressions des matrices  $M$  sont données par :

<sup>10</sup> on rappelle que " $q = 2k_z$ ", le vecteur de diffusion est égal à deux fois la projection sur (Oz) du vecteur d'onde incident.

$$r^{++} = \frac{\cos^2 \frac{\phi}{2} (q_0 - q_s^+) (q_0 + q_s^-) + \sin^2 \frac{\phi}{2} (q_0 - q_s^-) (q_0 + q_s^+)}{\cos^2 \frac{\phi}{2} (q_0 + q_s^+) (q_0 + q_s^-) + \sin^2 \frac{\phi}{2} (q_0 + q_s^-) (q_0 + q_s^+)} \quad (\text{I.180})$$

$$r^{+-} = \frac{2 q_0 \cos \frac{\phi}{2} \sin \frac{\phi}{2} (q_s^+ - q_s^-)}{\cos^2 \frac{\phi}{2} (q_0 + q_s^+) (q_0 + q_s^-) + \sin^2 \frac{\phi}{2} (q_0 + q_s^-) (q_0 + q_s^+)} \quad (\text{I.182})$$

Les intensités mesurées sont données par :

$$I^{++} = |r^{++}|^2 \quad \text{et} \quad I^{+-} = |r^{+-}|^2$$

a) Cas d'un substrat magnétique dans un champ magnétique  $\mathbf{B}_0$  aligné parallèlement à l'aimantation  $\mathbf{M}$  ( $\phi = 0^\circ$ ).

Dans ce cas simple, les expressions des coefficients de réflexion se simplifient et se mettent sous la forme :

$$r^{++} = \frac{q_0 - q_s^+}{q_0 + q_s^+}, \quad r^{--} = \frac{q_0 - q_s^-}{q_0 + q_s^-} \quad \text{et} \quad r^{+-} = 0$$

Les expressions des amplitudes de réflexion correspondent toujours à des réflectivités de Fresnel. La seule modification introduite par le magnétisme est une différence d'angle critique. Les vecteurs d'onde critiques  $q_c^+$  et  $q_c^-$  pour les courbes de réflectivité " up-up " et " down-down " sont donnés par :

$$q_c^\pm \approx \sqrt{16\pi\rho (b_n \pm b_m)}$$

Le signal de spin-flip est nul.

N.B. les coefficients  $r^{++}$  et  $r^{--}$  peuvent se déduire l'un de l'autre par une rotation de  $\phi$  de  $180^\circ$ .

Les signaux de non spin-flip  $r^{++}$  et  $r^{--}$  sont tracés en traits pleins sur la Figure 13. On retrouve la forme classique d'une courbe de réflectivité, avec un plateau de réflectivité totale s'étendant jusqu'à  $q_c$  suivi d'une rapide décroissance. La différence entre les courbes " up-up " et " down-down " est l'extension du plateau de réflectivité totale.

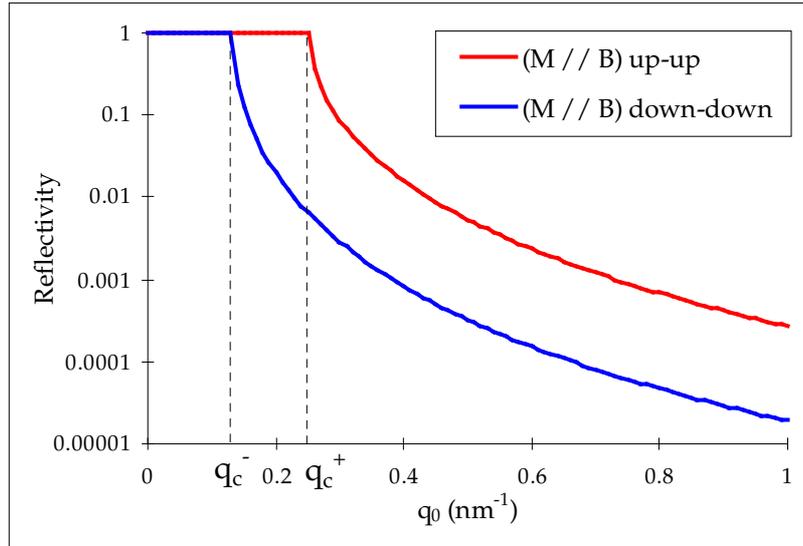


Figure 13 : Courbes de réflectivité dans le cas d'une aimantation parallèle au champ magnétique  $\mathbf{B}_0$  appliqué. Lorsque l'aimantation est parallèle au champ, les courbes de non spin-flip "up-up" et "down-down" sont distinctes, le signal de spin-flip est nul.

b) Cas d'un champ magnétique appliqué perpendiculaire à l'aimantation du substrat ( $\phi = 90^\circ$ ).

Dans ce cas, les expressions des coefficients de réflexion deviennent :

$$r^{NSF} = \frac{(q_0 - q_s^+)(q_0 + q_s^-) + (q_0 - q_s^-)(q_0 + q_s^+)}{2(q_0 + q_s^+)(q_0 + q_s^-)} = \frac{1}{2}(r^{++} + r^{--})$$

$$r^{+-} = r^{-+} = \frac{q_0(q_s^+ - q_s^-)}{2(q_0 + q_s^+)(q_0 + q_s^-)}$$

("NSF" désigne les courbes de non spin-flip).

Les intensités de non spin-flip sont données par :

$$I^{++} = I^{--} = I^{NSF} = |r|^2 = \frac{1}{4}|r^{++}|^2 + \frac{1}{4}|r^{--}|^2 + \frac{1}{2}\text{Re}(r^{++} \times r^{--}) \quad (\text{I.184})$$

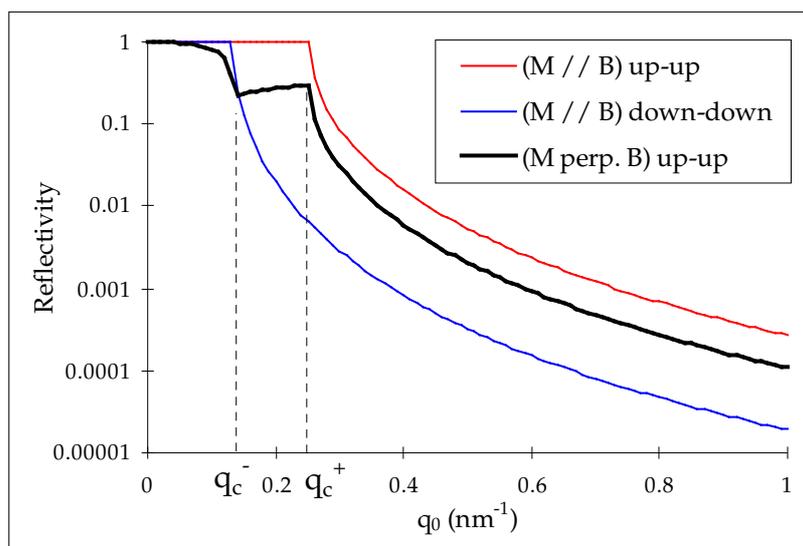


Figure 14 : Courbes de réflectivité dans le cas d'une aimantation parallèle et perpendiculaire au champ magnétique  $\mathbf{B}_0$  appliqué. Lorsque l'aimantation est parallèle au champ, les courbes de non spin-flip " up-up " et " down-down " (traits fins) sont distinctes. Lorsque l'aimantation est perpendiculaire au champ  $\mathbf{B}_0$ , les courbes de non spin-flip se confondent (trait gras).

On remarque que les intensités de non spin-flip sont la somme de trois termes. Les deux premiers termes correspondent aux intensités des signaux de non spin-flip dans le cas d'une aimantation parallèle au champ magnétique ; ils sont pondérés par un coefficient  $\frac{1}{4}$ . Ces termes introduisent deux sauts aux positions  $q_c^+$  et  $q_c^-$  dans la courbe de réflectivité de non spin-flip (voir Figure 13, courbe en trait gras). A ces deux termes se rajoute un terme d' " interférence "  $\frac{1}{2} \text{Re}(r^{++} \times r^{--})$  dont l'expression analytique n'est pas simple. Ses variations sont tracées sur la Figure 15. Pour  $q_0 = 0$ , ce terme est égal à  $\frac{1}{2}$  et l'intensité est totalement réfléchi. Sa valeur diminue dès que  $q_0$  augmente et devient négative autour de  $q_c^-$ . Elle redevient positive autour de  $q_c^+$ , puis décroît très vite. Cependant cette contribution ne modifie pas qualitativement la forme de la courbe de non-spin-flip, si ce n'est qu'il n'existe pas de plateau de réflexion totale.

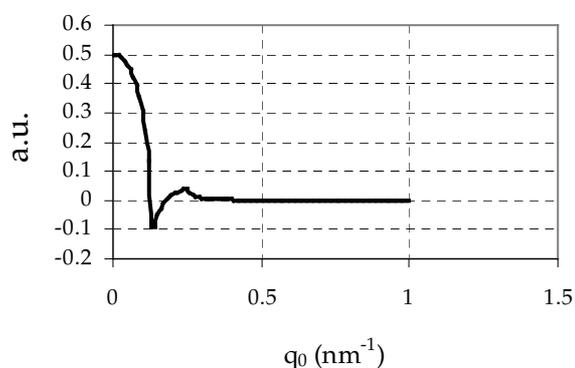


Figure 15 : contribution du terme d'interférence 'Re( $r^{++} \times r^{--}$ )' entre les amplitudes  $r^{++}$  et  $r^{--}$  dans l'intensité de non spin-flip, pour la réflexion sur un substrat dont l'aimantation est perpendiculaire au champ magnétique appliqué.

L'intensité du terme de spin-flip est donnée par :

$$I^{+-} = |r^{+-}|^2 = \frac{1}{4} \left| \frac{q_0 (q_s^+ - q_s^-)}{(q_0 + q_s^+)(q_0 + q_s^-)} \right|^2 \quad (\text{I.186})$$

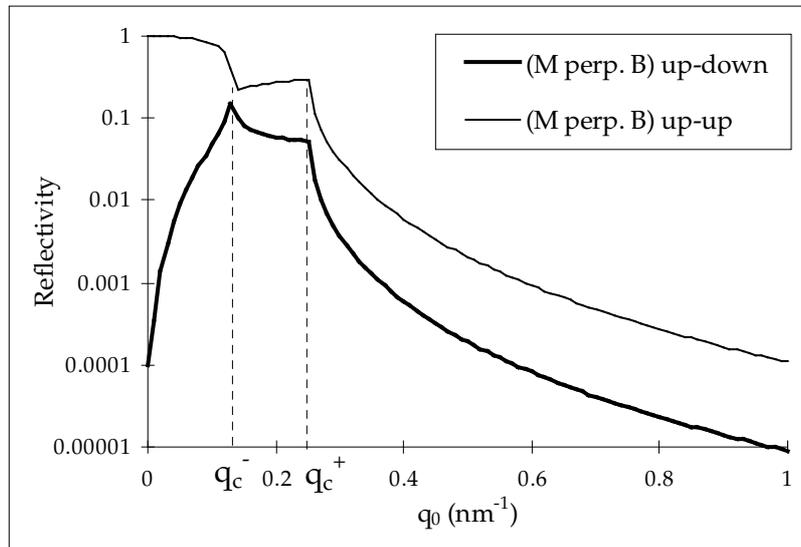


Figure 16 : signal de réflectivité sur un dioptre dont l'aimantation est perpendiculaire au champ magnétique appliqué. En trait fin, signal de non spin-flip ; en trait gras, signal de spin-flip.

La forme caractéristique du signal de spin-flip (voir Figure 16, courbe en trait gras) est donnée par le terme  $|q_s^+ - q_s^-|^2$ . Les variations de ce terme sont tracées sur la Figure 17 (courbe en trait gras). Deux changements de régime successifs apparaissent aux points  $q_c^-$  et  $q_c^+$ . Ils correspondent aux points où les valeurs de  $q_s^-$  et  $q_s^+$  passent successivement de valeurs imaginaires pures à réelles.

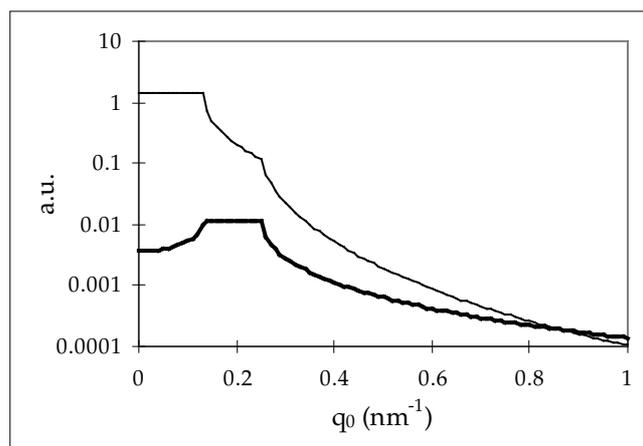


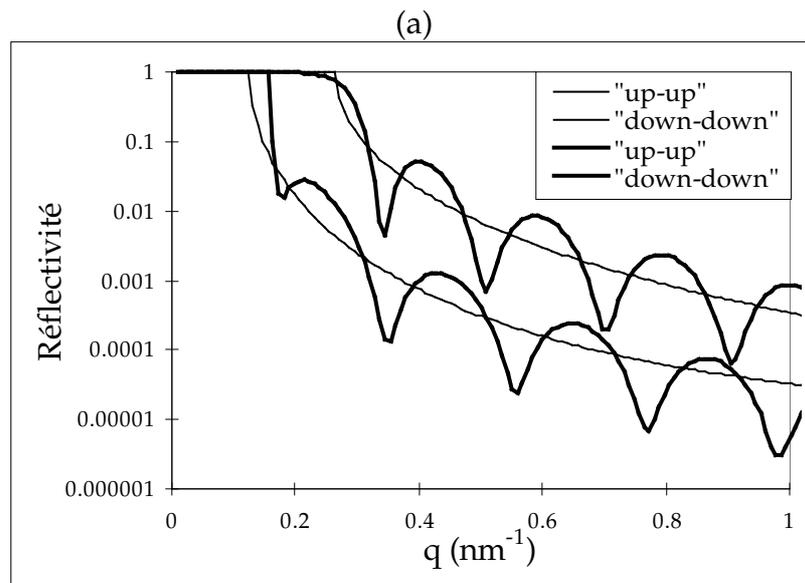
Figure 17 : variations de deux des facteurs de l'intensité de spin-flip. En trait gras, facteur  $|q_s^+ - q_s^-|^2$ . En trait fin, facteur  $1 / \left( (q_0 + q_s^+)(q_0 + q_s^-) \right)^2$ .

Ce signal est légèrement modulé par le facteur  $q_0$  qui donne une augmentation linéaire. Le facteur  $1 / |(q_0 + q_s^+)(q_0 + q_s^-)|^2$  donne une décroissance très rapide à grands  $q$ . Ses variations sont tracées en trait fin sur la Figure 17.

Le signal de spin-flip est lié au retournement de neutrons " up " dans l'état " down " dû à la précession des neutrons autour de l'aimantation dans la couche mince. Le retournement de neutrons " down " dans l'état " up " donne un signal de spin-flip symétrique au signal " up-down ".

Dans le cas où l'aimantation n'est pas strictement perpendiculaire au champ appliqué, les trois termes composant l'intensité  $I^{NSF}$  sont modulés par des facteurs  $\cos^4 \frac{\phi}{2}$ ,  $\sin^4 \frac{\phi}{2}$  et  $2 \cos^2 \frac{\phi}{2} \sin^2 \frac{\phi}{2}$ .

Dans le cas d'une couche magnétique déposée sur un substrat non magnétique, les considérations précédentes ne sont pas qualitativement modifiées. La seule différence majeure est l'apparition de franges de Kiessig au-delà du plateau de réflectivité totale (voir Figure 18).



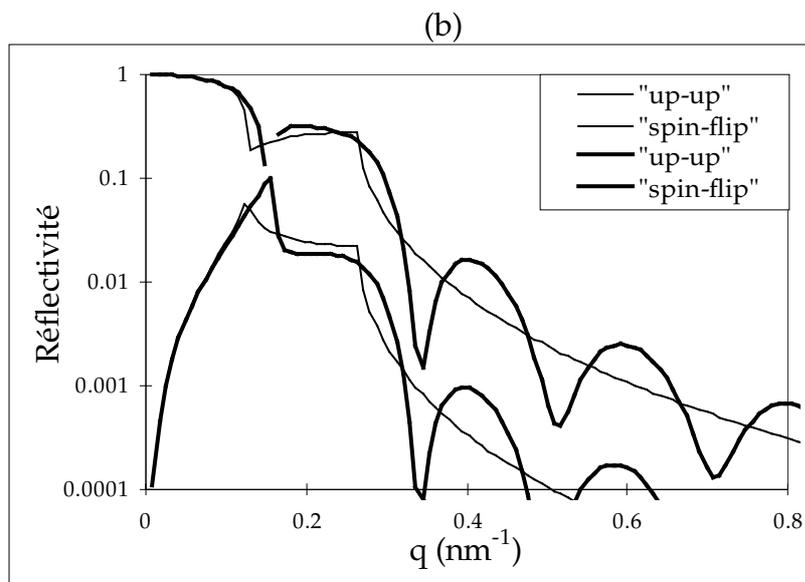


Figure 18 : En traits fins, réflectivité d'un dioptre de fer, en traits larges, réflectivité d'une couche de fer de 30 nm déposée sur saphir. Figure (a) : cas d'une aimantation parallèle au champ magnétique appliqué ; Figure (b) : cas d'une aimantation perpendiculaire au champ magnétique appliqué.

La Figure 19 compare la réflectivité d'une couche mince de Fe de 30 nm d'épaisseur déposée sur un substrat de saphir dans le cas où l'aimantation est alignée avec le champ magnétique et dans le cas où l'aimantation fait un angle de  $15^\circ$  avec le champ magnétique appliqué. Dans le premier cas (aimantation parallèle au champ), les neutrons "up" et "down" restent dans un état propre pendant la réflexion. Au contraire, quand l'aimantation n'est pas alignée avec le champ magnétique, lors de la réflexion sur la couche magnétique, les neutrons incidents ne sont plus dans un état propre. Cela induit un fort signal de spin-flip lié à la précession autour de la composante de l'aimantation perpendiculaire au champ magnétique appliqué. On peut dire qualitativement que le signal de spin-flip donne des informations sur l'aimantation perpendiculaire au champ magnétique appliqué.

Dans l'exemple présenté, les signaux de non spin-flip sont très peu modifiés par l'aimantation perpendiculaire. On pourrait être tenté de supposer que l'on peut superposer linéairement les signaux dus à l'aimantation parallèle et perpendiculaire au champ magnétique appliqué. Cette hypothèse n'est cependant pas bonne dans le cas de systèmes plus complexes qu'une couche simple.

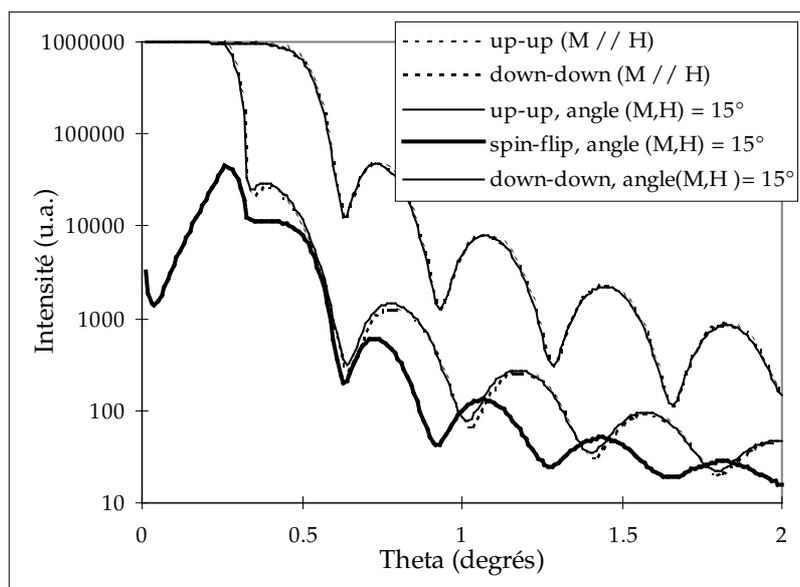


Figure 19 : comparaison du signal de réflectivité sur une couche mince de Fe (30nm) déposée sur saphir dans les deux cas suivants : (traits pointillés) l'aimantation est alignée avec le champ magnétique, il n'y a pas de signal de spin-flip ; (traits continus) l'aimantation fait un angle de  $15^\circ$  avec la direction du champ magnétique. Un important signal de spin-flip (trait gras) apparaît.

## 5. Sensibilité de la technique de réflectivité de neutrons polarisés dans la détermination de profils d'aimantation.

### a) Sensibilité en profondeur.

Il n'est pas possible de décrire de manière générale l'effet de profil d'aimantations sur les courbes de réflectivité. Nous allons simplement essayer d'illustrer graphiquement la sensibilité en profondeur pour quelques cas simples.

Afin de ne pas compliquer les formes des courbes de réflectivité, je ne présenterai que des exemples simples.

### *Gradients d'aimantation dans une couche de fer de 20 nm déposée sur un substrat de saphir.*

Pour illustrer la sensibilité de la technique de PNR, comparons la réflectivité d'une couche mince de fer dont l'aimantation n'est pas homogène dans l'épaisseur du film.

Les courbes de la Figure 20 montre la réflectivité dans les trois cas suivants :

1. aimantation homogène et égale à  $2.1 \mu_B/\text{atome}$ .
2. aimantation augmentant de  $2.0$  à  $2.2 \mu_B/\text{atome}$ .
3. aimantation diminuant de  $2.2$  à  $2.0 \mu_B/\text{atome}$ .

L'aimantation moyenne globale du système est maintenue constante à  $2.1 \mu_B/\text{atome}$ .

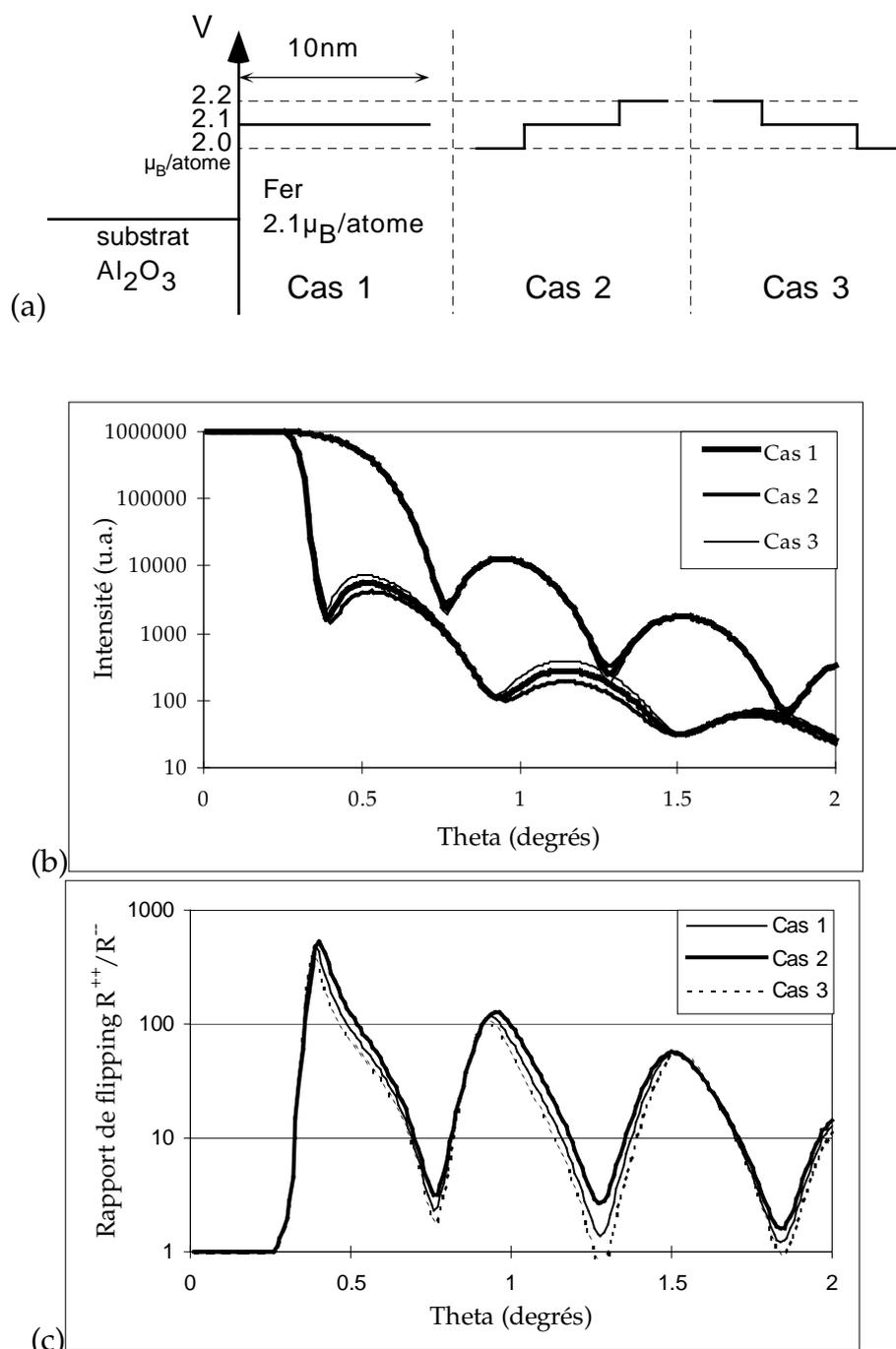


Figure 20 : comparaison de la réflectivité d'une couche de fer de 20 nm déposée sur un substrat de saphir et présentant trois états d'aimantation différents (voir schéma (a)). Figure (b) : signal de réflectivité pour les trois états d'aimantation, on observe un changement sensible du signal de "down-down". Figure (c) : rapport  $I^{++}/I^{-}$  en fonction de l'angle d'incidence.

On observe que même pour des gradients d'aimantation très faibles (inférieurs à 5% de l'aimantation totale) il est possible d'observer des changements significatifs des signaux de réflectivité. De plus, on notera qu'il est possible de distinguer les cas 2 et 3 (gradient d'aimantation positif et négatif). Les cas (2) et (3) sont situés de "part et d'autre" du cas homogène (1).

En pratique, pour obtenir une telle sensibilité il est préférable d'effectuer une mesure en champ saturant puis de comparer l'évolution de l'aimantation lorsque l'amplitude du

champ magnétique appliqué diminue. Une telle mesure " relative " peut ainsi être très précise.

De telles mesures ont été effectuées sur des couches de nickel soumises à des contraintes épitaxiales induites par une couche tampon et de couverture de cuivre (Hope, 1997).

b) *Sensibilité en valeur absolue.*

Pour illustrer la sensibilité en valeur absolue de la technique, nous allons présenter le cas d'une couche diatomique de fer en sandwich entre un buffer et une couche de couverture de tungstène. La Figure 21 illustre le détail de la configuration de ce système.

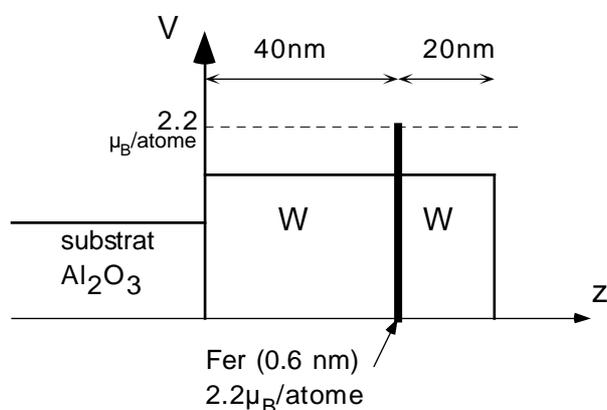


Figure 21 : système d'une bicouche atomique de fer en sandwich entre une couche tampon et une couche de couverture de tungstène déposée sur un substrat de saphir. En abscisse, l'axe (Oz) perpendiculaire à la couche ; en ordonnée, l'amplitude du potentiel d'interaction avec les neutrons.

Les courbes de réflectivité de la Figure 22a montre l'effet important de cette très fine couche de fer sur le signal de réflectivité. La couche de fer ne représente que 0.1% de l'épaisseur totale du système (couche tampon et de couverture de tungstène), mais la différence entre les signaux " up-up " et " down-down " est très importante.

La Figure 22b montre l'évolution du rapport  $I^{++}/I^{-}$  pour deux valeurs d'aimantation de la couche de fer (1.8 et 2.2  $\mu_B$ /atome). Des différences sensibles apparaissent dans ce signal. Cet exemple illustre la sensibilité de la technique à de très petits volumes magnétiques.

Des mesures de réflectivité de neutrons polarisés sur des systèmes de ce type ont été réalisées par (McGrath, 1994).

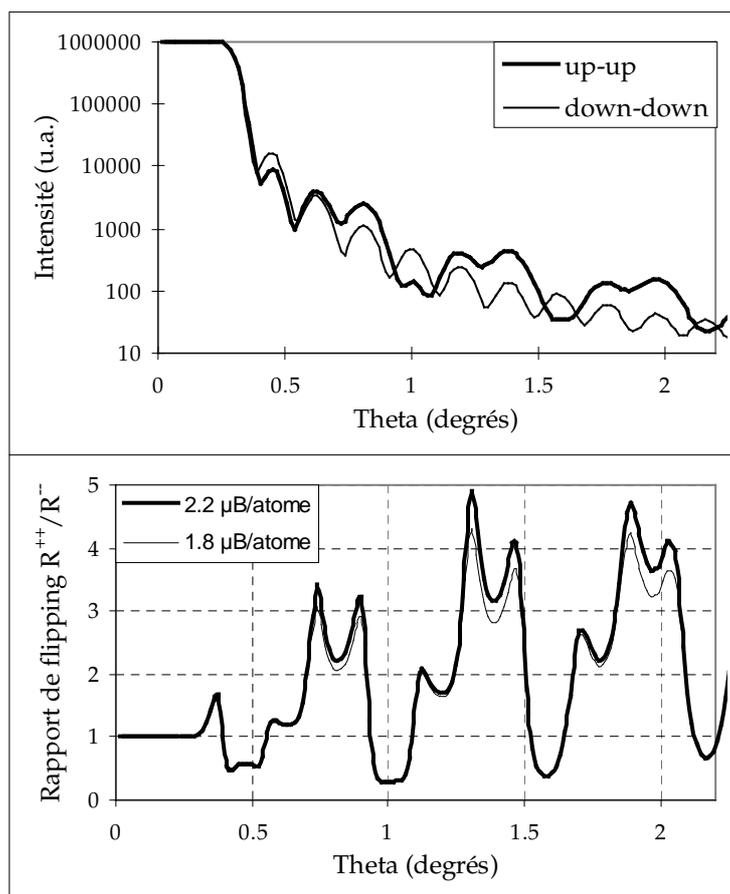


Figure 22 : comparaison de la réflectivité du système décrit sur la Figure 21 pour différents états d'aimantation de la couche de fer (1.8 et 2.2  $\mu\text{B}/\text{atome}$ ). Figure (a) : signal de réflectivité pour les trois états d'aimantation, on observe un changement sensible du signal de " down-down ". Figure (b) : signal  $I^{++}/I^{--}$  en fonction de l'angle d'incidence.

Les exemples présentés ci-dessus sont des cas extrêmes du potentiel de la technique de réflectivité de neutrons polarisés. Les situations expérimentales " classiques " sont en général moins exigeantes. On constate aussi qu'on peut obtenir des informations sur des profils d'aimantations à l'aide de mesures sur 4 à 5 décades d'intensité. Cependant l'inversion d'un signal de réflectivité n'est pas directe. Ce point est discuté dans le paragraphe suivant.

## 6. Inversion des profils expérimentaux.

Le formalisme développé dans le paragraphe précédent permet de relier des modèles de structures magnétiques à des mesures expérimentales c'est-à-dire qu'à partir d'un jeu de courbes de réflectivité ( $I^{++}$ ,  $I^{-}$ ,  $I^{+}$ ,  $I^{--}$ ) il est possible de reconstruire un profil résolu en profondeur (suivant  $z$ ) des composantes planaires de l'aimantation. Cependant mathématiquement il existe plusieurs solutions pour l'inversion d'un jeu de courbes de réflectivité donné. Cela est dû au fait qu'une partie de l'information est perdue car on ne mesure que l'intensité du signal et qu'on perd le signal de phase. Mais en général, l'ajustement numérique des courbes ne conduit qu'à une seule solution physique (sauf dans des cas particuliers).

Il est toujours intéressant de connaître le maximum d'informations sur le système physique étudié. Ces informations peuvent être obtenues par des techniques complémentaires :

- Des mesures en réflectivité X peuvent donner la structure chimique avec une bonne précision.
- Des mesures magnétiques peuvent déterminer l'aimantation globale du système. Dans le cas où les compositions chimiques sont incertaines, une analyse chimique peut être intéressante.
- Par ailleurs, les nouvelles techniques de microscopie en champ proche (AFM, STM, SNOM ...) peuvent donner des informations importantes sur la morphologie du film en surface et ainsi d'avoir une idée de la rugosité de surface.

Les résultats seront d'autant plus fiables que le nombre d'expériences sur le système est grand. On peut répéter les expériences en faisant varier certains paramètres :

- on peut varier le champ magnétique en intensité et en direction.
- la température peut être utilisée comme paramètre variable pour passer d'un ordre magnétique à un état paramagnétique par exemple.

### *Principe de l'inversion des courbes de réflectivité.*

Dans quelques cas de profils particuliers, il existe des solutions analytiques. Le nombre de ces profils est assez limité. Par ailleurs cela suppose que l'on ait une connaissance *a priori* sur le système physique. Cela peut être le cas pour la pénétration du flux dans des couches supraconductrices ou pour les problèmes de diffusion aux interfaces (profils exponentiels). Mais ces cas sont des exceptions. En général, le système physique étudié présente un profil de densité de longueur de diffusion (DLD) quelconque. Pour inverser les courbes de réflectivité, il faut subdiviser le système de couches minces en un certain nombre de sous-couches et leur attribuer les paramètres physiques les plus raisonnables. Ensuite par itération on essaie d'ajuster un certain nombre de paramètres (le plus faible possible de préférence) : on calcule les courbes théoriques correspondant au profil supposé et on calcule l'écart aux moindres carrés par rapport aux courbes expérimentales. Comme les intensités décroissent très vite, on applique une pondération en  $q^{-3}$  sur les points de mesure. On ajuste ensuite successivement les paramètres les uns après les autres afin de minimiser l'écart entre les courbes théoriques et expérimentales. Parmi les paramètres ajustables figurent : l'épaisseur des couches, la longueur de diffusion atomique, la densité, le moment magnétique, la direction du moment magnétique et éventuellement l'absorption et la rugosité. Cette méthode est la plus généralement utilisée. D'autres méthodes ont été proposées telles que le maximum d'entropie ou des méthodes de type Monte Carlo. Les méthodes de type maximum d'entropie sont utiles lorsque les systèmes présentent des variations molles (par exemple des systèmes de polymères). En effet, un système de polymères ne se prête pas de manière aussi naturelle à une subdivision en sous-couches qu'un système multicouche pour lequel cette subdivision est " naturelle ".

Des tentatives ont aussi été faites pour essayer de trouver des solutions analytiques à l'inversion des courbes de réflectivité (Zhou, 1995).

On trouvera des discussions plus détaillées sur l'inversion des profils de réflectivité dans (Pedersen, 1994 ; Hamley, 1994 ; Samoilenko, 1996 ; Chou, 1997).

*N.B.* : la normalisation du plateau de réflectivité totale est absolue en réflectivité de neutrons car il n'y a pas d'absorption. Cela est très différent du cas de la réflectivité X où la normalisation des courbes est un paramètre ajustable. Cela simplifie considérablement les procédures d'ajustement puisqu'il est possible de **normaliser " exactement "** le signal de réflectivité.

### *En pratique.*

Supposons que l'on ait mesuré un jeu de courbes de réflectivité (" up-up ", " down-down " et " spin-flip ").

Pour la procédure d'ajustement numérique, il est conseillé de partir d'un modèle aussi simple que possible et qui correspond à la structure que l'on a fabriquée.

Le substrat est toujours bien caractérisé et sa longueur de diffusion peut être calculée exactement. Sa rugosité est elle aussi en général relativement bien connue<sup>11</sup>.

Supposons que sur ce substrat ait été déposé un système multicouche. Les conditions de dépôt donnent les épaisseurs avec une précision de l'ordre de 15%. Le modèle correspondant au système " idéal " que l'on souhaitait fabriquer est entré dans le programme de simulation numérique.

En général, la simulation numérique à partir de ce modèle idéal ne donne pas un résultat identique à la mesure.

Une première étape est l'ajustement des épaisseurs des différentes couches du modèle afin de reproduire les bonnes périodicités observées dans la mesure par un jugement visuel.

Dans une deuxième étape, il est nécessaire d'ajuster l'aimantation de la ou des couches magnétiques. La séparation des courbes " up-up " et " down-down " permet un ajustement grossier à 10-20% près.

Après ce dégrossissage, on observe en général toujours des différences entre le signal mesuré et le signal simulé. Les différences peuvent avoir plusieurs origines : densités en général surévaluées de 5-10% par rapport à la densité théorique, aimantations mal ajustées, rugosité/alliages au niveau des interfaces.

Une première simulation numérique est alors lancée en laissant relaxer les paramètres de manière relativement libre (épaisseurs des couches dont l'épaisseur n'est pas parfaitement connue, valeur de l'aimantation, densité du matériau).

Deux scénarios sont alors envisageables :

- soit le programme d'ajustement diverge vers une solution non physique (matériau trop dense, trop peu dense, aimantation divergente) : le modèle de départ est trop éloigné du système.
- soit le programme converge vers une solution s'approchant de la courbe mesurée et finit par arriver dans un minimum. L'expérimentateur doit juger si ce premier modèle est en accord avec les informations qu'il connaît a priori sur le système (en particulier les épaisseurs et l'aimantation globale du système).

---

<sup>11</sup> Les techniques de champ proches actuelles (AFM en particulier) permettent de caractériser les rugosités de surfaces en quelques minutes.

Dans le cas où le modèle simple permet de rendre compte de la mesure, on s'estime satisfait. Cependant, on n'a pas obtenu d'informations physiques nouvelles.

Le cas intéressant est lorsque le modèle " simple " ne permet pas de rendre compte " exactement " de la mesure physique. Dans une deuxième étape, l'expérimentateur doit faire une hypothèse physique (raisonnable) qui pourrait permettre de s'approcher de la mesure. Plusieurs possibilités sont ouvertes : introduction d'une couche d'alliage entre couche magnétique et non magnétique par exemple dont l'aimantation est libre ou subdivision de la couche magnétique en un certain nombre de sous-couches. Une procédure d'ajustement est alors à nouveau lancée en laissant varier ces nouveaux paramètres mais en fixant les paramètres déterminés précédemment. Si l'hypothèse est bonne le modèle se rapproche de la mesure. Sinon on recommence avec une nouvelle hypothèse.

Dans une étape finale, on laisse varier un grand nombre de paramètres et on vérifie que la solution est stable.

Il est par ailleurs toujours souhaitable de faire plusieurs hypothèses et de tester si les deux modèles de départ convergent vers la même solution.

### *Exemple de mesure sur une couche d'oxyde de manganèse $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ déposée sur un substrat de $\text{SrTiO}_3$ .*

Nous allons illustrer ici la procédure d'ajustement d'une courbe de réflectivité. Considérons un système composé d'une couche mince d'oxyde de manganèse  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  (ferromagnétique) de 40 nm d'épaisseur déposée sur un substrat de  $\text{SrTiO}_3$  et recouverte d'une fine couche de  $\text{SrTiO}_3$  (5 nm). Ce système a été fabriqué à l'UMR CNRS/Thomson-CSF par ablation laser dans le groupe de J.P. Contour. La Figure 23 montre la réflectivité de ce système et deux simulations numériques. En trait fin est tracé la réflectivité du système idéal tel qu'on souhaitait le fabriquer (l'aimantation a été fixée à  $3 \mu_B/\text{cellule atomique}$ ). Les indices utilisés sont les indices théoriques ( $\delta = 1 - n = 8.94 \cdot 10^{-6}$  pour  $\text{SrTiO}_3$  et  $\delta = 9.44 \cdot 10^{-6}$  pour  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ ). La courbe calculée présente une ressemblance avec la courbe mesurée mais il existe de nombreux écarts. Dans une deuxième étape, pour la procédure d'ajustement, on laisse varier les épaisseurs, la valeur de l'aimantation et on autorise l'indice optique de la couche ferromagnétique à fluctuer. Le meilleur ajustement numérique obtenu en laissant ces paramètres libres est tracé en trait gras sur la Figure 23. On constate que l'ajustement est relativement bon jusqu'à  $0.4^\circ$  mais qu'au-delà on s'éloigne beaucoup de la mesure. On retrouve le fait que pour les petits vecteurs de diffusion  $q$  (faible angle d'indice) on est essentiellement sensible aux propriétés globales du système. Les détails du système sont révélés à plus grand angle d'incidence. C'est pourquoi notre premier modèle simple (global) ne permet pas de rendre compte de ce qui se passe au-delà de  $0.4^\circ$ .

Les nouvelles valeurs obtenues à partir de la première procédure d'ajustement sont : des épaisseurs de 40.5 et 5.6 nm respectivement pour les couches de  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  et de  $\text{SrTiO}_3$ , un indice diminué de 5% pour la couche ferromagnétique et un moment de  $2.1 \mu_B/\text{cellule atomique}$ . La diminution de l'indice est souvent observée et correspond en général à une densité du matériau plus faible que la densité théorique. L'ajustement

numérique n'est cependant toujours pas satisfaisant et donc nous allons tester plusieurs hypothèses.

Dans un premier temps, on introduit une couche superficielle de surface permettant de rendre compte d'éventuels matériaux adsorbés en surface ou de changements de composition. Cela ne fonctionne pas. La procédure d'ajustement numérique fait diverger l'indice de cette couche de surface vers des valeurs non physiques.

Dans une deuxième hypothèse, on introduit une couche d'"interface" entre le substrat de  $\text{SrTiO}_3$  et la couche d'oxyde ferromagnétique. On fixe arbitrairement son épaisseur à 3 nm au départ. L'ajustement numérique converge de manière relativement satisfaisante (voir Figure 24). L'épaisseur de cette couche augmente jusqu'à une épaisseur de 8 nm et son aimantation atteint une valeur de  $1 \mu_B/\text{cellule}$  unité. Cette diminution de l'aimantation peut avoir plusieurs origines (rugosité, contraintes épitaxiales, ou bien stoechiométrie en oxygène).

Une troisième hypothèse a été envisagée : existence d'une couche interfaciale entre la couche ferromagnétique et la couche supérieure de  $\text{SrTiO}_3$ . De manière surprenante, lorsque cette couche est introduite, elle se "substitue" à la couche de  $\text{SrTiO}_3$  pendant la procédure d'ajustement : son épaisseur augmente jusqu'à 5 nm et son aimantation devient nulle, parallèlement, l'épaisseur de la couche de  $\text{SrTiO}_3$  décroît jusqu'à 0.5 nm. Si l'on essaye d'introduire plus de degrés de liberté dans le système, en particulier en subdivisant la couche ferromagnétique principale en deux sous-couches, l'aimantation n'évolue pas de manière significative (2.23 et 2.17  $\mu_B/\text{atome}$  pour chacune des couches).

Il est effectivement impossible d'obtenir des informations plus détaillées à partir des mesures de réflectivité car dans ce cas particulier, l'étendue de la mesure dans l'espace réciproque est trop limitée.

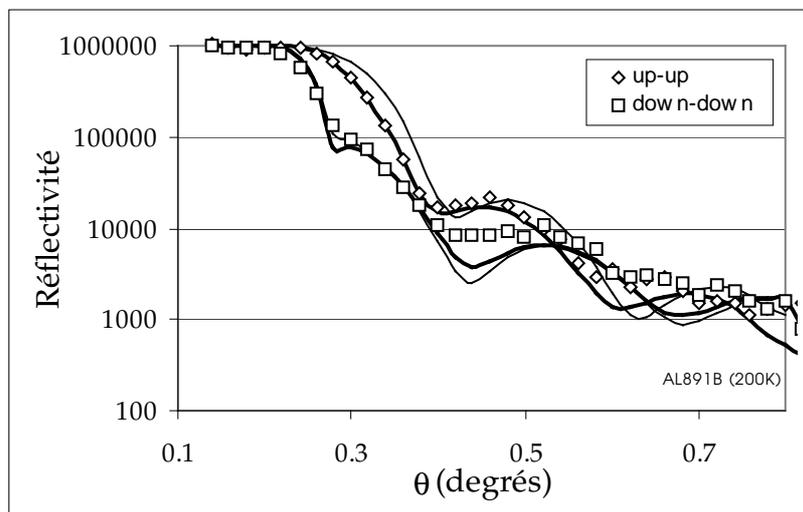


Figure 23 : réflectivité d'une couche d'oxyde de manganèse ferromagnétique  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$  (40nm) déposée sur un substrat de  $\text{SrTiO}_3$  et recouverte d'une fine couche de  $\text{SrTiO}_3$  (5nm). En trait fin : réflectivité du système parfait tel qu'on souhaitait le fabriquer. En trait gras : ajustement numérique dans lequel on a laissé varier les épaisseurs des deux couches, l'aimantation de la couche magnétique et l'indice du matériau ferromagnétique.

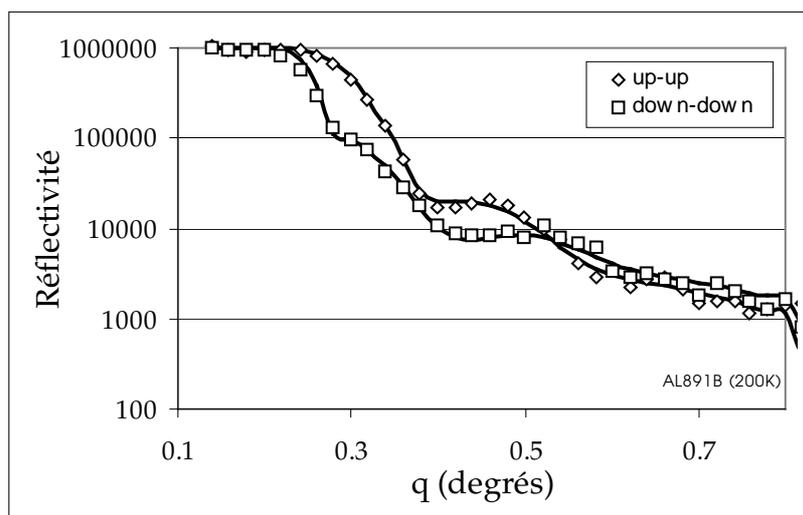


Figure 24 : meilleur ajustement numérique obtenu pour un système bicouche  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3$ . Voir les détails du résultat obtenu dans le texte.

## 7. Réflexion sur des couches non idéales.

Dans les expériences réelles, les systèmes étudiés ne sont pas parfaits. Les couches présentent une certaine rugosité qui les écarte plus ou moins du modèle idéal. On peut considérer qu'il existe trois échelles de rugosité caractérisée par une longueur caractéristique latérale  $\xi$  au-delà de laquelle la surface apparaît plane :

- **une rugosité au niveau atomique.** Elle est liée à l'interdiffusion entre les couches minces (voir Figure 26),  $\xi < 100$  nm.
- **une rugosité intermédiaire** ( $\xi$  de  $0.5 \mu\text{m}$  à  $50 \mu\text{m}$ ). Elle donne lieu à une diffusion non spéculaire. Un traitement correct des courbes de réflectivité exige que cette diffusion non spéculaire soit mesurée afin d'éventuellement corriger le signal de réflectivité spéculaire (voir Figure 25).
- **une rugosité à grande échelle** ( $\xi > 50 \mu\text{m}$ ), (voir Figure 27). Elle correspond par exemple à des variations d'épaisseur le long de l'échantillon (cela peut être particulièrement important dans le cas d'échantillons de grande surface).

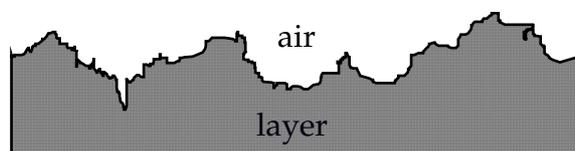


Figure 25 : rugosité de surface à l'échelle micrométrique d'une interface entre une couche mince et le vide.

### a) Interdiffusion atomique.

On peut décrire de manière satisfaisante l'interdiffusion atomique en introduisant au niveau de l'interface une couche d'alliage qui possède un indice moyen entre les couches supérieure et inférieure. L'ajustement numérique permet d'évaluer la composante de cet alliage d'interface en pourcentages des deux espèces chimiques.

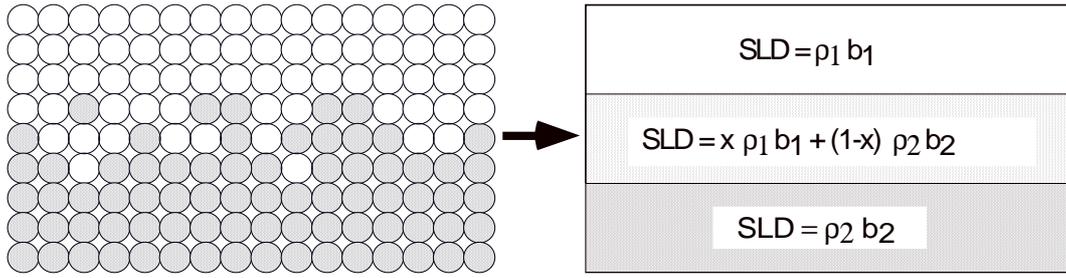


Figure 26 : (à gauche) interdiffusion entre deux couches sur une épaisseur de 3 monocouches atomiques. (à droite) modélisation de la zone d'interdiffusion par une couche d'alliage.

b) *Inhomogénéité d'épaisseur d'une couche mince.*

En réflectivité de neutrons, on préfère travailler sur des échantillons aussi grands que possible afin de maximiser les intensités disponibles. La contrepartie est que sur des échantillons de trop grande taille des inhomogénéités d'épaisseur peuvent apparaître. La conséquence de ces inhomogénéités est que la courbe de réflectivité mesurée est la superposition de courbes de réflectivités correspondant à plusieurs épaisseurs. En pratique on peut tenir compte de cet effet en introduisant un élargissement de la résolution en longueur d'onde  $\Delta\lambda/\lambda$  (c'est équivalent à appliquer un facteur d'homothétie aux parties de l'échantillon ayant des épaisseurs différentes) (voir Figure 27).

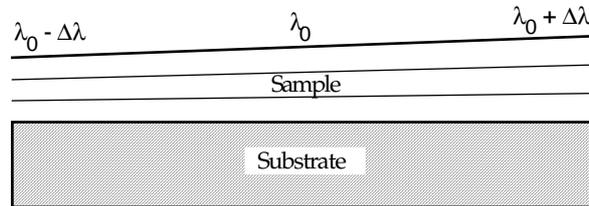


Figure 27 : inhomogénéité d'épaisseur d'une couche mince.

c) *Rugosité microscopique.*

Supposons que l'interface présente une rugosité gaussienne. Soit  $z(\mathbf{r})$  l'écart entre la surface de référence (plane) et la surface réelle. La déviation standard  $\sigma$  est définie par :

$$\sigma = \sqrt{\langle z^2 \rangle_s} \quad (\text{I.188})$$

Le profil de densité de longueur de diffusion (DLD) est alors décrit par une fonction erreur :

$$\rho(z) = \rho_1 + \frac{\rho_2 - \rho_1}{2} \left( 1 + \operatorname{erf} \left( \frac{z}{\sqrt{2}\sigma} \right) \right) \quad (\text{I.190})$$

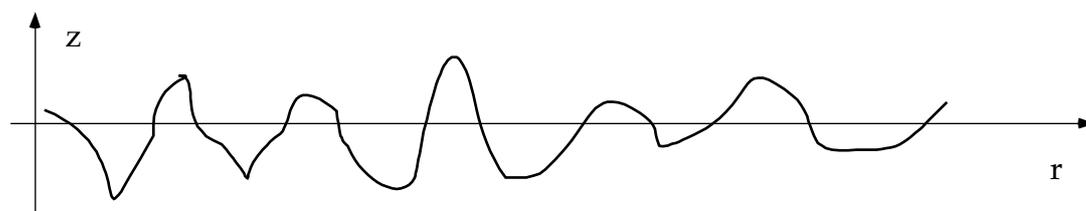


Figure 28 : profil d'une surface rugueuse.

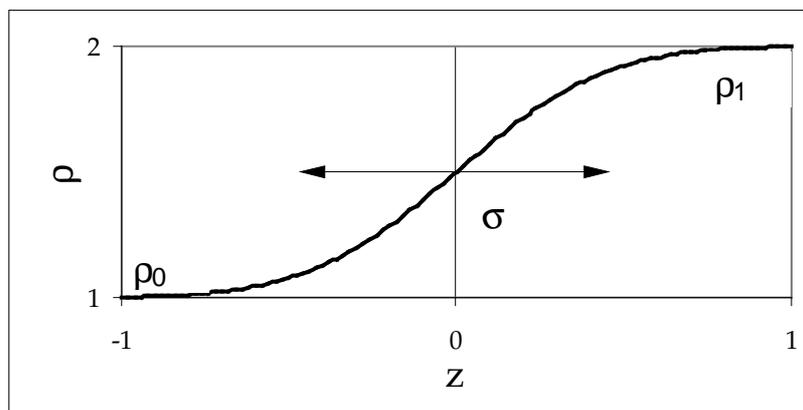


Figure 29 : profil de densité de longueur de diffusion pour une interface gaussienne (variation en erf).

On peut montrer qu'une rugosité gaussienne (Névoit, 1980 ; Zhou, 1995) introduit un facteur d'atténuation au niveau de chaque interface donné par :

$$\exp(-2k_1 k_2 \sigma^2) \quad (\text{I.192})$$

ou bien

$$\exp(-(k_1 + k_2)^2 \sigma^2 / 2) \quad (\text{I.194})$$

où  $k_1$  et  $k_2$  sont les composantes suivant  $z$  du vecteur d'onde dans chacune des couches. Des évaluations numériques montrent que les expressions (I.192) et (I.194) diffèrent de moins d'1% dans les géométries typiques de réflectivité (incidence rasante).

*N.B. : abusivement, on dénomme souvent le facteur (I.192) "facteur de Debye-Waller".*

Dans le cas de surface résultant de processus faisant intervenir un grand nombre d'événements aléatoires (arrivée d'atomes lors d'un dépôt sous vide par exemple), la distribution de probabilité  $p(h)$  des hauteurs  $z(r)$  peut être décrite par une distribution gaussienne (Ogilvy, 1991). Cependant, la distribution gaussienne est souvent seulement approchée (e.g. sur une surface polie, le polissage écrête les grands pics mais laisse les creux inchangés).

*Comment interviennent les corrélations entre les hauteurs ?*

On définit la fonction d'autocorrélation des hauteurs  $C(r)$  par :

$$C(\mathbf{R}) = \frac{\langle z(\mathbf{r})z(\mathbf{r} + \mathbf{R}) \rangle_s}{\sigma^2} \quad (\text{I.196})$$

Plusieurs formes ont été proposées pour cette fonction d'autocorrélation :  $C(\mathbf{R})$  est-elle gaussienne, exponentielle, lorentzienne... ? Chacune de ces formes ne sont souvent valables que pour une certaine gamme de  $\mathbf{R}$ .

Des études récentes introduisent des modèles de surface self-affines (fractales) qui sont invariantes par changement d'échelle. La fonction de corrélation des hauteurs est alors décrite par une forme du type :

$$C(\mathbf{R}) = AR^{2h}, \quad (0 < h < 1) \quad (\text{I.198})$$

La dimension de la surface est  $D = 3 - h$ . Quand  $h$  est proche de 1, la surface est peu rugueuse, quand  $h$  tend vers 0, la surface devient très heurtée. Cependant l'équation (I.198) décrit une surface idéale. La fonction  $C(\mathbf{R})$  diverge pour  $R \rightarrow \infty$ . En pratique, la fonction de corrélation des hauteurs est limitée à 1. On peut alors la mettre sous la forme :

$$C(\mathbf{R}) = e^{-(R/\xi)^h}, \quad (0 < h < 1) \quad (\text{I.200})$$

La longueur  $\xi$  est la distance caractéristique au delà de laquelle la surface apparaît plane (distance de cut-off).

Un calcul dans l'approximation de Born (Sinha, 1988) (*non valable près du plateau de réflectivité totale*) permet de montrer que :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\mathbf{q}) = \frac{N^2b^2}{q_z^2} e^{-q_z^2\sigma^2} \iint_{S_0} dX dY e^{q_z^2 C(X,Y)} e^{-i(q_x X + q_y Y)} \quad (\text{I.202})$$

que l'on peut séparer en une contribution spéculaire et une contribution diffuse :

$$\left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{spec}(\mathbf{q}) = \frac{N^2b^2}{q_z^2} e^{-q_z^2\sigma^2} \delta(q_x) \delta(q_y) \quad (\text{I.204})$$

$$\left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{diff}(\mathbf{q}) = \frac{N^2b^2}{q_z^2} e^{-q_z^2\sigma^2} \iint_{S_0} dX dY (e^{q_z^2 C(X,Y)} - 1) e^{-i(q_x X + q_y Y)} \quad (\text{I.206})$$

L'intensité spéculaire est simplement l'intensité réfléchi sur la couche plane parfaite multipliée par un facteur d'atténuation  $e^{-q_z^2\sigma^2}$ . On retrouve le résultat précédent.

L'intensité diffusée non spéculaire mesure quant à elle le *spectre des rugosités* (transformée de Fourier de la fonction de corrélation des hauteurs  $C(X,Y)$ )

*Exemple d'effet de rugosité du substrat sur la réflexion spéculaire.*

La rugosité du substrat modifie considérablement la courbe de réflectivité spéculaire. Le plateau est arrondi et la décroissance est beaucoup plus rapide. Cette rugosité peut se transmettre au film déposé sur ce substrat et donc aussi modifier ses profils de réflectivité. La Figure 30 montre la réflectivité de deux surfaces de verre de rugosité différente. Les courbes continues montrent les ajustements obtenus en appliquant un facteur de Debye-Waller. (cf. (I.192)).

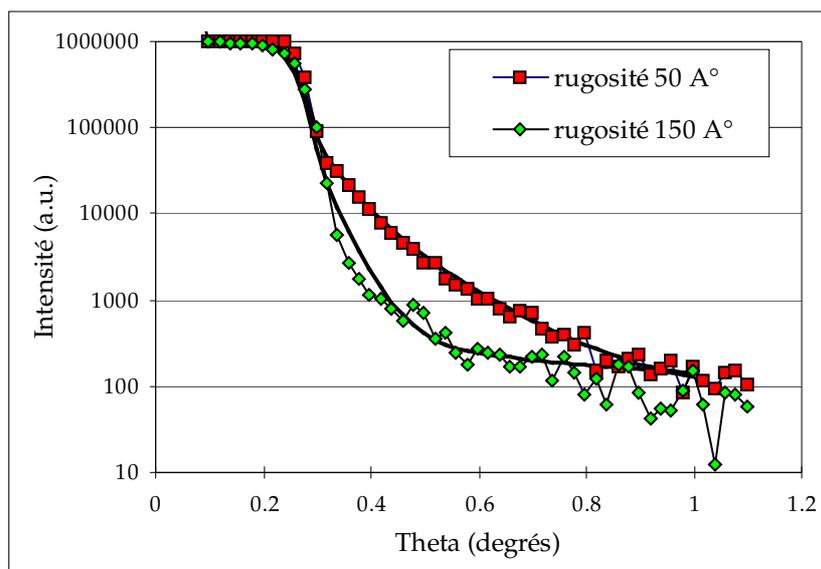


Figure 30 : réflectivité de deux surfaces de verre de rugosités différentes. Ajustements en traits gras utilisant un facteur de Debye Waller (première courbe,  $\sigma = 5$  nm ; deuxième courbe,  $\sigma = 15$  nm).

#### Exemple d'effet de rugosité sur une couche simple

La Figure 31 montre l'exemple d'une couche de nickel déposée sur un substrat de silicium présentant deux types de rugosité différentes (structurale et interdiffusion).

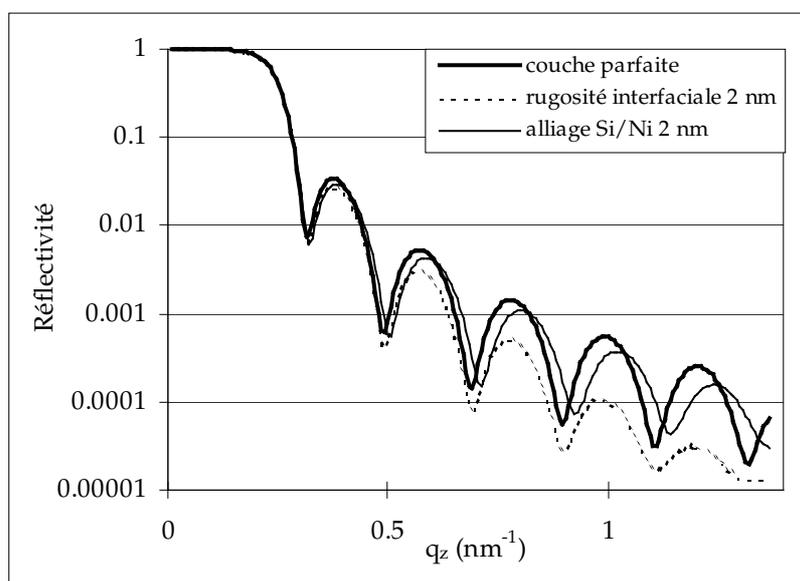


Figure 31 : courbe de réflectivité d'une couche de nickel de 30 nm déposée sur Si. En trait gras, système parfait. En trait pointillé, on a supposé une rugosité de 2 nm au niveau de l'interface et appliqué une correction de Debye-Waller. En trait fin, diffusion interfaciale Ni/Si sur une épaisseur de 2 nm.

Si on suppose que l'interface présente une rugosité de 2 nm au niveau de l'interface Ni/Si et qu'on applique un facteur de Debye-Waller, on constate que à grands  $q$ , l'intensité décroît très vite et l'amplitude des oscillations diminue beaucoup. Si on suppose au contraire qu'il y a un gradient de composition Si/Ni sur une épaisseur de 2 nm (modèle d'interdiffusion), la décroissance est moins rapide et l'amplitude des

oscillations diminue beaucoup moins vite que dans le cas où on a appliqué un facteur de Debye-Waller. On observe par ailleurs un décalage dans la position des maxima des oscillations.

La différence fondamentale entre les deux modèles est que le traitement par interdiffusion ne fait pas apparaître de diffusion hors spéculaire tandis que le modèle conduisant à un facteur de Debye-Waller implique qu'il y a de la diffusion hors spéculaire. Expérimentalement, la résolution angulaire étant finie sur un spectromètre, on intègre toujours une partie de la diffusion hors spéculaire.

*d) Rugosité magnétique.*

Dans le cas de couches minces magnétiques, il peut y avoir apparition de domaines magnétiques qui correspondent à des **fluctuations de densité magnétique**. Ces fluctuations doivent être traitées comme de la rugosité. La taille caractéristique des domaines se situe en général dans l'échelle de rugosité intermédiaire (cf. ci-dessus 0.5  $\mu\text{m}$  à 50  $\mu\text{m}$ ) et donne donc lieu à un signal de réflectivité non spéculaire.

Une difficulté de calcul apparaît. En effet, l'apparition de domaines magnétiques crée un champ magnétique à l'extérieur de la couche et complique beaucoup les calculs de réflectivité. Mais souvent la taille des domaines est très grande devant l'épaisseur des couches étudiées et le champ dipolaire extérieur à la couche peut être négligé.

A l'exception d'échantillons dans lesquels il y a très grande formation de domaines ou bien qui présentent des structures très rugueuses, le signal de réflectivité non spéculaire est de l'ordre de  $10^{-3}$  à  $10^{-4}$  du signal de réflectivité totale. Les flux actuels de neutrons rendent l'exploitation des informations non spéculaires difficile (la gamme de mesure de notre appareil se situe actuellement entre  $10^{-4}$  et  $10^{-5}$  du signal de réflexion totale). Cependant, dans le cas de formation de domaines, les intensités non spéculaires peuvent être importantes.

## D. Description des dispositifs expérimentaux.

On peut diviser les réflectomètres en deux classes distinctes : les appareils travaillant à longueur d'onde fixe et les appareils travaillant en temps de vol (à longueur d'onde variable). Leur mise en œuvre est très différente. Le dispositif expérimental dans le cas d'un spectromètre à longueur d'onde fixe est très simple dans son principe. Il s'agit d'un spectromètre deux axes classique sur lequel les dispositifs de collimation sont optimisés pour travailler à très faible angle d'incidence (entre  $0^\circ$  et  $10^\circ$ ) avec une très bonne résolution ( $0.02^\circ$ ). La variation du vecteur d'onde de diffusion  $q_z$  est obtenue par une rotation  $\theta/2\theta$  (voir Figure 1a). Dans le cas d'un spectromètre à temps de vol, l'angle d'incidence du faisceau de neutrons est maintenu fixe et la variation du vecteur de diffusion  $q_z$  est obtenue en faisant varier la longueur d'onde des neutrons du faisceau incident (voir Figure 1b). Le choix entre un des deux types d'appareils dépend essentiellement de contraintes techniques. Les spectromètres à temps de vol sont naturellement adaptés aux sources à spallation (ISIS par exemple). Dans le cas d'études sur les surfaces liquides comme l'échantillon doit être maintenu fixe et horizontal, la technique de temps de vol est d'une mise en œuvre plus simple. Cependant la simplicité du dispositif expérimental pourra influencer en faveur des spectromètres à longueur d'onde fixe dans les autres cas. Il est important de souligner que les techniques de polarisation d'un faisceau de neutrons monochromatique sont bien maîtrisées tandis que les techniques de polarisation de faisceaux polychromatiques (typiquement de 0.4 nm à 2.4 nm) sont encore en développement. Dans le cas d'études en neutrons polarisés on préférera donc travailler à longueur d'onde fixe à moins d'être soumis à d'autres contraintes incontournables telles que le travail sur une source de neutrons à spallation.

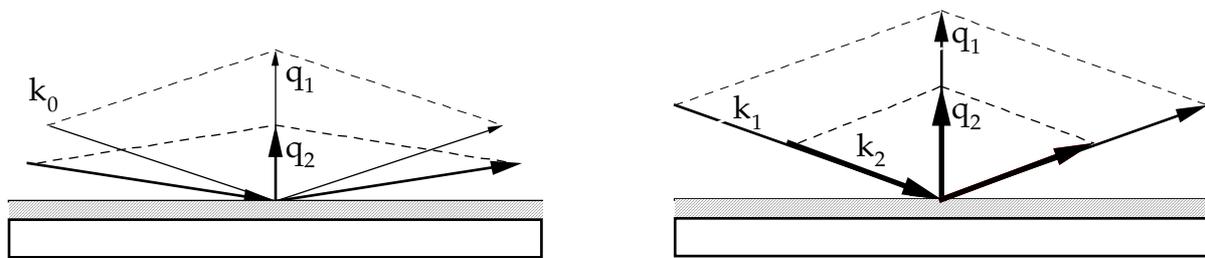


Figure 1 : les deux manières de faire varier le vecteur de diffusion  $q_z$ . A gauche, sur un spectromètre à longueur d'onde fixe, on varie l'angle d'incidence. A droite, sur un spectromètre en temps de vol, l'angle d'incidence est fixe, la longueur d'onde des neutrons varie.

### 1. Description du spectromètre PADA (G.2.2) du Laboratoire Léon Brillouin.

Ce spectromètre travaille à une longueur d'onde fixe de 0.4 nm avec une résolution en longueur d'onde  $\delta\lambda/\lambda$  de 1%. La monochromatisation du faisceau est obtenue par diffraction sur un monochromateur de graphite pyrolytique. La collimation du faisceau incident est obtenue à l'aide de fentes de GGG (grenat de gadolinium-gallium) qui présentent une très forte absorption et génèrent peu de bruit de fond. La

résolution expérimentale est de  $0.025^\circ$ . Les rotations  $\theta$  et  $2\theta$  ont une précision mécanique de  $0.01^\circ$ . La détection des neutrons utilise un détecteur  $\text{He}_3$ . La polarisation peut atteindre de 97 à 99%. Cela correspond à des rapports de renversement de spin ("flipping") allant de 30 à 80.

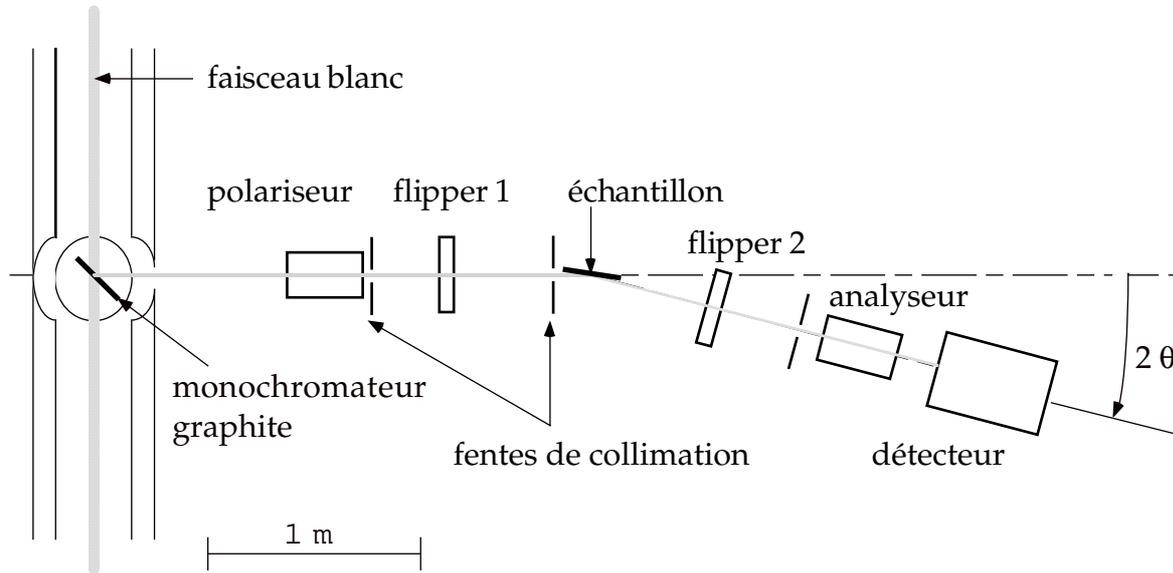


Figure 2 : description schématique du spectromètre PADA (G-2.2) du Laboratoire Léon Brillouin.

a) Collimation du faisceau et divergence expérimentale.

Sur le spectromètre PADA la collimation est assurée par un système de fentes en GGG (grenat de gadolinium gallium). Ce sont les deux fentes amont (1) et (2) qui déterminent la résolution de l'appareil (Figure 3). Les fentes aval (3) et (4) servent à réduire le bruit de fond. La résolution de l'appareil est donnée par : (Bouwman, 1996)

$$\Delta\vartheta = W / L \quad (\text{I.105})$$

où  $W$  est la largeur des fentes et  $L$  la séparation entre les fentes (1) et (2).

Cependant, la formule (I.105) n'est valable que dans le cas où l'échantillon est de taille supérieure à la largeur du faisceau. Dans le cas où l'échantillon est totalement éclairé par le faisceau incident, la résolution est donnée par la largeur de la fente 1 et la largeur de l'échantillon vue par le faisceau de neutrons.

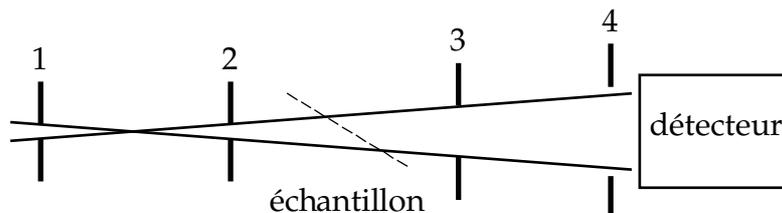


Figure 3 : Les deux fentes amont (1) et (2) servent à collimer le faisceau. Les fentes (3) et (4) servent à réduire le bruit de fond.

La résolution de travail typique varie entre  $0.02$  et  $0.03^\circ$ . Cette résolution influe sur les variations abruptes des courbes de réflectivité en les arrondissant plus ou moins. La Figure 4 montre cet effet sur la fin du plateau de réflectivité totale d'un échantillon de MgO (substrat monocristallin). Ces résolutions sont suffisantes pour travailler avec des échantillons d'une épaisseur maximale de l'ordre 80 nm. Au delà de cette épaisseur trop d'informations sont perdues dans les effets de résolution. Au contraire dans le cas d'échantillons très fins (quelques nanomètres), on peut diminuer la résolution afin de gagner en flux de neutrons incidents.

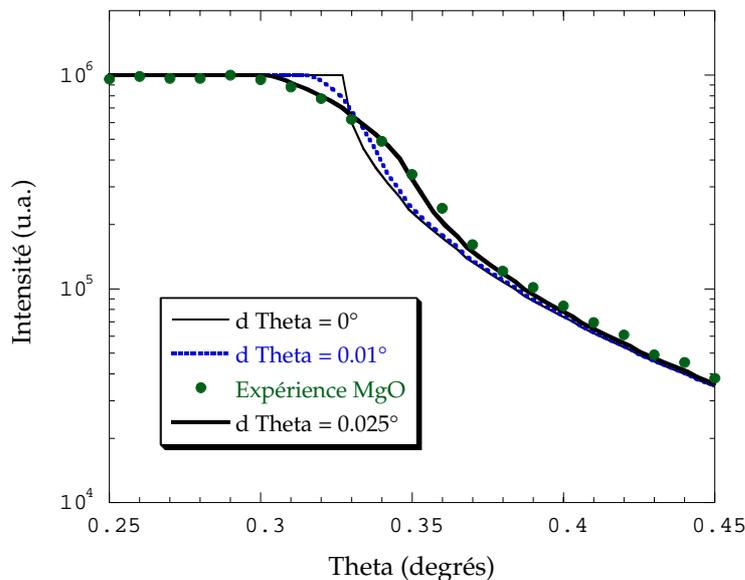


Figure 4 : effet de la résolution sur la "rondeur" de la fin du plateau de réflectivité totale. Les points sont une courbe expérimentale mesurée sur un substrat de MgO. Les courbes pleines sont des simulations pour différentes résolutions. La résolution du spectromètre PADA est de  $0.025^\circ$ .

b) Polarisation du faisceau de neutrons.

La polarisation du faisceau de neutrons est assurée par des supermiroirs polarisants. Il s'agit de multicouches FeCoV/TiN déposées de telle sorte que ce miroir présente un plateau de réflectivité totale étendu pour un des états de spin et soit transparent pour l'autre état de spin. Actuellement nous utilisons des miroirs  $3\theta_c$  ayant des rapports de flipping d'environ 30. Afin d'augmenter le taux de polarisation nous avons monté un système de double réflexion (cf. Figure 5). La transmission de ce système est d'environ 75%.

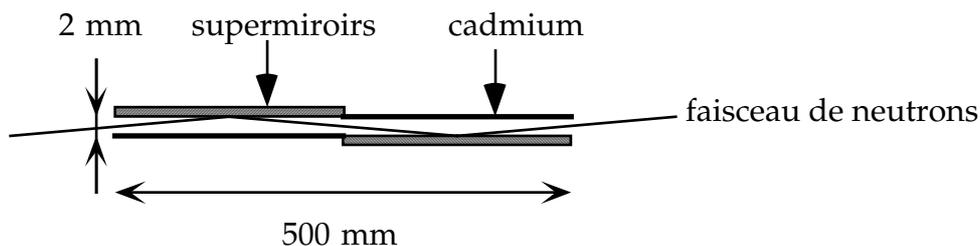


Figure 5 : système de polarisation utilisant une double réflexion sur des supermiroirs polarisants.

La Figure 6 montre une mesure sur un supermiroir polarisant  $2\theta_c$  fabriqué au Paul Scherrer Institut (PSI) (Böni, 1997). La réflectivité du miroir est très différente pour les états de spin " up " et les états de spin " down ". Le plateau de réflectivité totale pour les spins " up " est étendu jusqu'à  $1^\circ$  ce qui correspond à 2,5 fois l'angle critique d'un miroir de nickel (d'où l'appellation supermiroir  $2\theta_c$ ) (Ballot, 1995). Les spins " down " sont très peu réfléchis. La figure de droite montre le rapport de flipping correspondant. Pour ce miroir, pour des incidences entre  $0.5$  et  $1^\circ$ , les rapports de flipping sont très bons ( $>50$ ).

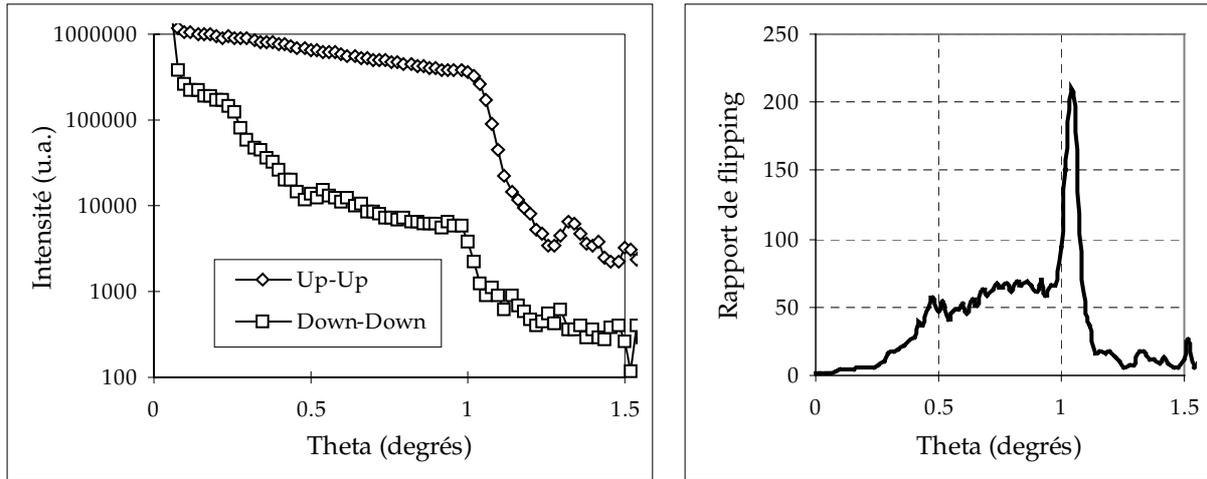


Figure 6 : réflectivité d'un supermiroir polarisant "  $2\theta_c$  " et rapports de flipping correspondants.

### c) Sélection de la polarisation.

Les systèmes de sélection de la polarisation des neutrons (up ou down par rapport au champ extérieur appliqué) utilisent des flippers de type " Mezei " (Mezei, 1972). Il s'agit de deux bobines plates disposées à  $90^\circ$  l'une de l'autre. Considérons un champ extérieur appliqué vertical. Une première bobine est alignée suivant ce champ extérieur. La deuxième bobine est disposée de telle façon à créer un champ horizontal.

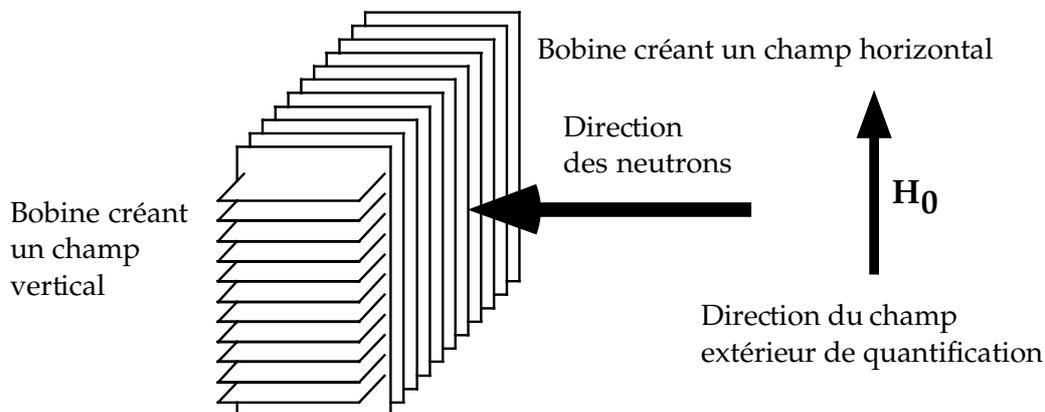


Figure 7 : configuration d'un flipper dit de "Mezei" : deux bobines croisées créent des champs dans les directions perpendiculaires à la direction de propagation des neutrons.

Le courant dans la première bobine est ajusté de telle sorte que le champ magnétique vertical soit nul dans le système. Le champ horizontal est ajusté de telle sorte que lors de sa traversée dans le système, le neutron effectue une précession de Larmor lui faisant subir une rotation de  $180^\circ$  autour du champ magnétique dans le flipper. Lorsqu'il sort du système, le neutron est polarisé "down" par rapport au champ extérieur appliqué. Dans le cas d'un neutron, la fréquence de précession de Larmor est donnée par :

$$\omega = \gamma H \quad (\text{I.107})$$

L'angle de précession  $\alpha$  est donné par :

$$\alpha = \frac{\gamma m}{h} H l \lambda \quad (\text{I.109})$$

où  $l$  est l' "épaisseur" du dispositif,  $\lambda$  la longueur d'onde du neutron,  $H$  le champ magnétique extérieur appliqué. On notera que ce système très simple ne peut fonctionner qu'avec un faisceau monochromatique, l'angle de précession étant lié au temps que passe le neutron dans le dispositif et donc à sa longueur d'onde. Ce système très simple est très efficace.

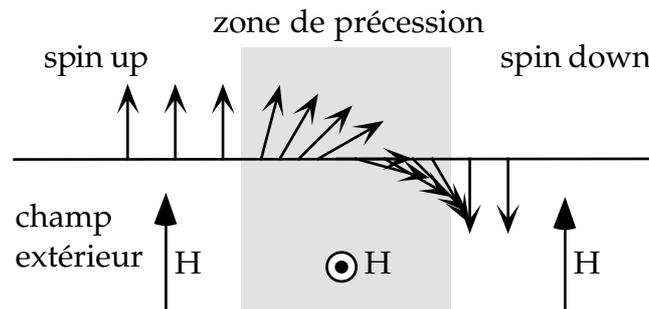


Figure 8 : principe du flipping des neutrons par précession autour d'un champ horizontal.

## 2. Utilisation pratique du spectromètre PADA.

En général, on peut considérer que les réglages du monochromateur ainsi que du polariseur et de l'analyseur sont fixes et ne doivent être modifiés que dans des conditions exceptionnelles. Les opérations de réglage pour la mesure d'un échantillon sont les suivantes :

- Déterminer le zéro de l'axe  $2\theta$  qui va fixer la position absolue à partir de laquelle toutes les mesures seront effectuées. Pour cela il suffit de déterminer la position  $2\theta$  qui maximise le flux du faisceau direct.
- S'assurer que sur toute la longueur du trajet polariseur-analyseur il existe un champ guide suffisant (5 G est un minimum). Cela est nécessaire pour conserver une bonne polarisation des neutrons. Les problèmes de champ guide se posent en général dans l'environnement de l'échantillon (champs de fuites importants,

rotation du champ trop rapide). Dans tous les cas il faut éviter l'existence de zéros de champs qui dépolariseraient le faisceau. Au contraire il est tout à fait possible de faire subir au faisceau de neutrons des rotations du champ guide (vertical -> horizontal par exemple) à condition que les gradients de champ ne soient pas trop importants afin que la rotation soit adiabatique.

- *Réglage des flippers.* Ceux-ci peuvent en effet ne plus être réglés de façon optimale si les champs extérieurs ont été modifiés. On allume un des flippers. Le réglage est optimal si le flux mesuré en faisceau direct est minimal car cela signifie qu'à la sortie du flipper on a maximisé le nombre de neutrons "down". Si l'on part d'une situation très éloignée du réglage parfait, la première chose à faire est de régler le courant dans la bobine vertical de telle sorte que le flux détecté soit égal à la moitié du flux nominal. A cette position on a annulé le champ à l'intérieur du flipper et le faisceau de neutrons est totalement dépolarisé (la moitié des neutrons peut donc passer par l'analyseur). Une fois le champ vertical annulé, il faut régler le courant dans la bobine horizontale afin de faire effectuer aux neutrons une précession de  $(2n+1)\pi$ . Il faut ensuite effectuer un réglage similaire pour le deuxième flipper.
- Pour la mise en place de l'échantillon, il est toujours commode d'utiliser un support absorbant (type cadmium). Dans le cas d'un substrat assez absorbant (de type verre) cela n'est pas nécessaire. C'est indispensable dans le cas d'un substrat de silicium.
- *Alignement de l'échantillon.* Placer l'échantillon dans le faisceau direct et régler la translation de l'échantillon de telle sorte que le faisceau direct soit atténué. Une première méthode assez grossière pour effectuer le réglage en  $\theta$  de l'échantillon est de faire un scan en  $\theta$  et de déterminer la position pour laquelle on maximise le flux. Si on a pris le soin de prendre un support absorbant, on obtient la position en  $\theta$  avec une précision d'environ  $0.2^\circ$  en général. Il faut ensuite régler très précisément la position en  $\theta$ . On place le détecteur dans une position proche de la limite du plateau de réflectivité, mais il ne faut surtout pas choisir une position hors du plateau de réflectivité totale, car cela conduirait à des erreurs sur le réglage de  $\theta$ . Les valeurs typiques à  $0.4 \text{ nm}$  sont de  $0.4^\circ$  à  $0.6^\circ$ . On effectue ensuite une "rocking curve" (scan en  $\theta$ ) afin de maximiser le signal. La position en  $\theta$  est définie par le maximum d'intensité de la rocking curve.

On peut ensuite itérer le processus en effectuant successivement des réglages en  $\theta$ , translation et en bascule.

En fonction de l'épaisseur de la couche, il faut choisir le pas de la résolution angulaire. La limite de résolution de l'appareil étant de  $0.02^\circ$ , l'épaisseur maximale que l'on peut observer est d'environ  $100 \text{ nm}$ . Cela correspond à des pas de  $10$  millidegrés en  $\theta$ .

Dans le cas d'échantillons de grande surface, il faut s'assurer que la largeur du faisceau est suffisante pour éclairer tout l'échantillon. Si l'on ne souhaite pas une grande résolution ou si on est limité par le flux, il est possible de modifier la divergence du faisceau incident en changeant les fentes de collimation.

### 3. Traitement des erreurs expérimentales.

L'acquisition des données brutes nécessite un traitement afin de corriger les différentes erreurs de mesure liées à des problèmes expérimentaux.

#### a) Correction liée à l'éclairement de l'échantillon.

Contrairement à la réflectivité de rayons X, la largeur du faisceau de neutrons est en général plus grande que la largeur effective de l'échantillon vue par le faisceau de neutrons. Pour des angles suffisamment petits, la surface utile du faisceau de neutrons est proportionnelle à l'angle d'incidence  $\theta$ . Les flux de neutrons mesurés doivent donc être corrigés par ce facteur géométrique  $1/\sin(\theta)$  (ou simplement  $1/\theta$  pour les petits angles). La largeur typique du faisceau étant de 1 à 2 mm, l'angle maximal pour lequel l'échantillon est totalement éclairé par le faisceau de neutrons est de  $3^\circ$  à  $6^\circ$  pour un échantillon de 20 mm. Cela est en général suffisant pour les mesures classiques de réflectivité. Toutefois dans le cas de grands échantillons ou de mesures à angle d'incidence très élevé, cette correction géométrique disparaît à partir d'un certain angle d'incidence.

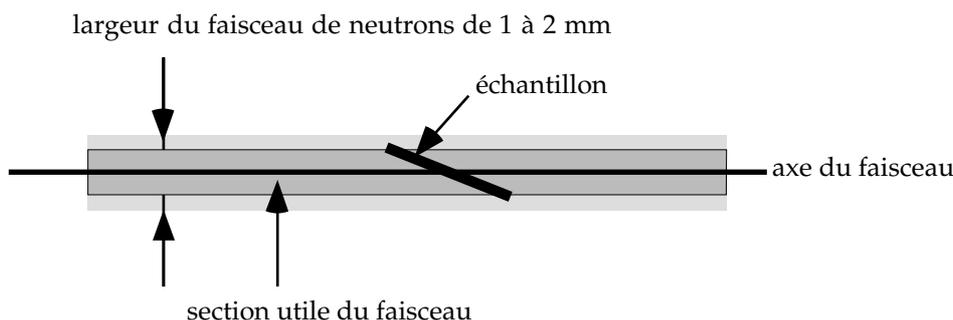


Figure 9 : corrections liées à l'éclairement de l'échantillon. Contrairement à la réflectivité X, la largeur du faisceau de neutrons est plus grande que l'échantillon, le flux augmente proportionnellement à l'angle d'incidence.

#### b) Corrections liées aux imperfections des systèmes de polarisation et de flipping : correction matricielle.

Les systèmes de polarisation des neutrons et de sélection du spin présentent des imperfections : la polarisation n'est pas de 100%, l'efficacité des flippers n'est pas totale. On va présenter un formalisme matriciel que nous avons développé pour corriger les effets de ces imperfections de polarisation sur les mesures expérimentales.

Soient  $\epsilon_p$ ,  $\epsilon_f$ ,  $\epsilon_g$  et  $\epsilon_a$  les dépolarisations dues respectivement au polariseur, au premier flipper, au deuxième flipper et à l'analyseur.

Les matrices de transfert du polariseur et de l'analyseur se mettent sous la forme :

$$P = \begin{pmatrix} 1 - \varepsilon_p & 0 \\ 0 & \varepsilon_p \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad A = \begin{pmatrix} 1 - \varepsilon_a & 0 \\ 0 & \varepsilon_a \end{pmatrix}, \quad (\text{I.111})$$

Les matrices de transfert des flippers font intervenir des termes croisés. Elles sont de la forme :

$$F = \begin{pmatrix} \varepsilon_f & 1 - \varepsilon_f \\ 1 - \varepsilon_f & \varepsilon_f \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad G = \begin{pmatrix} \varepsilon_g & 1 - \varepsilon_g \\ 1 - \varepsilon_g & \varepsilon_g \end{pmatrix} \quad (\text{I.113})$$

Nous écrivons la matrice de transfert de l'échantillon :

$$R = \begin{pmatrix} R_{++} & R_{-+} \\ R_{+-} & R_{--} \end{pmatrix} \quad (\text{I.115})$$

Le système de polarisation peut présenter quatre configurations différentes en fonction de l'état des flippers. Expérimentalement on peut donc mesurer quatre courbes de réflectivité différentes. Dans le cas où les deux flippers sont éteints, on mesure une intensité  $I_{++}$  de neutrons incidents  $|+\rangle$  et réfléchis  $|+\rangle$ . Lorsque les deux flippers sont en fonctionnement on mesure une intensité  $I_{--}$  de neutrons incidents  $|-\rangle$  et réfléchis  $|-\rangle$ . Lorsqu'un seul des flippers est en fonctionnement, on mesure les courbes de spin flip  $I_{+-}$  et  $I_{-+}$  de neutrons incidents  $|+\rangle$  (resp.  $|-\rangle$ ) et réfléchis  $|-\rangle$  (resp.  $|+\rangle$ ). On obtient donc quatre matrices de transfert du spectromètre correspondant aux quatre configurations des flippers :

$$\mathbf{T}_{OFF/OFF} = \mathbf{A.R.P} = \begin{pmatrix} (1 - \varepsilon_a - \varepsilon_p)R_{++} & \varepsilon_p R_{-+} \\ \varepsilon_a R_{+-} & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{I.117})$$

$$\mathbf{T}_{ON/OFF} = \mathbf{A.R.F.P} = \begin{pmatrix} \varepsilon_f R_{++} + (1 - \varepsilon_f - \varepsilon_a - \varepsilon_p)R_{-+} & \varepsilon_p R_{++} \\ \varepsilon_a R_{--} & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{I.119})$$

$$\mathbf{T}_{OFF/ON} = \mathbf{A.G.R.P} = \begin{pmatrix} \varepsilon_g R_{++} + (1 - \varepsilon_g - \varepsilon_a - \varepsilon_p)R_{+-} & \varepsilon_p R_{--} \\ \varepsilon_a R_{++} & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{I.121})$$

$$\mathbf{T}_{ON/ON} = \mathbf{A.G.R.F.P} = \begin{pmatrix} \varepsilon_g R_{-+} + \varepsilon_f R_{+-} + (1 - \varepsilon_f - \varepsilon_a - \varepsilon_p)R_{--} & \varepsilon_p R_{+-} \\ \varepsilon_a R_{-+} & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{I.123})$$

Dans chacune des configurations, l'intensité mesurée expérimentalement est donnée par la somme des éléments de la matrice de transfert  $\mathbf{T}$ . Cela permet de relier les intensités mesurées expérimentalement  $I$  aux coefficients de réflectivité physiques  $R$  de l'échantillon :

$$\begin{pmatrix} I_{++} \\ I_{+-} \\ I_{-+} \\ I_{--} \end{pmatrix} = \mathbf{M} \begin{pmatrix} R_{++} \\ R_{+-} \\ R_{-+} \\ R_{--} \end{pmatrix}, \quad (\text{I.125})$$

avec la matrice  $\mathbf{M}$  définie par :

$$\mathbf{M} = \begin{pmatrix} (1 - \varepsilon_a - \varepsilon_p) & \varepsilon_a & \varepsilon_p & 0 \\ \varepsilon_p + \varepsilon_f & 0 & (1 - \varepsilon_f - \varepsilon_p - \varepsilon_a) & \varepsilon_a \\ \varepsilon_a + \varepsilon_g & (1 - \varepsilon_g - \varepsilon_a - \varepsilon_p) & 0 & \varepsilon_p \\ 0 & \varepsilon_p + \varepsilon_f & \varepsilon_a + \varepsilon_g & (1 - \varepsilon_a - \varepsilon_p - \varepsilon_f - \varepsilon_g) \end{pmatrix} \quad (\text{I.127})$$

En pratique on cherche à déduire le vecteur  $\mathbf{R}$  à partir des données expérimentales  $\mathbf{I}$ . Il faut donc inverser la matrice  $\mathbf{M}$ . Le calcul est assez direct si on se restreint au premier ordre en  $\varepsilon$ . On obtient la matrice de correction des défauts de polarisation définie par :

$$\begin{pmatrix} R_{++} \\ R_{+-} \\ R_{-+} \\ R_{--} \end{pmatrix} = \mathbf{C} \begin{pmatrix} I_{++} \\ I_{+-} \\ I_{-+} \\ I_{--} \end{pmatrix} \quad (\text{I.129})$$

avec

$$\mathbf{C} = \begin{pmatrix} (1 + \varepsilon_a + \varepsilon_p) & -(\varepsilon_a + \varepsilon_g) & -(\varepsilon_p + \varepsilon_f) & 0 \\ -\varepsilon_p & 0 & (1 + \varepsilon_f + \varepsilon_p + \varepsilon_a) & -(\varepsilon_a + \varepsilon_g) \\ -\varepsilon_a & (1 + \varepsilon_g + \varepsilon_a + \varepsilon_p) & 0 & -(\varepsilon_p + \varepsilon_f) \\ 0 & -\varepsilon_p & -\varepsilon_a & (1 - \varepsilon_a - \varepsilon_p - \varepsilon_f - \varepsilon_g) \end{pmatrix} \quad (\text{I.131})$$

La connaissance e la matrice de correction  $\mathbf{C}$  exige la détermination des efficacités  $\varepsilon_p$ ,  $\varepsilon_f$ ,  $\varepsilon_g$  et  $\varepsilon_a$ .

Une première étape est d'effectuer une mesure dans le faisceau direct (sans échantillon). Dans ce cas (que l'on indicera  $SE$  dans la suite) les coefficients  $R$  prennent les valeurs :

$$\begin{aligned} R_{++}^{SE} &= 1, \\ R_{+-}^{SE} &= 0, \\ R_{-+}^{SE} &= 0, \\ R_{--}^{SE} &= 1, \end{aligned} \quad (\text{I.133})$$

Ces valeurs supposent que le champ guide est suffisamment important sur tout le parcours du faisceau de neutrons pour qu'il n'y ait pas de dépolarisation du faisceau sur le trajet polariseur-analyseur. L'équation (I.125) fournit un système de quatre équations reliant les intensités mesurées  $I^{SE}$  et les coefficients  $\varepsilon$  :

$$\begin{cases} 1 - \varepsilon_a - \varepsilon_p = I_{++}^{SE} & (a) \\ \varepsilon_a + \varepsilon_p + \varepsilon_f = I_{+-}^{SE} & (b) \\ \varepsilon_a + \varepsilon_p + \varepsilon_g = I_{-+}^{SE} & (c) \\ 1 - \varepsilon_a - \varepsilon_p - \varepsilon_f - \varepsilon_g = I_{--}^{SE} & (d) \end{cases} \quad (\text{I.135})$$

Cependant ce système ne permet pas de déterminer les quatre coefficients  $\varepsilon$  indépendamment. Le premier problème (fondamental) est que le système est

singulier. Le deuxième problème est qu'en pratique les intensités  $I$  ne sont connues que de manière relative; seuls les rapports d'intensités ont un sens physique. On peut obtenir un deuxième jeu d'équations en utilisant un échantillon de référence. Un échantillon de type supermiroir polarisant permet de simplifier les équations. De plus ces échantillons sont en général disponibles sur de grandes surfaces et permettent des mesures précises et rapides. La matrice de transfert de ce supermiroir est du type :

$$\begin{aligned} R_{++}^{AE} &= 1 - \varepsilon, \\ R_{+-}^{AE} &= 0, \\ R_{-+}^{AE} &= 0, \\ R_{--}^{AE} &= \varepsilon, \end{aligned} \quad (\text{I.137})$$

où  $AE$  signifie (Avec Echantillon) et  $\varepsilon$  est l'efficacité de polarisation du supermiroir. L'équation (I.125) fournit un deuxième système de quatre équations reliant les intensités mesurées  $I^{AE}$  et les coefficients  $\varepsilon$  (on se limite aux termes du premier ordre en  $\varepsilon$ ) :

$$\begin{cases} 1 - \varepsilon - \varepsilon_a - \varepsilon_p = I_{++}^{AE} & (a) \\ \varepsilon_p + \varepsilon_f = I_{+-}^{AE} & (b) \\ \varepsilon_a + \varepsilon_g = I_{-+}^{AE} & (c) \\ \varepsilon = I_{--}^{AE} & (d) \end{cases} \quad (\text{I.139})$$

Au premier ordre en  $\varepsilon$ , le rapport des équations (I.139)d et (I.139)a donne :

$$\frac{\varepsilon}{1 - \varepsilon - \varepsilon_a - \varepsilon_p} \approx \varepsilon \approx \frac{I_{--}^{AE}}{I_{++}^{AE}} \quad (\text{I.141})$$

L'erreur faite dans cette approximation peut être majorée à 10% pour les efficacités  $\varepsilon$  actuelles des supermiroirs polarisants ( $\varepsilon < 1/30$ ). Si l'on souhaite des déterminations plus précises il suffira d'itérer la procédure décrite ci-dessous. Cependant il faut remarquer que ces corrections seraient du deuxième ordre sur les coefficients  $R$  qui nous intéressent.

Les rapports des équations (I.139)b sur (I.139)a et (I.139)c sur (I.139)a donnent les deux relations approchées suivantes :

$$\varepsilon_p + \varepsilon_f \approx \frac{I_{+-}^{AE}}{I_{++}^{AE}} \quad (\text{I.143})$$

$$\varepsilon_a + \varepsilon_g \approx \frac{I_{-+}^{AE}}{I_{++}^{AE}} \quad (\text{I.145})$$

On peut ensuite utiliser les rapports des équations (I.135)b sur (I.135)a et (I.135)c sur (I.135)a et substituer les sommes  $\varepsilon_p + \varepsilon_f$  et  $\varepsilon_a + \varepsilon_g$  par leurs expressions (I.143) et (I.145). Cela permet d'obtenir les efficacités  $\varepsilon_a$  et  $\varepsilon_b$  individuellement :

$$\varepsilon_a \approx \frac{I_{+-}^{SE}}{I_{++}^{SE}} - (\varepsilon_p + \varepsilon_f) \approx \frac{I_{+-}^{SE}}{I_{++}^{SE}} - \frac{I_{+-}^{AE}}{I_{++}^{AE}} \quad (\text{I.147})$$

$$\varepsilon_p \approx \frac{I_{+-}^{SE}}{I_{++}^{SE}} - (\varepsilon_a + \varepsilon_g) \approx \frac{I_{-+}^{SE}}{I_{++}^{SE}} - \frac{I_{-+}^{AE}}{I_{++}^{AE}} \quad (\text{I.149})$$

On obtient de manière similaire les efficacités  $\varepsilon_f$  et  $\varepsilon_g$  en utilisant à nouveau les rapports des équations (I.135)b sur (I.135)a et (I.135)c sur (I.135)a mais en y substituant cette fois les valeurs connues  $\varepsilon_a$  et  $\varepsilon_p$  :

$$\varepsilon_f \approx \frac{I_{+-}^{SE}}{I_{++}^{SE}} - (\varepsilon_a + \varepsilon_p) \quad (\text{I.151})$$

$$\varepsilon_g \approx \frac{I_{-+}^{SE}}{I_{++}^{SE}} - (\varepsilon_a + \varepsilon_p) \quad (\text{I.153})$$

On a ainsi déterminé les quatre efficacités  $\varepsilon_p$ ,  $\varepsilon_f$ ,  $\varepsilon_g$  et  $\varepsilon_a$ . Dans la pratique on pourra supposer que les coefficients  $\varepsilon_p$  et  $\varepsilon_a$  sont constants sauf modification majeure du dispositif expérimental. Au contraire, les efficacités des flippers dépendent des champs magnétiques appliqués lors d'une expérience et il faut les évaluer avant chaque mesure. Le formalisme a été développé de telle sorte que ces corrections soient simples. Si on suppose que  $\varepsilon_p$  et  $\varepsilon_a$  sont connus, on obtient directement les valeurs de  $\varepsilon_f$  et  $\varepsilon_g$  simplement à partir de la mesure des trois intensités  $I_{++}^{SE}$ ,  $I_{-+}^{SE}$  et  $I_{+-}^{SE}$  en faisceau direct (Sans Echantillon) en utilisant les équations (I.151) et (I.153). Les courbes de réflectivité sont ensuite corrigées en utilisant la relation (I.129).

### *Situation expérimentale actuelle du spectromètre PADA.*

Dans la configuration actuelle du spectromètre PADA du LLB, les mesures d'intensité avec échantillon de référence et sans échantillon donnent les résultats présentés dans le Tableau 1. Les intensités sont normalisées à 1 pour le faisceau " up-up "

	up-up	down-down	up-down	down-up
Avec Echantillon	1	0.08025	0.01543	0.02046
Sans Echantillon	1	0.96090	0.01985	0.02583

Tableau 1 : intensités du faisceau de neutrons pour les différentes combinaisons de polarisation (avec un échantillon de référence et en faisceau direct). Les intensités sont normalisées par rapport à l'intensité du signal up-up.

Les équations (I.147) à (I.153) permettent de calculer les efficacités  $\varepsilon_p$ ,  $\varepsilon_f$ ,  $\varepsilon_g$  et  $\varepsilon_a$  et les rapports de flipping correspondants (définis comme les inverses des efficacités). Les valeurs numériques sont résumées dans le Tableau 2.

	Rapports de flipping	Efficacités
Analyseur	226	99.6 %
Polariseur	186	99.5 %
Flipper 1	99	99.0 %
Flipper 2	63	98.4 %

*Tableau 2 : rapports de flipping et efficacités des différents composants du spectromètre PADA.*

On remarque que les dispositifs de polarisation et d'analyse utilisant le système à double réflexion est très efficace. La limitation essentielle de la polarisation sur le spectromètre PADA est donnée par l'efficacité des flippers. Il faut cependant bien noter qu'il peut apparaître des effets de dépolarisation supplémentaires sur le trajet du faisceau de neutrons non liés aux éléments d'optique.

*N.B. : un traitement alternatif des problèmes de polarisation peut être trouvé dans (Majkrzak, 1996).*

## **E. Nouvelle technique de mesure de cycles d'hystérésis par réflectivité de neutrons polarisés.**

Nous avons validé la possibilité de faire des mesures de cycles d'hystérésis de couches minces magnétiques par réflectométrie de neutrons polarisés. Cette technique peut être complémentaire des techniques classiques de mesure de l'aimantation de couches minces VSM, SQUID, AGFM, MOKE.

Un des axes de recherche en magnétométrie est la mesure de cycles d'hystérésis sélectifs (soit chimiquement, soit en profondeur, soit en moment orbital ou de spin). Il a récemment été démontré qu'il est possible de faire des mesures sélectives en profondeur l'aimantation de couches ultraminces de cobalt dans des sandwichs Co/Au/Co par effet Kerr (Pénissard, 1995). Des études récentes ont aussi montré la possibilité de faire des mesures de cycles d'hystérésis sélectifs en espèce chimique en utilisant le dichroïsme circulaire magnétique en rayons X (XDCM). Nous allons essayer de montrer quel est le potentiel de la réflectivité de neutrons polarisés.

### **1. Intérêt de faire des mesures des cycles d'hystérésis par réflectivité de neutrons.**

La réflectivité de neutrons est une technique très sensible. Il a été montré qu'il est possible de faire des mesures sur des couches magnétiques de seulement quelques nanomètres d'épaisseur (Mc Grath, 1994) avec une sensibilité de 5 à 10%, ce qui correspond à une sensibilité comparable au SQUID ou aux méthodes magnéto-optiques.

Les avantages potentiels de la magnétométrie par neutrons polarisés sont les suivants :

- Insensibilité au diamagnétisme du substrat : cela peut être extrêmement important ou même décisif dans les études du magnétisme de surface où les contributions du substrat peuvent complètement masquer les très petites contributions de surface (e.g. cas de couches minces d'oxydes de manganèse). On retrouve cet avantage dans les mesures magnéto-optiques.
- Mesure des moments de manière absolue : dans son principe, la PNR mesure le moment magnétique en  $\mu_B$  par atome.
- Mesure de l'aimantation de couches enfouies : les neutrons peuvent pénétrer dans des couches épaisses (>100 nm).
- **Sensibilité en profondeur** : cela est intéressant pour des systèmes de plusieurs couches magnétiques ou pour des études de magnétisme aux interfaces.

Par ailleurs, la mesure d'un jeu complet de courbes de réflectivité de neutrons polarisés ( $R^{++}, R^{-}$  et éventuellement  $R^{+-}$ ) nécessite actuellement environ 12 heures de mesure. Cela limite en général le nombre de paramètres extérieurs que l'on peut faire varier (par exemple le champ magnétique ou la température). L'idée développée dans les paragraphes suivants est de mesurer une courbe de " calibration " dans un état magnétique connu (l'état saturé en général) afin de déterminer les propriétés du

système : épaisseur et composition chimique des différentes couches, valeurs des moments magnétiques dans les différentes couches dans l'état saturé. Bien sûr, des mesures complémentaires par des techniques différentes peuvent aussi aider à caractériser le système (réflectivité X, mesures magnétiques "bulk" type Squid). Dans une deuxième étape, au lieu de remesurer des jeux complets de courbes de réflectivité pour les différentes conditions extérieures de champ magnétique (et/ou de température) on peut se limiter à la mesure du signal de neutrons pour quelques points de la courbe de réflectivité. A partir d'un modèle fiable déterminé à partir des mesures de calibration on peut alors remonter à l'aimantation du système simplement à partir de ces quelques points, par ajustement numérique (si on suppose que seulement l'aimantation du système dépend des conditions extérieures). Le gain en temps de mesure est considérable.

## 2. Exemples de calculs théoriques.

L'aimantation du système n'est a priori pas reliée de manière simple au signal de neutrons. Dans une première approche on peut dire que l'aimantation est reliée à la différence entre les courbes "up-up" et "down-down". Cependant, la relation n'est pas directe. Dans le cas où le magnétisme est une perturbation par rapport au signal nucléaire, on obtient une relation presque linéaire entre la différence des signaux "up-up" et "down-down" et l'aimantation. Il faut cependant noter que cette linéarité n'est bien vérifiée qu'entre la fin du plateau de réflectivité totale et la première frange de Kiessig. L'aimantation peut être considérée comme une perturbation soit dans le cas où l'on a affaire à une couche magnétique noyée dans des couches non magnétiques soit dans le cas où le signal magnétique est faible par rapport au signal nucléaire (cas du nickel par exemple où  $b_{\text{mag}} = 0.1 b_{\text{nucl}}$ ). La Figure 10 illustre le cas d'un sandwich Au(5nm)/Co(5nm)/Au(5nm) où le signal magnétique peut être considéré comme une perturbation. On obtient alors bien une relation linéaire entre la différence (up/up)-(down/down) et le magnétisme (Figure 11). Au contraire, dans le cas de couches plus épaisses (Au(5nm)/Co(30nm)/Au(5nm)) (Figure 12), la contribution du signal magnétique n'est pas perturbative et donc les variations du signal de réflectivité ne varie pas linéairement avec l'aimantation : la valeur du moment magnétique n'est pas reliée de manière simple au signal magnétique. La relation varie beaucoup avec l'angle d'incidence et peut même être non monotone (voir Figure 13).

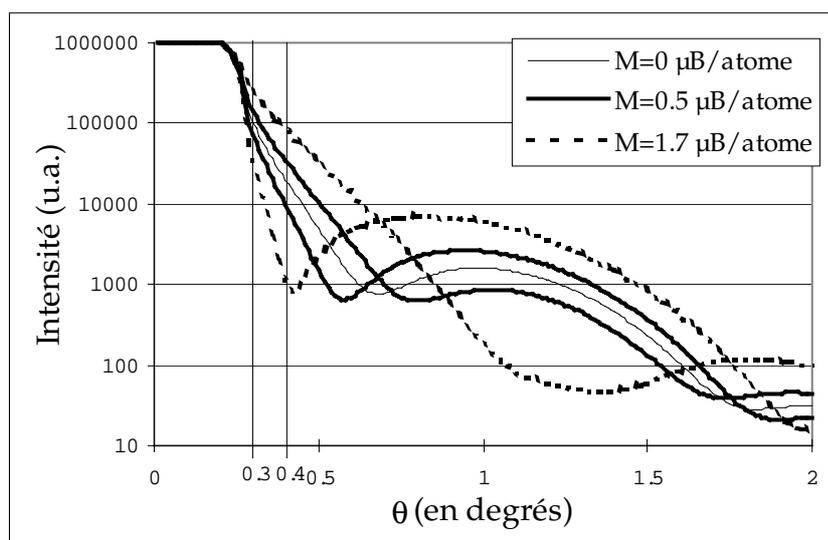


Figure 10 : réflectivité d'une tricouche Au(5nm)/Co(5nm)/Au(5nm) déposée sur verre. En trait fin, cas d'une aimantation nulle. Les signaux " up-up " et " down-down " se superposent. Lorsque l'aimantation augmente, une séparation des signaux (up-up) et (down-down) apparaît (trait gras,  $M = 0.5 \mu\text{B}/\text{atome}$ ); trait pointillé,  $M = M_{\text{sat}} = 1.7 \mu\text{B}/\text{atome}$ ).

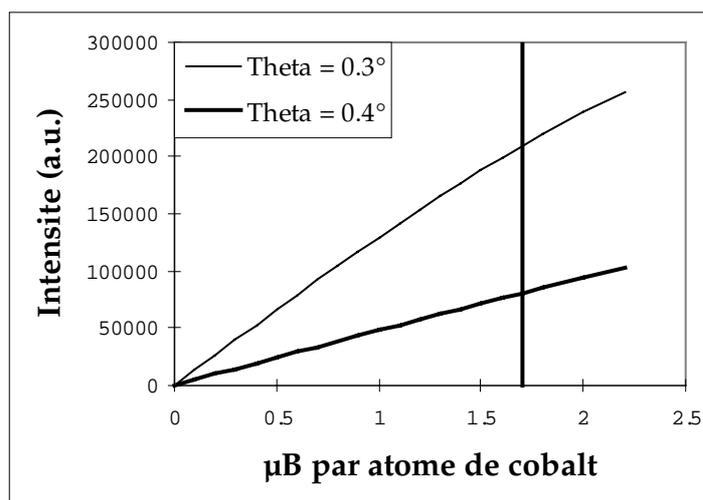


Figure 11 : différence d'intensité entre les courbes (up/up) et (down/down) en fonction de l'aimantation de la couche de cobalt pour deux angles d'incidence différents. On obtient une relation linéaire entre intensité réfléchie et aimantation.

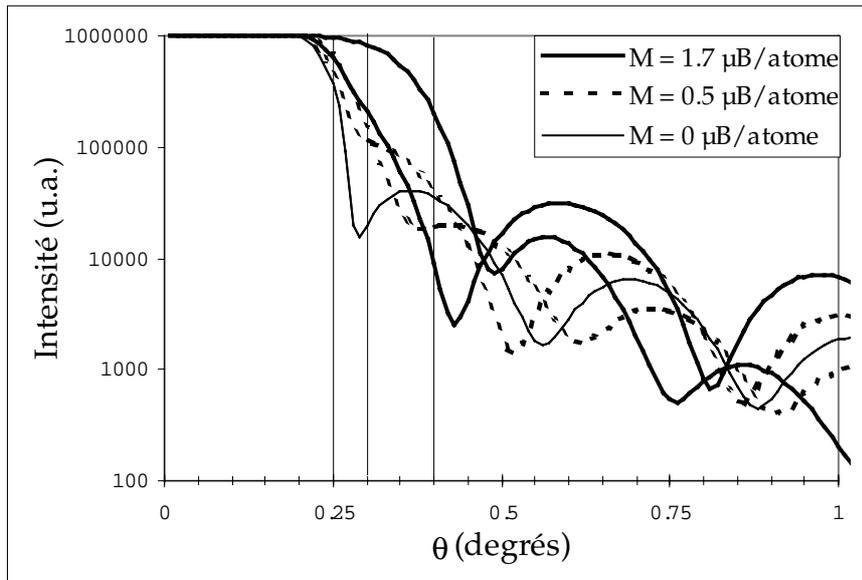


Figure 12 : réflectivité d'une tricouche Au(5nm)/Co(30nm)/Au(5nm) déposée sur verre. Les trois couples de courbes (up-up et down-down) correspondent à trois aimantations différentes de la couche de cobalt. (trait fin)  $M = 0$ , les courbes up-up et down-down sont superposées. (traits pointillés)  $M = 0.5 \mu\text{B}/\text{atome}$ , up-up et down-down se séparent (trait gras)  $M = 1.7 \mu\text{B}/\text{atome}$ , up-up et down-down sont très séparées.

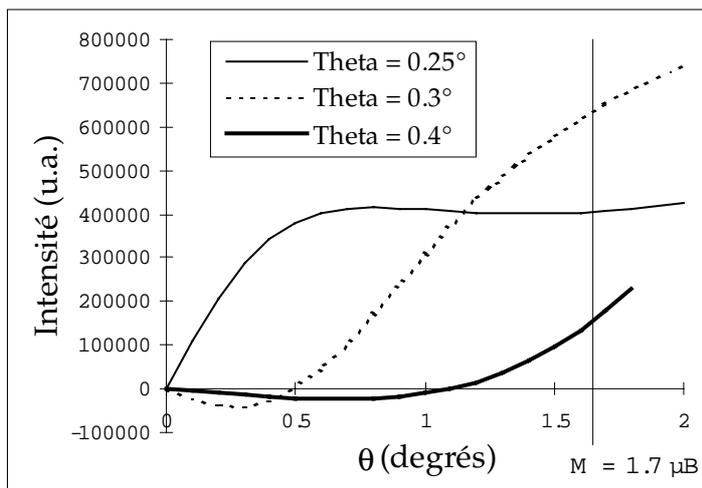


Figure 13 : différence d'intensité entre les courbes up/up et down/down en fonction de l'aimantation de la couche de cobalt pour trois angles d'incidence différents. La relation entre aimantation et intensité n'est pas linéaire. Elle peut même être non monotone.

### 3. Exemples d'un système de couches magnétiques simples.

Expérimentalement, le balayage du champ magnétique pose différents problèmes. Le premier est que les variations de champ magnétique, si elles sont importantes peuvent modifier les réglages des flippers de polarisation si ceux-ci ne sont pas correctement blindés (par une protection de  $\mu$ -métal par exemple). Le deuxième problème est que le faisceau de neutrons est totalement dépolarisé par le passage dans une zone de champ nul ou très faible. Ainsi, si le champ guide est vertical, la configuration la plus adéquate consiste à appliquer le champ suivant la direction

longitudinale. En effet dans cette géométrie il est possible d'appliquer un champ magnétique positif ou négatif sans créer de "zéros" de champ. Si le champ était appliqué verticalement suivant le champ guide, il y aurait systématiquement apparition d'un zéro de champ pour des champs appliqués négatifs par rapport au champ guide (Figure 14).

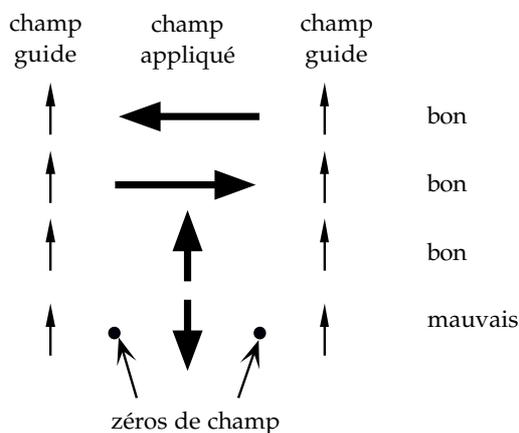


Figure 14 : illustration des différentes configurations de champ magnétique appliqué sur l'échantillon par rapport au champ guide. Un champ appliqué antiparallèle au champ guide fait apparaître des zéros de champ qui dépolarisent le faisceau. Un champ appliqué trop faible ( $<3G$ ) dépolarise aussi le faisceau.

Par ailleurs, les restrictions habituelles demeurent :

- La rotation du champ ne doit pas être trop rapide afin que les neutrons puissent la suivre de manière adiabatique.
- On ne peut pas effectuer de mesures sous des champs inférieurs à 3 G en pratique car le faisceau de neutrons se dépolarise (à moins de disposer d'un écrantage parfait des champs parasites par un écran supraconducteur, comme sur le Cryopad de l'ILL par exemple).

Une autre contrainte est qu'en raison des flux limités de neutrons, les mesures doivent être effectuées pour des angles d'incidences assez faibles car les intensités réfléchies décroissent très vite et les temps de mesure deviennent très rapidement prohibitifs ( $>5$  min par point) au delà de  $0.5^\circ$ .

Nous avons réalisé des mesures de cycles d'hystérésis sur deux systèmes de couches minces. Le premier est une tricouche Au(5nm)/Co(5nm)/Au(5nm). On constate que les cycles d'hystérésis mesurés pour des angles d'incidence très différents ( $0.3^\circ$  et  $0.45^\circ$ ), les courbes d'hystérésis se superposent parfaitement (Figure 16). De plus la mesure est en très bon accord avec une mesure utilisant une technique magnéto-optique. Dans le cas d'un échantillon où la couche de cobalt est plus épaisse Au(5nm)/Co(30nm)/Au(5nm), il y a un désaccord assez important entre des courbes mesurées sous un angle d'incidence de  $0.3^\circ$  et  $0.4^\circ$  (Figure 18). Par ailleurs on peut remarquer que la variation d'intensité n'est pas absolument monotone en fonction de l'aimantation comme cela avait été prévu par le calcul dans la paragraphe précédent E.2. (zone entre 0.4 et 1 mT sur la Figure 18)

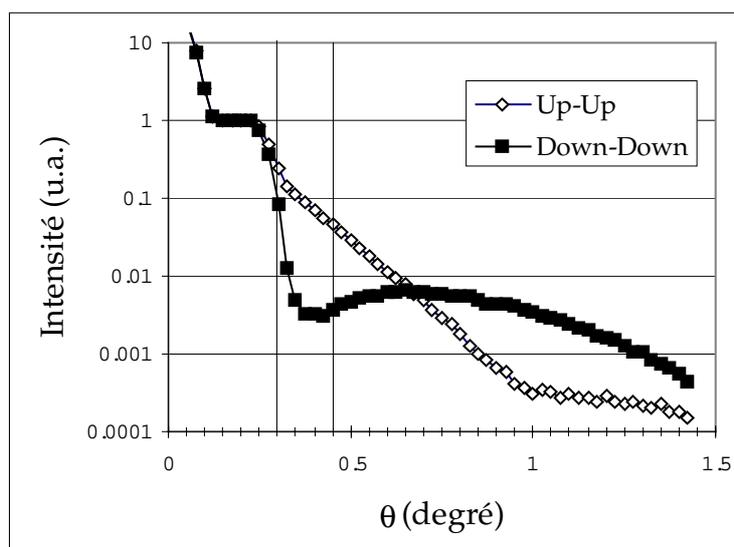


Figure 15 : réflectivité d'une tricouche Au(5nm)/Co(5nm)/Au(5nm). Les angles d'incidence pour lesquels des cycles d'hystérésis ont été mesurés sont indiqués par les marques verticales ( $\theta_{mc} = 0.3^\circ$  et  $0.45^\circ$ ).

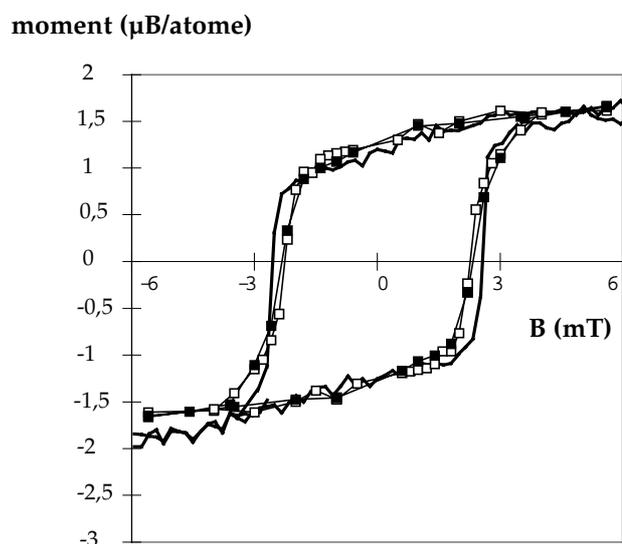


Figure 16 : cycles d'hystérésis mesurés pour différents angles d'incidence  $\theta$  (carrés noirs pour  $0.3^\circ$  et carrés blancs pour  $0.45^\circ$ ) sur une tricouche Au(5nm)/Co(5nm)/Au(5nm). Sur la figure une mesure magnéto-optique a été superposée en trait gras aux mesures de neutrons (l'amplitude de la mesure magnéto-optique a été renormalisée).

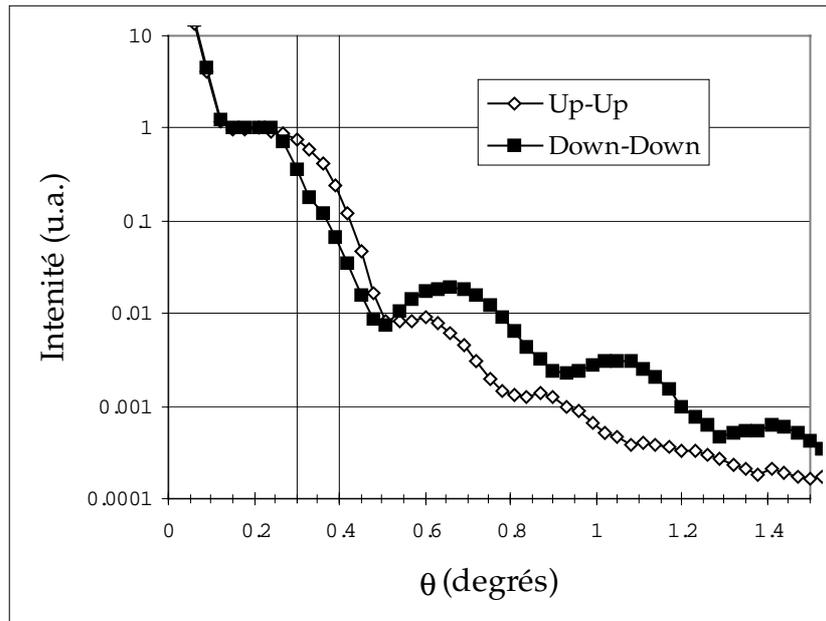


Figure 17 : réflectivité d'une tricouche Au(5nm)/Co(30nm)/Au(5nm). Les angles d'incidence pour lesquels des cycles d'hystérésis ont été mesurés sont indiqués par les marques verticales.

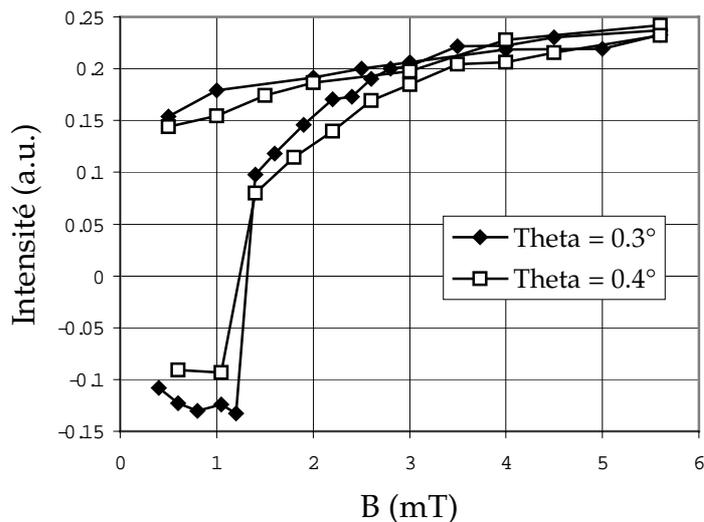


Figure 18 : exemples de cycles d'hystérésis mesurés pour différents angles d'incidence  $\theta$  ( $0.3^\circ$  et  $0.45^\circ$ ) sur une tricouche Au(5nm)/Co(30nm)/Au(5nm). Les intensités sont normalisées pour que les courbes se superposent. L'accord entre les deux mesures n'est pas très bon, comme cela est attendu d'après les simulations des Figure 12 et Figure 13.

#### 4. Exemple d'un système de bicouches magnétiques.

La Figure 19 montre une courbe de réflectivité X mesurée sur un échantillon de type Pt/Co/Pt/Co/Pt déposée sur un substrat de silicium oxydé fourni par C. Chappert de l'Institut d'Electronique Fondamentale (IEF) Orsay. L'ajustement numérique de la courbe de réflectivité X donne la structure [substrat/Pt(98Å)/Co(7.6Å)/Pt(33Å)/Co(3.8Å)/Pt(32Å)] avec une rugosité de 0.4

nm. La couche de 0.38 nm est composée d'un alliage composé de 80% de Co et de 20% de Pt. La Figure 20 montre les courbes de réflectivité de neutrons (sous un champ planaire saturant de 1 T). Celle-ci ne permet pas de déterminer la structure chimique avec autant de précision que la réflectivité X mais elle contient une information magnétique. Les moments obtenus par ajustement numérique dans le cas saturé sont de  $1.57 \mu_B$  par atome pour la couche de 0.76 nm et de  $1.3 \mu_B$  par atome pour la couche de 0.38 nm. Les paramètres structuraux utilisés pour ce fit sont ceux déterminés par réflectivité X.

Les intensités de neutrons réfléchies ont ensuite été mesurées en fonction du champ magnétique appliqué pour trois angles d'incidence différents  $0.3^\circ$ ,  $0.6^\circ$  et  $0.9^\circ$ . La Figure 21 montre la variation du rapport  $R^{++}/R^{-}$  des réflectivités (up-up) et (down-down) en fonction du champ magnétique appliqué pour les trois angles d'incidences utilisés. On peut constater que la variation de ce rapport dépend considérablement de l'angle d'incidence lors de la mesure. Pour chaque valeur de champ magnétique, les valeurs des moments pour chacune des deux couches magnétiques ont été ajustées (pour les trois angles d'incidence) en utilisant les caractéristiques structurales obtenues par rayons X et les mesures sous champ saturant. Les seuls paramètres laissés libres sont les valeurs des moments dans les deux couches magnétiques. Ces ajustements permettent de tracer la variation individuelle de l'aimantation de chacune des couches magnétiques (voir Figure 22).

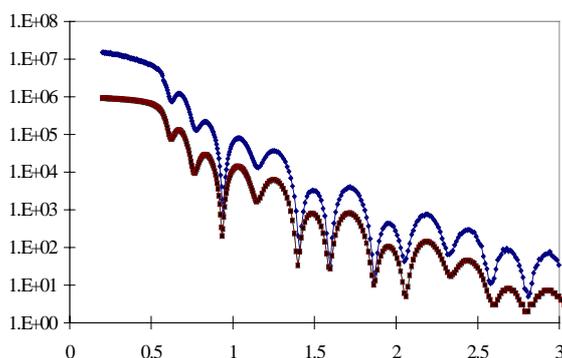


Figure 19 : réflectivité X sur un système [substrat/Pt(98Å)/Co(7.6Å)/Pt(33Å)/Co(3.8Å)/Pt(32Å)] (courbe du haut, mesure expérimentale ; courbe du bas, ajustement numérique, réalisé par C. Fermon)

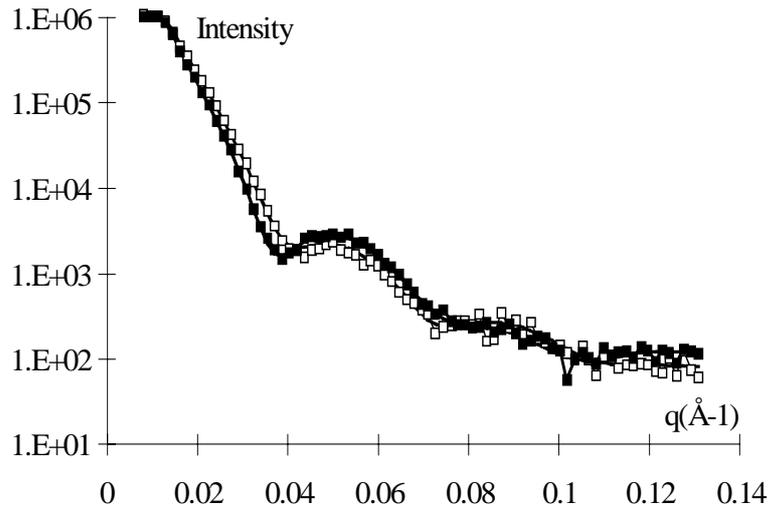


Figure 20 : réflectivité de neutrons sur un échantillon [substrat/Pt(98Å)/Co(7.6Å)/Pt(33Å)/Co(3.8Å)/Pt(32Å)] ( $R^+$  carrés blancs,  $R^-$  carrés noirs). Les ajustements sont en lignes continues.

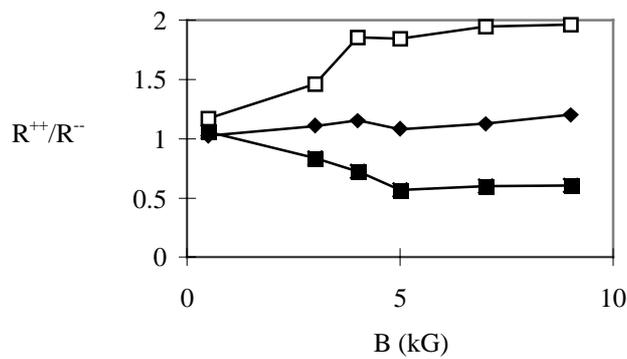


Figure 21 : rapports des intensités réfléchies  $R^+/R^-$  en fonction du champ magnétique appliqué pour trois angles d'incidence différents ( $\theta_{inc} = 0.3^\circ$ (carrés blancs),  $0.6^\circ$ (losanges noirs) and  $0.9^\circ$ (carrés noirs) ).

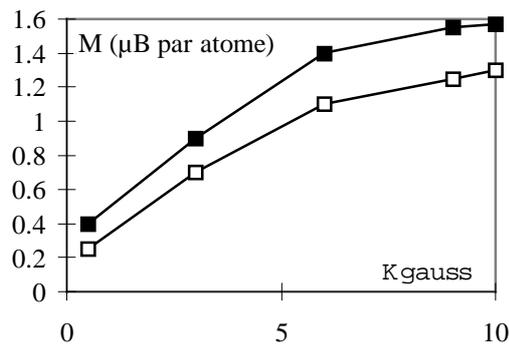


Figure 22 : moments en  $\mu_B$  par atome des deux couches de Co d'un système [substrat/Pt(98Å)/Co(7.6Å)/Pt(33Å)/Co(3.8Å)/Pt(32Å)] déduits par ajustement numérique à partir des mesures de la Figure 21. Les carrés noirs correspondent à la couche de 7.6 Å, les carrés blancs correspondent à la couche de 3.8 Å.

A l'aide de points mesurés pour quelques angles d'incidence, il a été possible de remonter à l'aimantation individuelle de chaque couche magnétique.

Nous constatons que la couche de 0.76 nm de Co atteint presque la saturation du matériau bulk ( $1.7 \mu_B/\text{atome}$ ). La couche de 0.38 nm de Co atteint 75% de la valeur de saturation théorique. Cela est remarquable compte tenu du fait que cette couche semble être un alliage (80% Co/ 20% Pt).

## **5. Conclusion et perspective.**

La réflectivité de neutrons polarisés permet de mesurer des cycles d'hystérésis résolus en profondeur. Sur un système de bicouches magnétiques il a été possible de mesurer l'aimantation individuelle de chaque couche en fonction du champ magnétique appliqué. Ces mesures montrent que la PNR permet d'obtenir des informations que peu, voire aucune autre technique ne permet d'obtenir. De plus nous avons montré qu'il est possible de s'affranchir de mesures de jeux complets de courbes de réflectivité pour chaque condition de champ appliqué. Les aimantations peuvent être déduites grâce à quelques points de la courbe de réflectivité seulement (à partir d'un modèle fiable déterminé à l'aide d'une courbe de " calibration " mesurée à la saturation magnétique).

L'étape suivante est de faire des mesures vectorielles complètes (détermination du module ET de la direction de l'aimantation). Cela ne pose pas de problème de principe. Cependant comme il faut mesurer les signaux de spin-flip cela demande des temps de mesure beaucoup plus longs. Les signaux de spin-flip sont en général entre un et plusieurs ordres de grandeurs inférieurs aux signaux de non spin-flip. De telles mesures ont été très récemment effectuées par J.A.C. Bland et C. Fermon sur des systèmes NiFe/Cu/Co.

## F. Effet de l'énergie Zeeman dans les mesures de réflectivité de neutrons polarisés.

Nous allons discuter l'effet de l'énergie Zeeman sur les mesures de réflectivité en neutrons polarisés. En effet bien que les énergies mises en jeu soient très faibles, l'énergie Zeeman peut induire des modifications importantes sur les mesures de réflectivité et doit être prise en compte dans le cas de champs magnétiques appliqués forts.

### 1. Séparation spatiale.

Le premier effet induit par l'énergie Zeeman est la séparation spatiale des faisceaux de neutrons de non spin-flip et ceux subissant un spin-flip (Felcher, 1995, 1996)

En effet, considérons un échantillon placé dans un champ magnétique  $\mathbf{H}$ . Si lors de sa réflexion sur l'échantillon un neutron subit un spin-flip, la conservation de l'énergie dans un cas élastique permet d'écrire :

$$\frac{\hbar^2 k_i^2}{2m} + \mu_n H = \frac{\hbar^2 k_r^2}{2m} - \mu_n H \quad (\text{I.155})$$

où  $k_i$  et  $k_r$  sont les vecteurs d'onde incident et réfléchi du neutron considéré. Le neutron subit un changement d'énergie  $2\mu_n H$  qui modifie son vecteur d'onde. Comme la composante planaire du vecteur d'onde est continue, toute l'énergie est transférée sur la composante perpendiculaire  $k_z$ .

On peut calculer la relation entre l'angle d'incidence et l'angle de réflexion induit par ce changement de  $k_z$  :

$$\theta_r = \theta_i \pm 1.47 \times 10^{-7} H \lambda^2 \quad (\text{I.157})$$

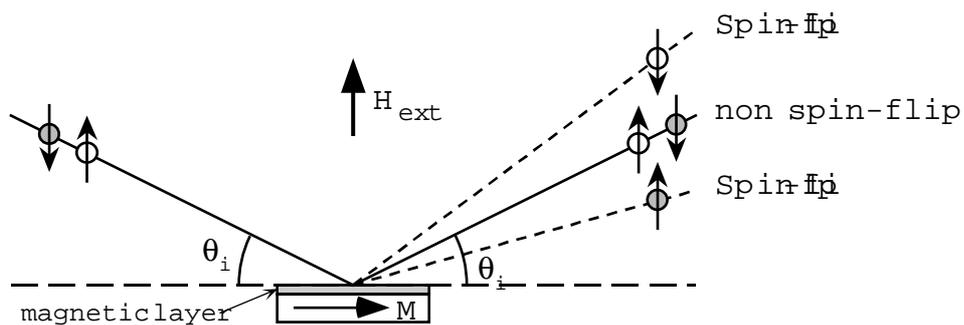


Figure 23 : séparation spatiale des faisceaux de non spin-flip et de spin-flip induite par le changement d'énergie Zeeman lors d'un spin-flip.

Pour des champs de l'ordre de 0.5 T, les effets sont très faibles pour  $\lambda = 0.4$  nm (voir Tableau 3) mais les effets augmentent très vite avec la longueur d'onde. La déflexion des pics de spin flip atteint  $0.1^\circ$  pour  $\lambda = 2$  nm.

$\lambda_i$ (nm )	$\theta_r$ (degrés)
0.4	0.504
1	0.524
1.5	0.552
2	0.589

Tableau 3 : angle de réflexion des faisceaux de spin-flip pour un angle d'incidence de  $0.5^\circ$  sous un champ de 0.5T.

## 2. Asymétrie des signaux de spin-flip non symétriques dans les mesures de réflectivité.

Une autre conséquence de ces effets d'énergie Zeeman est l'obtention de signaux de spin-flip asymétriques dans des mesures de réflectivité (Ott, 1997). Cela découle naturellement du formalisme développé ci-avant dans le paragraphe B.2.

### Mesures sur des couches magnétiques de terres rares.

Dans le cas de films minces d'alliages de terres rares et de métaux de transition, une très forte anisotropie peut apparaître. Les multicouches Tb/Fe sont un très bon exemple. Dans ce cas, même sous un très fort champ magnétique les moments ne sont pas colinéaires au champ appliqué et un signal de spin-flip apparaît. L'effet décrit précédemment avait été observé mais sans être compris théoriquement (Tappert, 1995)

Afin de mesurer et démontrer l'effet, nous avons réalisé des mesures sur un film mince de  $\text{SmCo}_4$  qui lui aussi possède une très forte anisotropie (cf Figure 24). Dans ce cas on peut appliquer des champs importants ( $\sim 0.4$  T) sans aligner les moments de la couche le long de la direction du champ extérieur. Le film a été déposé au Laboratoire Louis Néel à Grenoble par pulvérisation cathodique radio-fréquence (Wüchner, 1996)

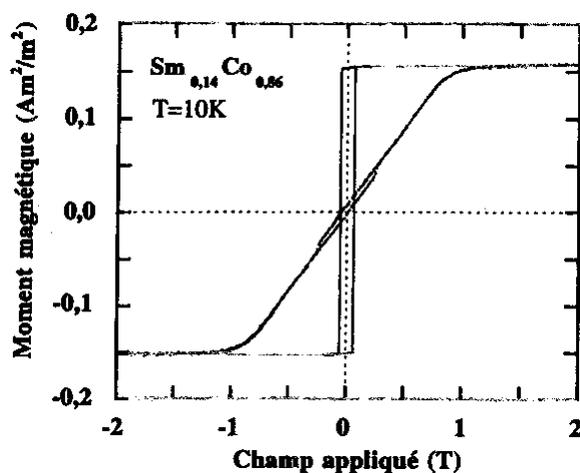


Figure 24 : cycles d'hystérésis d'une couche de  $\text{Sm}_{0.14}\text{Co}_{0.86}$  de 100 nm d'épaisseur. Il existe un axe d'anisotropie très important dans la couche (Wüchner, 1996).

Les mesures de réflectivité de neutrons ont été réalisées sur le spectromètre PADA. La Figure 25 montre les courbes de réflectivité mesurées sous un champ magnétique de 0.3 T. Les simulations numériques utilisent la méthode matricielle 8x8 décrite au paragraphe B.2. en considérant la forme (I.86) pour la fonction d'onde. Les corrections de polarisation utilisent la méthode matricielle décrite au paragraphe C.3. reliant les quatre coefficients de réflectivité  $R^{++}$ ,  $R^{-}$ ,  $R^{+}$ ,  $R^{-}$  mesurés aux coefficients de réflectivité physiques en considérant les facteurs de dépolérisation du polariseur, de l'analyseur et des deux systèmes de flipping.

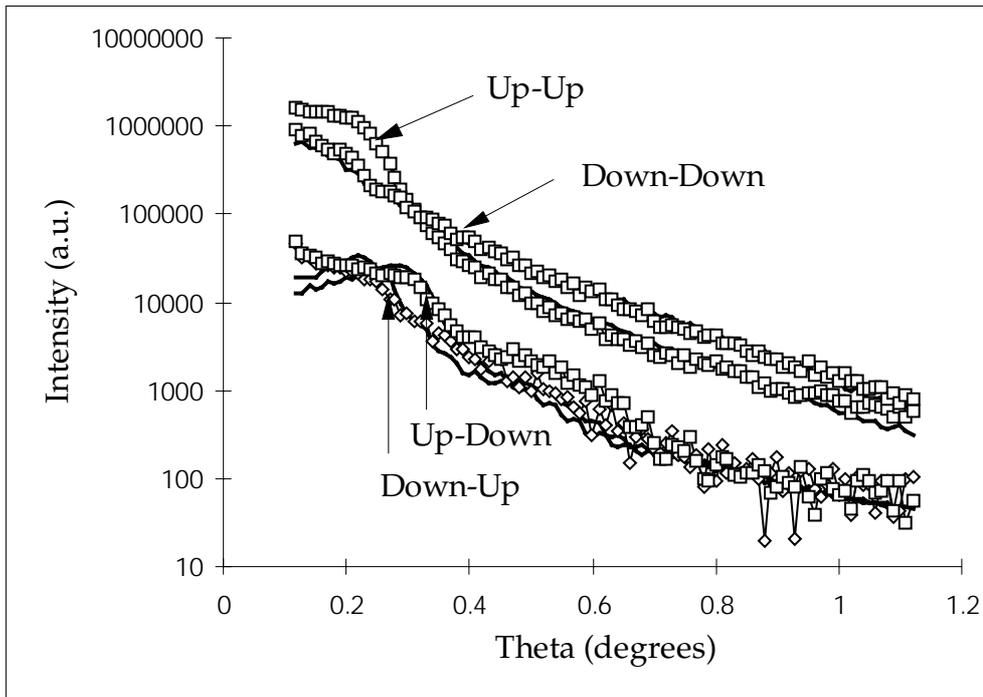


Figure 25 : réflectivité d'une couche de 100 nm de  $Sm_{0.14}Co_{0.86}$  sous un champ de 0.3 T non colinéaire avec l'aimantation de la couche. On observe des signaux de spin-flip up-down et down-up très différents.

Les courbes de spin-flip sont assez différentes, en particulier autour de  $\theta_{inc} = 0.3^\circ$  où une séparation importante apparaît. Les simulations numériques reproduisent bien cette séparation. Cependant la présence de Sm (terre rare très absorbante) rend l'ajustement numérique plus difficile et certaines caractéristiques des courbes n'ont pas pu être reproduites numériquement. Nous avons tout de même montré qu'il est possible de décrire quantitativement les effets d'asymétrie du signal de spin-flip observé dans le cas de champs magnétiques extérieurs appliqués forts.

### 3. Effet des gradients de champ

Il a été observé récemment que des faibles gradients de champ (50 G/m) peuvent induire des effets mesurables sur des courbes de réflectivité de neutrons. L'effet est illustré sur la Figure 26. Par rapport à la trajectoire parfaite (trait plein de Figure 26) la présence d'un gradient de champ au niveau de l'échantillon a pour effet de modifier la trajectoire et l'angle d'incidence des neutrons sur l'échantillon. L'effet sur

l'angle d'incidence est opposé pour les neutrons " up " et pour les neutrons " down " (traits pointillés). On trouvera une discussion plus détaillée dans (Felcher, 1997).

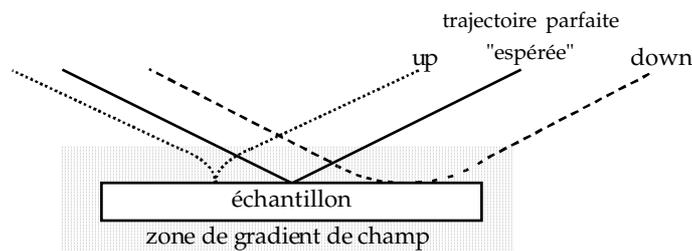


Figure 26 : effet des gradients de champ sur l'incidence des neutrons lors de leur passage dans une zone de gradient de champ (zone grisée) les neutrons up et down subissent des déflexions opposées. Les directions de sortie restent cependant dans la direction spéculaire mais l'incidence effective sur l'échantillon est différente pour les neutrons up et down.

La conséquence du passage dans un gradient de champ est que l'incidence des neutrons " up " (resp. " down ") au niveau de la surface de la couche mince est décalée d'un angle  $\alpha$  (resp.  $-\alpha$ ). A la sortie de la zone de gradient de champ, les directions de réflexion redeviennent les mêmes pour les deux états de polarisation (parallèle à la direction spéculaire). Pour un angle d'incidence  $\theta$  donné, la mesure donne donc les réflectivités  $R^{++}(\theta + \alpha)$  et  $R^{-}(\theta - \alpha)$ . Les deux courbes " up-up " et " down-down " sont décalées l'une par rapport à l'autre d'un angle  $2\alpha$ .

## G. Problème de polarisation du faisceau de neutrons.

Nous avons observé un phénomène expérimental extrêmement gênant dans le cas de mesures de réflectivité en neutrons polarisés avec analyse de polarisation : au delà de certaines incidences, la polarisation du faisceau de neutrons semblait diminuer fortement en termes de rapports de flipping.

### 1. Quelques mesures expérimentales.

La Figure 27 montre une série de mesures sur différents types d'échantillons non magnétiques (substrat de silicium, couches minces d'or et de cuivre). Au delà du plateau de réflectivité totale, on observe un signal de spin flip très important (même après correction des rapports de flipping). Ce signal de spin-flip ne dépend pas de l'échantillon mesuré.

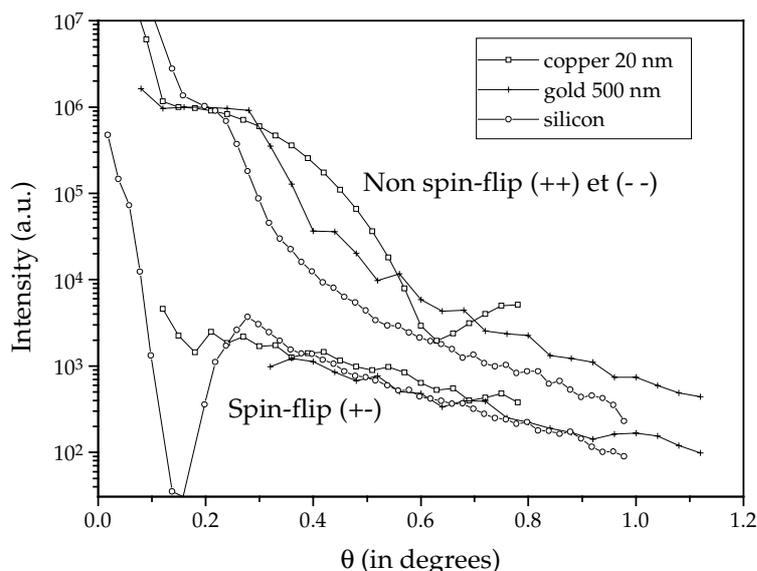


Figure 27 :réflectivité de films minces d'épaisseurs variables de différents matériaux non magnétiques On observe un grand signal de spin-flip mais bien que les courbes de non spin-flip soient très différentes, le signal de spin-flip n'est pas modifié.

## 2. Origine de l'effet et correction du problème.

Il s'avère que la diffraction sur le monochromateur de graphite engendre une traînée de diffusion inélastique relativement étendue. Celle-ci a pour conséquence de faire apparaître des neutrons de grande longueur d'onde qui dépolarisent le faisceau. En effet ces neutrons de grande longueur d'onde sont réfléchis sur le polariseur quelle que soit leur polarisation.

Le problème peut être corrigé de manière assez simple en utilisant une lame interceptant les neutrons de grandes longueurs d'onde par réflexion totale. Une lame de silicium recouverte de nickel est insérée sur le trajet du faisceau et orientée en faisant un angle légèrement supérieur à l'angle critique correspondant à des neutrons de 0.4 nm (longueur d'onde de travail du spectromètre). Les neutrons " parasites " de plus grandes longueurs d'onde sont totalement réfléchis par cette lame car leur angle d'incidence sur la lame de silicium est inférieur à l'angle critique correspondant à leur longueur d'onde.

## **H. Conclusion**

Dans ce chapitre nous avons présenté un formalisme permettant de décrire la réflectivité de neutrons polarisés sur un système magnétique. Nous avons insisté sur les effets d'énergie Zeeman et montré qu'ils peuvent avoir des effets importants sur les mesures de neutrons polarisés sous champ magnétique fort ( $\sim 0.5$  T), en particulier sur les mesures de signaux de spin-flip. Nous avons montré sur un système de terres rares que le formalisme développé permet de décrire ces effets d'énergie Zeeman.

Un formalisme permettant de traiter les erreurs expérimentales en PNR avec analyse de polarisation a été développé. Cela a permis de montrer que les nouveaux systèmes de polarisation à double réflexion sur des supermiroirs sont très efficaces (rapports de flipping = 300) et que les limitations actuelles des systèmes de polarisation sont liées aux flippers adiabatiques de type Mezei.

Nous avons par ailleurs montré les possibilités ouvertes par la réflectivité de neutrons polarisés en magnétométrie des couches minces. Nous avons proposé une nouvelle technique permettant de s'affranchir de mesurer totalement un nouveau jeu de courbes de réflectivité pour chaque configuration magnétique d'un système de multicouches. De plus nous avons montré que cette nouvelle technique permet de mesurer des cycles d'hystérésis sélectifs en profondeur.



## ***Chapitre 2***

# ***Détermination d'informations magnétiques vectorielles par technique magnéto-optique.***

**II. Détermination d'informations magnétiques vectorielles par technique magnéto-optique.**

---

	<b>87</b>
<b>A. Effets magnéto-optiques. Définitions et terminologie.</b>	<b>87</b>
<b>B. Réflectivité d'un système de multicouches non isotropes.</b>	<b>89</b>
1. Notations et formalisme.	89
2. Propagation d'une onde plane dans un milieu non isotrope.	90
3. Réflectivité optique d'un système de multicouches.	93
<b>C. Dispositif expérimental de mesures par effet Kerr.</b>	<b>95</b>
1. Description générale du montage.	95
2. Description du modulateur électro-optique.	96
<b>D. Détermination des composantes planaires de l'aimantation d'un film mince par technique magnéto-optique.</b>	<b>97</b>
1. Méthode utilisant une rotation du champ magnétique.	97
2. Détermination de la direction de l'aimantation sans rotation du champ magnétique extérieur.	99
3. Conclusion.	104
<b>E. Obtention d'informations magnétiques résolues en profondeur par technique magnéto-optique.</b>	<b>106</b>
1. Technique basée sur le principe de l'analyseur tournant.	106
2. Approche plus systématique.	108
<b>F. Parallèle entre les techniques magnéto-optiques et de réflectivité de neutrons.</b>	<b>112</b>
<b>G. Conclusion.</b>	<b>114</b>

## II. Détermination d'informations magnétiques vectorielles par technique magnéto-optique.

Dans ce chapitre, nous allons faire le parallèle entre la réflectivité de neutrons et la réflectivité optique. En particulier nous développerons un formalisme matriciel similaire à celui des neutrons et qui permet de calculer la réflectivité d'un système de couches magnétiques quelconque. Nous évaluerons les potentiels respectifs des deux techniques, réflectivité de neutrons polarisés et magnéto-optique.

Les principes de ces deux techniques sont très similaires. Mais les différences entre lumière visible et neutrons sont nombreuses. Les longueurs d'onde mises en jeu diffèrent par 4 ordres de grandeur. Les interactions lumière/aimantation sont  $10^4$  fois plus faibles que dans le cas des neutrons. Mais malgré la faible interaction de la lumière visible avec l'aimantation, la grande précision des mesures optiques permet de mesurer des effets magnétiques. Les techniques optiques permettant de mesurer l'aimantation de films minces magnétiques sont regroupées sous le terme d'ellipsométrie magnéto-optique (MO) Kerr ou Faraday.

Nous présenterons un ellipsomètre à effet Kerr construit pour effectuer des mesures de routine sur des systèmes de couches minces magnétiques.

Nous présenterons ensuite une technique permettant de déterminer le vecteur aimantation dans un film mince. Cette méthode sera comparée à la technique utilisant la PNR présentée dans le chapitre précédent.

Nous explorerons ensuite le potentiel des méthodes magnéto-optiques dans la *détermination de profils d'aimantation résolue en profondeur* dans des couches minces et nous proposerons des systèmes dans lesquels ce type de mesures pourrait être validé. Un certain nombre d'études sur ce problème ont été déjà conduites (Pénissard, 1995 ; Hubert, 1996). Ce type de mesure serait en effet une technique donnant le même type d'informations que la PNR mais aurait l'avantage d'être plus simple à mettre en œuvre expérimentalement.

### A. Effets magnéto-optiques. Définitions et terminologie.

Les effets magnéto-optiques résultent de l'interaction de la lumière avec un milieu aimanté ou placé dans un champ magnétique.

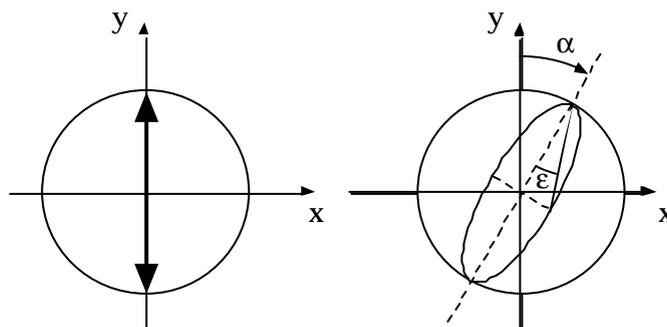


Figure 1 : après réflexion sur une surface magnétique, une lumière polarisée linéairement (à gauche) subit une rotation  $a$  de sa polarisation ainsi qu'une elliptisation  $e$ .

L'état de polarisation de l'onde lumineuse est alors modifié. Considérons une onde polarisée linéairement. Lors de l'interaction elle subit une rotation de son axe de polarisation et une modification de son ellipticité. Ceci est illustré sur la Figure 1.

Pour décrire cette modification de l'état de polarisation on introduit deux quantités :

- $\alpha$  l'angle de rotation de l'axe principal de l'ellipse de polarisation par rapport à la direction de polarisation,
- $\varepsilon$  l'ellipticité qui est définie comme le rapport du petit axe sur le grand de l'ellipse de polarisation. Pour de faibles valeurs, elle se confond avec l'angle sous lequel est vu le petit axe à partir du sommet de l'ellipse.

Pour décrire ces états de polarisation, on utilisera une notation compacte de la forme :

$$\mathbf{q} = \mathbf{a} + i\mathbf{e} \quad (\text{II.2})$$

On distingue les effets magnéto-optiques du premier ordre (effets Faraday ou Kerr, dichroïsme circulaire magnétique), proportionnels à des puissances impaires de l'aimantation ou du champ appliqué, des effets magnéto-optiques du second ordre (effet Voigt ou Cotton-Mouton, dichroïsme linéaire magnétique), proportionnels à des puissances paires de l'aimantation ou du champ magnétique appliqué.

L'effet Faraday est observé en transmission pour une orientation de l'aimantation parallèle à la direction de propagation de la lumière. Lorsque l'on s'intéresse aux propriétés d'une onde réfléchie, on parle d'effet Kerr. On distingue trois types d'effets Kerr (cf. Figure 2) :

- polaire en incidence normale, l'aimantation est orientée suivant la direction de propagation,
- longitudinale en incidence oblique, l'aimantation est orientée dans le plan de l'échantillon et dans le plan d'incidence de la lumière,
- transverse en incidence oblique, l'aimantation est orientée dans le plan de l'échantillon et orthogonalement au plan d'incidence de la lumière.

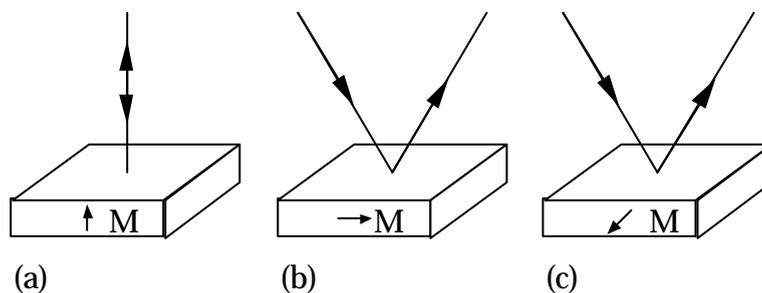


Figure 2 : configurations Kerr polaire (a), longitudinale (b), transverse (c).

Formellement, il est commode de décrire les effets magnéto-optiques en considérant l'influence du champ magnétique et de l'aimantation sur le tenseur de permittivité diélectrique du matériau. Dans le cas d'un axe ( $Oz$ ) dirigé suivant l'aimantation, le

problème est de géométrie cylindrique autour de (Oz). Le tenseur de permittivité est donc de la forme :

$$\tilde{\mathbf{e}} = \begin{pmatrix} \mathbf{e}_{xx} & \mathbf{e}_{xy} & 0 \\ -\mathbf{e}_{xy} & \mathbf{e}_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \mathbf{e}_{zz} \end{pmatrix} \quad (\text{II.4})$$

Quand l'aimantation s'annule, le tenseur redevient diagonal et égal à  $\mathbf{e}_{zz}$ .

On définit un *paramètre magnéto-optique*  $Q$  proportionnel à l'aimantation par :

$$\mathbf{e}_{xy} = -i \mathbf{e}_{xx} Q \quad (\text{II.6})$$

Ce paramètre magnéto-optique sans unité est en général petit ; on peut développer les composantes  $\mathbf{e}_{xx}$  et  $\mathbf{e}_{xy}$  en puissances de  $Q$ . Les relations d'Onsager ( $\mathbf{e}_{ij}(M) = \mathbf{e}_{ji}(-M)$ ) interdisent le terme d'ordre 1 dans le développement de  $\mathbf{e}_{xx}$ . Si on se limite à l'ordre 1, le tenseur de permittivité se met donc sous la forme :

$$\tilde{\mathbf{e}} = n^2 \begin{pmatrix} 1 & -iQ & 0 \\ iQ & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (\text{II.8})$$

où  $n$  est l'indice complexe du matériau.

## B. Réflectivité d'un système de multicouches non isotropes.

### 1. Notations et formalisme.

Nous allons décrire un formalisme introduit par (Mansuripur, 1990).

Soit  $\mathbf{u} = u_x \hat{\mathbf{x}} + u_y \hat{\mathbf{y}} + u_z \hat{\mathbf{z}}$  un vecteur unité à composantes réelles dans l'espace cartésien. On peut définir à partir de leurs composantes les vecteurs et matrices suivantes :

$$\tilde{\mathbf{u}} = (u_x, u_y, u_z), \quad (\text{II.10})$$

$$\tilde{\tilde{\mathbf{u}}} = \begin{bmatrix} 0 & -u_z & u_y \\ u_z & 0 & -u_x \\ -u_y & u_x & 0 \end{bmatrix} \quad (\text{II.12})$$

Le produit scalaire de deux vecteurs  $\mathbf{u} \cdot \mathbf{v}$  se met sous la forme  $\tilde{\mathbf{u}}\tilde{\mathbf{v}}^T$  ou  $\tilde{\mathbf{v}}\tilde{\mathbf{u}}^T$ .

Le produit vectoriel de deux vecteurs  $\mathbf{u} \times \mathbf{v}$  se met sous la forme  $\tilde{\tilde{\mathbf{u}}}\tilde{\mathbf{v}}^T$  ou  $\tilde{\mathbf{u}}\tilde{\tilde{\mathbf{v}}}$ .

Cette notation peut s'étendre aux vecteur complexes.

Soit

$$\mathbf{k} = K \mathbf{u} + K' \mathbf{u}', \quad (\text{II.14})$$

où  $\mathbf{u}$  et  $\mathbf{u}'$  sont des vecteurs unitaires. On peut écrire :

$$\tilde{k} = K \tilde{u} + K' \tilde{u}', \quad (\text{II.16})$$

$$\tilde{\tilde{k}} = K \tilde{\tilde{u}} + K' \tilde{\tilde{u}}'. \quad (\text{II.18})$$

Considérons une onde plane électromagnétique :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0 \exp[i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)]. \quad (\text{II.20})$$

Le champ magnétique  $\mathbf{H}_0$  étant proportionnel au produit vectoriel de  $\mathbf{k}$  et  $\mathbf{E}$  il peut se mettre sous la forme :

$$\tilde{H}_0^T \propto \tilde{k} \tilde{E}_0^T \quad (\text{II.22})$$

Cependant, on ne peut pas appliquer le concept d'orthogonalité à ces vecteurs complexes.

Les notations formelles sont les mêmes pour les vecteurs  $\mathbf{k}$  et  $\mathbf{E}$  mais leur interprétation physique est différente. Dans la forme  $\mathbf{k} = K \mathbf{u} + K' \mathbf{u}'$ , la direction du vecteur  $\mathbf{u}$  est la direction de la propagation de la phase, tandis que la direction  $\mathbf{u}'$  est la direction suivant laquelle l'amplitude de l'onde plane subit un amortissement exponentiel. Les plans perpendiculaires à  $\mathbf{u}$  sont donc les plans équiphasés et les plans perpendiculaires à  $\mathbf{u}'$  sont les plans équi-amplitude.

L'interprétation de la forme  $\mathbf{E}_0 = E_0 \mathbf{u} + E_0' \mathbf{u}'$  est différente. En chaque point de l'espace, le vecteur champ électrique vaut  $\mathbf{E}_0 \exp(i\omega t)$ . Que l'on considère la partie réelle ou la partie imaginaire de ce vecteur, ce vecteur parcourt une ellipse située dans le plan défini par les vecteurs  $\mathbf{u}$  et  $\mathbf{u}'$  : les vecteurs  $\mathbf{u}$  et  $\mathbf{u}'$  définissent donc le plan de polarisation du vecteur champ électrique.

Dans cette convention de notation, les opérateurs divergence ( $\nabla \cdot$ ) et rotationnel ( $\nabla \times$ ) s'écrivent sous la forme :

$$\text{div} = \left( \frac{\partial}{\partial x} \quad \frac{\partial}{\partial y} \quad \frac{\partial}{\partial z} \right) \quad (\text{II.24})$$

$$\text{rot} = \begin{pmatrix} 0 & -\frac{\partial}{\partial z} & \frac{\partial}{\partial y} \\ \frac{\partial}{\partial z} & 0 & -\frac{\partial}{\partial x} \\ -\frac{\partial}{\partial y} & \frac{\partial}{\partial x} & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{II.26})$$

## 2. Propagation d'une onde plane dans un milieu non isotrope.

Dans un milieu non chargé, polarisable, aimanté, conducteur et sans courant, les équations de Maxwell s'écrivent :

$$\begin{aligned}
 \operatorname{rot} \mathbf{H} &= \dot{\mathbf{D}} \\
 \operatorname{rot} \mathbf{E} &= -\dot{\mathbf{B}} \\
 \operatorname{div} \mathbf{H} &= 0 \\
 \operatorname{div} \mathbf{D} &= 0
 \end{aligned}
 \tag{II.28}$$

Dans la limite où la réponse du système est linéaire <sup>1</sup>:

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{e} \mathbf{E} \tag{II.30}$$

$$\mathbf{B} = m \mathbf{H} \tag{II.32}$$

La fréquence de l'onde lumineuse  $w$  dans le visible est de l'ordre de  $3.10^{15}$  Hz. Nous pouvons faire l'hypothèse que la susceptibilité magnétique  $m$  du système étudié reste égale à la perméabilité du vide  $m_0$  pour ces fréquences.

Nous considérons la propagation dans un milieu anisotrope. Nous ne faisons pas d'hypothèse sur le tenseur diélectrique.

Si on applique les notations présentées ci-dessus, les équations de Maxwell se mettent sous la forme :

$$\begin{aligned}
 \tilde{\nabla} \tilde{\mathbf{e}} \tilde{\mathbf{E}}^T &= 0, \\
 \tilde{\nabla} \tilde{\mathbf{H}}^T &= -i w \epsilon_0 \tilde{\mathbf{e}} \tilde{\mathbf{E}}^T, \\
 \tilde{\nabla} \tilde{\mathbf{E}}^T &= i w m_0 \tilde{\mathbf{H}}^T, \\
 \tilde{\nabla} \tilde{\mathbf{H}}^T &= 0
 \end{aligned}
 \tag{II.34}$$

On peut normaliser le champ électrique par l'impédance du vide :

$$Z_0 = \sqrt{m_0 / \epsilon_0} = 377 \Omega, \text{ avec } m_0 = 4\pi \times 10^{-7} \text{ H / m et } \epsilon_0 = 8.82 \times 10^{-12} \text{ F / m} \tag{II.36}$$

Le vecteur  $\mathbf{E}$  normalisé sera noté  $\hat{\mathbf{E}}$ .

Le vecteur d'onde dans le vide se met sous la forme :

$$k_0 = \frac{2\pi}{\lambda_0} = \sqrt{m_0 \epsilon_0} w. \tag{II.38}$$

Les équations de Maxwell peuvent alors se mettre sous la forme :

---

<sup>1</sup> Dans le cas de lasers usuels, la réponse du système est toujours linéaire. Mais depuis quelques années il devient possible de se placer dans un régime de réponse non linéaire et un certain nombre d'études de magnéto-optique sont en cours dans ce domaine.

$$\begin{aligned}
 \tilde{\nabla} \tilde{\mathbf{e}} \hat{E}^T &= 0, \\
 \tilde{\nabla} \tilde{H}^T &= -ik_0 \tilde{\mathbf{e}} \hat{E}^T, \\
 \tilde{\nabla} \hat{E}^T &= ik_0 \tilde{H}^T, \\
 \tilde{\nabla} \tilde{H}^T &= 0
 \end{aligned} \tag{II.40}$$

Nous considérons la propagation d'une onde plane lumineuse de la forme :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0 \exp[i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)], \tag{II.42}$$

$$\mathbf{H}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{H}_0 \exp[i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)]. \tag{II.44}$$

Le système d'équations à résoudre se met donc sous la forme :

$$\begin{aligned}
 \tilde{k} \tilde{\mathbf{e}} \hat{E}_0^T &= 0, & (a) \\
 \tilde{k} \tilde{H}_0^T &= -ik_0 \tilde{\mathbf{e}} \hat{E}_0^T, & (b) \\
 \tilde{k} \hat{E}_0^T &= k_0 \tilde{H}_0^T, & (c) \\
 \tilde{k} \tilde{H}_0^T &= 0 & (d)
 \end{aligned} \tag{II.46}$$

Quel que soit le vecteur complexe, on peut remarquer que  $\tilde{k} \tilde{k} = 0$ .

Les quatre équations (II.46) ne sont pas indépendantes. L'équation (a) peut être déduite de l'équation (b) par la multiplication membre à membre de l'équation (b) par  $\tilde{k}$ . De la même manière, l'équation (d) peut être déduite de (c) par la multiplication membre à membre par  $\tilde{k}$ . Considérons les équations (b) et (c).

La multiplication de (c) par  $\tilde{k}$  et la substitution du second membre par l'équation (b) donne les *équations de propagation* dans un milieu caractérisé par le tenseur de permittivité  $\tilde{\mathbf{e}}$  :

$$\boxed{
 \begin{aligned}
 \left[ \left( \frac{\tilde{k}}{k_0} \right)^2 + \tilde{\mathbf{e}} \right] \hat{E}_0^T &= 0, & (a) \\
 \tilde{H}_0^T &= \left( \frac{\tilde{k}}{k_0} \right) \hat{E}_0^T, & (b)
 \end{aligned}
 } \tag{II.48}$$

L'équation (a) ne possède des solutions non triviales que si le déterminant de l'opérateur est nul. On a donc la condition :

$$\left| \left( \frac{\tilde{k}}{k_0} \right)^2 + \tilde{\mathbf{e}} = 0 \right| \tag{II.50}$$

qui donne les modes de propagation  $\mathbf{k}$  dans le milieu caractérisé par  $\tilde{\mathbf{e}}$ . Dans le cas d'un milieu isotrope, on retrouve la condition habituelle :

$$k_x^2 + k_y^2 + k_z^2 = k^2 = k_0^2 \epsilon \tag{II.52}$$

### 3. Réflectivité optique d'un système de multicouches.

Considérons une onde plane incidente sur la surface d'un système de multicouches. La direction d'incidence est définie par les angles  $q$  et  $f$  (cf. Figure 3).

$$\mathbf{k}_i = k_0 \mathbf{u}_i = -k_0 (\sin q \cos j \hat{\mathbf{x}} + \sin q \sin j \hat{\mathbf{y}} + \cos q \hat{\mathbf{z}}) \quad (\text{II.54})$$

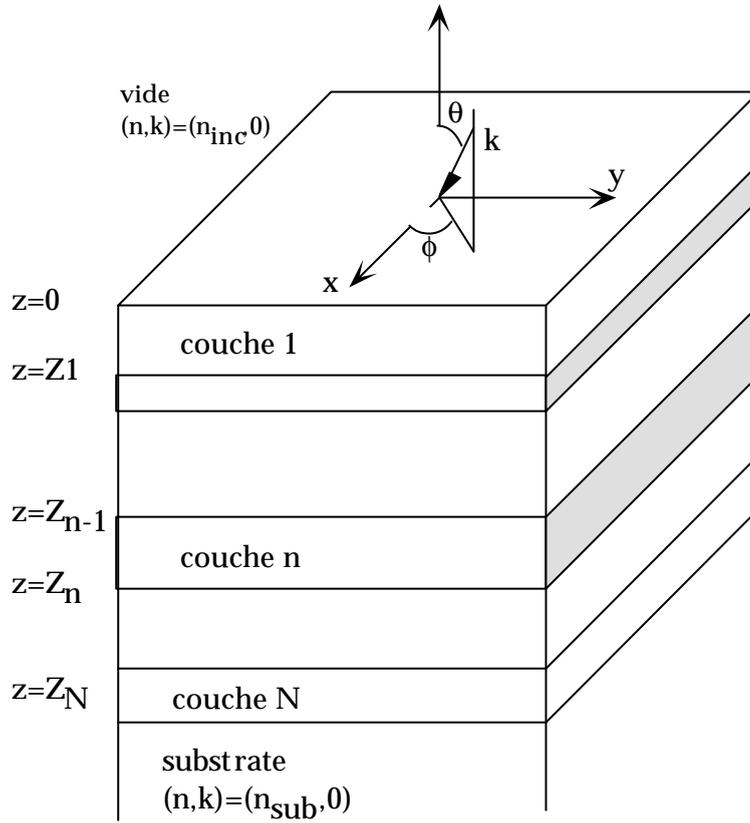


Figure 3 : schéma d'une structure en multicouche et définition du système d'axes..

La continuité des composantes tangentes de  $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{H}$  aux interfaces impose la continuité des composantes  $k_x$  et  $k_y$  du vecteur de propagation. Donc quelle que soit la couche considérée, les composantes planaires du vecteur d'onde de propagation sont constantes et égales :

$$\begin{aligned} k_x &= k_0 \sin q \cos j \\ k_y &= -k_0 \sin q \sin j \end{aligned} \quad (\text{II.56})$$

Considérons un milieu caractérisé par un tenseur de permittivité de forme générale :

$$\tilde{\boldsymbol{\epsilon}} = \begin{pmatrix} \boldsymbol{\epsilon}_{xx} & \boldsymbol{\epsilon}_{xy} & \boldsymbol{\epsilon}_{xz} \\ \boldsymbol{\epsilon}_{yx} & \boldsymbol{\epsilon}_{yy} & \boldsymbol{\epsilon}_{yz} \\ \boldsymbol{\epsilon}_{zx} & \boldsymbol{\epsilon}_{zy} & \boldsymbol{\epsilon}_{zz} \end{pmatrix} \quad (\text{II.58})$$

Si on applique la condition d'existence de modes propagatifs dans ce milieu (voir équation (II.50)), on obtient une équation du quatrième ordre en  $k_z$  :

$$\left(\frac{k_z}{k_0}\right)^4 + A\left(\frac{k_z}{k_0}\right)^3 + B\left(\frac{k_z}{k_0}\right)^2 + C\left(\frac{k_z}{k_0}\right) + D = 0 \quad (\text{II.60})$$

Les expressions des coefficients A,B,C et D sont données dans la note <sup>2</sup>.

En général, l'équation possède quatre solutions pour  $k_z$ . Deux des solutions sont situées dans la partie supérieure du plan complexe et les deux autres sont situées dans la partie inférieure. Les solutions dont la partie imaginaire est positive se propagent dans la direction des z positifs tandis que celles dont la partie imaginaire est négative se propagent dans la direction des z négatifs.

Pour chacune des solutions  $k_z$ , les équations (II.48)a et b permettent de déterminer le champ électrique et magnétique. Chacune de ces équations vectorielles donne deux équations scalaires indépendantes pour les composantes du vecteur  $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{H}$ . On peut donc exprimer deux des composantes du champ électrique et du champ magnétique en fonction des deux autres.

Pour pouvoir résoudre complètement le problème et déterminer la matrice de réflectivité d'un système de multicouches, il faut appliquer la condition de continuité des composantes tangentiels de  $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{H}$  aux interfaces.

Pour effectuer l'implémentation numérique, nous avons utilisé une méthode matricielle utilisant des matrices 2x2 proposée par (Mansuripur, 1990). Les détails du formalisme, assez complexes, sont développés en Annexe B.

Cette méthode a l'avantage d'être plus stable numériquement qu'une méthode plus directe utilisant des matrices 4x4.

<sup>2</sup>

$$\begin{aligned} A &= \left(\frac{k_x}{k_0}\right) \frac{\mathbf{e}_{xz} + \mathbf{e}_{zx}}{\mathbf{e}_{zz}} + \left(\frac{k_y}{k_0}\right) \frac{\mathbf{e}_{yz} + \mathbf{e}_{zy}}{\mathbf{e}_{zz}}, \\ B &= \left(\frac{k_x}{k_0}\right)^2 \left(1 + \frac{\mathbf{e}_{xx}}{\mathbf{e}_{zz}}\right) + \left(\frac{k_y}{k_0}\right)^2 \left(1 + \frac{\mathbf{e}_{yy}}{\mathbf{e}_{zz}}\right) + \left(\frac{k_x k_y}{k_0^2}\right) \frac{\mathbf{e}_{xy} + \mathbf{e}_{yx}}{\mathbf{e}_{zz}} + \left(\frac{\mathbf{e}_{xz} \mathbf{e}_{zx} + \mathbf{e}_{yz} \mathbf{e}_{zy}}{\mathbf{e}_{zz}} - \mathbf{e}_{xx} - \mathbf{e}_{yy}\right), \\ C &= \left(\frac{k_x^2 + k_y^2}{k_0^2}\right) \left[ \left(\frac{k_x}{k_0}\right) \frac{\mathbf{e}_{xz} + \mathbf{e}_{zx}}{\mathbf{e}_{zz}} + \left(\frac{k_y}{k_0}\right) \frac{\mathbf{e}_{yz} + \mathbf{e}_{zy}}{\mathbf{e}_{zz}} \right] \\ &\quad + \left(\frac{k_x}{k_0}\right) \left( \frac{\mathbf{e}_{xy} \mathbf{e}_{yz} + \mathbf{e}_{yx} \mathbf{e}_{zy}}{\mathbf{e}_{zz}} - \frac{\mathbf{e}_{yy}}{\mathbf{e}_{zz}} (\mathbf{e}_{xz} + \mathbf{e}_{zx}) \right) \\ &\quad + \left(\frac{k_y}{k_0}\right) \left( \frac{\mathbf{e}_{xy} \mathbf{e}_{zx} + \mathbf{e}_{yx} \mathbf{e}_{xz}}{\mathbf{e}_{zz}} - \frac{\mathbf{e}_{xx}}{\mathbf{e}_{zz}} (\mathbf{e}_{yz} + \mathbf{e}_{zy}) \right), \\ D &= \left(\frac{k_x^2 + k_y^2}{k_0^2}\right) \left[ \left(\frac{k_x}{k_0}\right)^2 \left(\frac{\mathbf{e}_{xx}}{\mathbf{e}_{zz}}\right) + \left(\frac{k_y}{k_0}\right)^2 \left(\frac{\mathbf{e}_{yy}}{\mathbf{e}_{zz}}\right) + \left(\frac{k_x k_y}{k_0^2}\right) \frac{\mathbf{e}_{xy} + \mathbf{e}_{yx}}{\mathbf{e}_{zz}} - \frac{\mathbf{e}_{xx} \mathbf{e}_{yy}}{\mathbf{e}_{zz}} \right] + \left(\frac{k_x}{k_0}\right)^2 \left( \frac{\mathbf{e}_{xy} \mathbf{e}_{yx} + \mathbf{e}_{xz} \mathbf{e}_{zx}}{\mathbf{e}_{zz}} - \mathbf{e}_{xx} \right) \\ &\quad + \left(\frac{k_y}{k_0}\right)^2 \left( \frac{\mathbf{e}_{xy} \mathbf{e}_{yx} + \mathbf{e}_{yz} \mathbf{e}_{zy}}{\mathbf{e}_{zz}} - \mathbf{e}_{yy} \right) + \left(\frac{k_x k_y}{k_0^2}\right) \left( \frac{\mathbf{e}_{xz} \mathbf{e}_{zy} + \mathbf{e}_{zx} \mathbf{e}_{yz}}{\mathbf{e}_{zz}} - \mathbf{e}_{xy} - \mathbf{e}_{yx} \right) \\ &\quad + \left[ \mathbf{e}_{xx} \mathbf{e}_{yy} + \frac{\mathbf{e}_{xy} \mathbf{e}_{yz} \mathbf{e}_{zx} + \mathbf{e}_{yx} \mathbf{e}_{zy} \mathbf{e}_{xz}}{\mathbf{e}_{zz}} - \mathbf{e}_{xy} \mathbf{e}_{yx} - \left(\frac{\mathbf{e}_{xx}}{\mathbf{e}_{zz}}\right) \mathbf{e}_{yz} \mathbf{e}_{zy} - \left(\frac{\mathbf{e}_{yy}}{\mathbf{e}_{zz}}\right) \mathbf{e}_{xz} \mathbf{e}_{zx} \right]. \end{aligned}$$

### C. Dispositif expérimental de mesures par effet Kerr.

Pour pouvoir effectuer des mesures de routine sur des couches minces magnétiques, j'ai construit un spectromètre à effet Kerr. Ce travail expérimental a inclu le développement de toute la chaîne de mesure (de l'interfaçage au programme de pilotage ainsi que le développement de cartes électroniques " maison " de pilotage des différents mouvements motorisés). Les paragraphes suivants décrivent les caractéristiques générales de cet ellipsomètre.

#### 1. Description générale du montage.

La source lumineuse du spectromètre à effet Kerr est un laser He-Ne ( $\lambda = 632.8$  nm). L'incidence du faisceau lumineux sur l'échantillon peut varier de  $10^\circ$  (effet Kerr presque perpendiculaire) à  $90^\circ$  (incidence rasante). Le faisceau lumineux est polarisé grâce un polariseur de Glan-Thompson (rapport d'extinction de  $10^5$ ). Une lame semi-réfléchissante sert à prélever une partie du faisceau afin de contrôler les fluctuations d'intensité de la source laser. Le faisceau lumineux est alors éventuellement modulé (en intensité ou en état de polarisation) puis est réfléchi sur l'échantillon. L'état de polarisation du faisceau réfléchi est ensuite analysé par un deuxième polariseur Glan-Thompson monté sur une rotation motorisée.

Nous pouvons travailler suivant trois modes de mesure :

- mesures statiques, le faisceau incident n'est pas modulé.
- modulation de l'intensité du faisceau laser par un hacheur mécanique et détection synchrone.
- modulation de l'état de polarisation du faisceau laser incident (de circulaire gauche à circulaire droite).

Le mouvement de l'ensemble des éléments optiques est motorisé :

- rotation de l'angle de polarisation du faisceau incident,
- rotation du compensateur (lame quart d'onde),
- rotation de l'analyseur (précision mécanique de  $0.001^\circ$ ),
- rotation  $\theta$ ,  $2\theta$ ,
- bascule et translation de l'échantillon.

La motorisation des réglages de la tête goniométrique est indispensable pour des scans  $q/2q$  car il s'avère que malgré une précision mécanique de  $0.01^\circ$  des différents mouvements les réglages ne peuvent pas être conservés sur l'ensemble d'un scan et doivent être " rattrapés ". La direction servant de référence est la direction du bras  $2\theta$ .

L'échantillon est monté sur un support rotatif afin de pouvoir effectuer des mesures pour différentes orientations de l'échantillon par rapport au plan d'incidence de la lumière. Ce mouvement est indispensable pour les mesures d'anisotropie magnétique.

Le champ magnétique peut être appliqué soit longitudinalement soit transversalement par rapport au plan d'incidence de la lumière. Son intensité peut varier entre  $-40$  et  $+40$  mT.

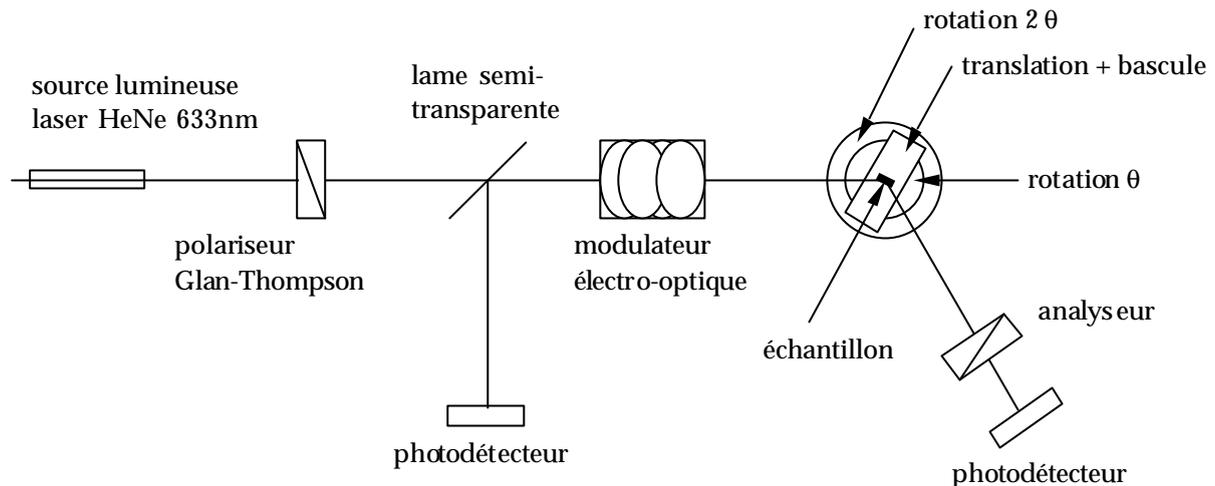


Figure 4 : schéma de l'ellipsomètre à effet Kerr construit au SPEC.

## 2. Description du modulateur électro-optique.

Le modulateur électro-optique se comporte comme une lame biréfringente dont le retard relatif  $\delta$  varie linéairement avec la tension électrique appliquée sur le cristal. Dans le cas où cette tension électrique varie sinusoidalement avec le temps, on obtient un retard de la forme :

$$d = d_m \sin(\omega t), \quad (\text{II.62})$$

Nous utilisons un modulateur de marque Leysop (modèle E200) ayant une ouverture de 4 mm. Les tensions à appliquer pour obtenir une modulation totale de la polarisation ( $\delta_m = \pi$ ) sont de l'ordre de 500 V. La fréquence de modulation est de 20 kHz.

En plaçant le modulateur électro-optique, dont les lignes neutres sont orientées selon les axes (Ox) et (Oy), derrière un polariseur dont la direction de transmission est à  $45^\circ$  de l'axe (Ox), on génère une lumière elliptiquement polarisée dont l'azimuth  $\alpha = \pm p/4$  mais dont l'ellipticité dépend de la valeur de  $\delta$ . Deux des états particuliers sont les polarisations rectilignes orthogonales d'inclinaison  $45^\circ$  obtenues pour  $\delta = 0$  et  $\delta = \pi$  (voir Tableau 1).

$d$	$-p$	$-\frac{3p}{4}$	$-\frac{p}{2}$	$-\frac{p}{4}$	0	$\frac{p}{4}$	$\frac{p}{2}$	$\frac{3p}{4}$	$p$
Schéma									

Tableau 1 : états de polarisation de la lumière sortante du modulateur électro-optique en fonction du retard  $d$  pour une onde entrante polarisée linéairement à  $45^\circ$  par rapport aux axes principaux du modulateur.

#### **D. Détermination des composantes planaires de l'aimantation d'un film mince par technique magnéto-optique.**

Les mesures magnéto-optiques permettent de mesurer des cycles d'hystérésis de l'aimantation de films minces. Cependant moyennant de petits efforts nous allons montrer qu'il est possible d'effectuer des mesures donnant l'amplitude *et* la direction de l'aimantation. Dans la discussion qui suivra, nous nous limiterons à des aimantations planaires. Nous présenterons une technique basée sur une rotation du champ magnétique appliqué (mesures longitudinales et transverses) puis une méthode ne nécessitant pas de rotation du champ mais seulement son inversion. Une technique similaire a été présentée par (Florczak, 1990,1991).

Nous concluons en comparant les performances de ces techniques de magnéto-optique et des techniques de PNR pour la détermination de l'aimantation vectorielle.

##### **1. Méthode utilisant une rotation du champ magnétique.**

Il a été récemment proposé et montré (Daboo, 1993) que la mesure de cycles d'hystérésis pour les deux configurations de champ longitudinal et transverse permettait de mesurer l'amplitude et la direction de l'aimantation d'un système magnétique. Dans une première mesure le champ est appliqué longitudinalement (c'est-à-dire que le champ est appliqué dans le plan d'incidence de la lumière). Dans une mesure de type Kerr (en réflexion), la mesure magnéto-optique est sensible à la composante longitudinale de l'aimantation c'est-à-dire l'aimantation parallèle au champ magnétique appliqué. Dans une deuxième étape, on fait subir une rotation de 90° au champ magnétique et à la couche mince. Le champ magnétique est alors transversal c'est-à-dire perpendiculaire au plan d'incidence de la lumière. La mesure magnéto-optique est sensible à l'aimantation longitudinale c'est-à-dire à l'aimantation perpendiculaire au champ appliqué. La configuration optique restant identique dans les deux mesures, les deux intensités sont directement comparables. On obtient ainsi deux cycles d'hystérésis, celui de l'aimantation parallèle au champ magnétique et celui de l'aimantation perpendiculaire au champ appliqué. On observera des valeurs non nulles de l'aimantation perpendiculaire s'il existe des axes d'anisotropie non alignés avec le champ extérieur appliqué.

Les anisotropies magnétiques peuvent être d'origine cristallographique (dans le cas où le film est monocristallin) ou bien induites par des causes extérieures (dépôt sous angle, texture du substrat, dépôt sous champ magnétique...).

La Figure 1 montre une série de cycles d'hystérésis mesurés sur une couche de cobalt polycristalline de 30 nm d'épaisseur déposée par pulvérisation cathodique radio-fréquence. Pour une telle couche on ne s'attend a priori pas à l'apparition d'axes d'anisotropie. Cependant les mesures expérimentales montrent qu'il existe un axe d'anisotropie uniaxiale dans le système<sup>1</sup>. A gauche est présentée l'aimantation

---

<sup>1</sup> L'existence de cet axe d'anisotropie est observée dans toutes les couches minces de cobalt que nous avons déposées par pulvérisation cathodique radio-fréquence.

parallèle au champ magnétique pour trois directions de l'axe d'anisotropie par rapport au champ appliqué. En haut, champ perpendiculaire à l'axe d'anisotropie, au milieu, angle de  $45^\circ$  entre les deux directions, en bas, champ magnétique parallèle à l'axe d'anisotropie. On passe d'un cycle complètement fermé pour un angle de  $0^\circ$  entre le champ et l'axe d'anisotropie à un cycle très carré pour un angle de  $90^\circ$  en passant par un cycle plus "arrondi" pour une orientation de  $45^\circ$ . La partie droite de la Figure 1 montre les mesures de l'aimantation perpendiculaire au champ magnétique. Il est à noter qu'en théorie ces courbes doivent tendre vers zéro en fort champ. Ce n'est pas le cas dans les mesures présentées car le champ maximum appliqué est modeste (10 mT).

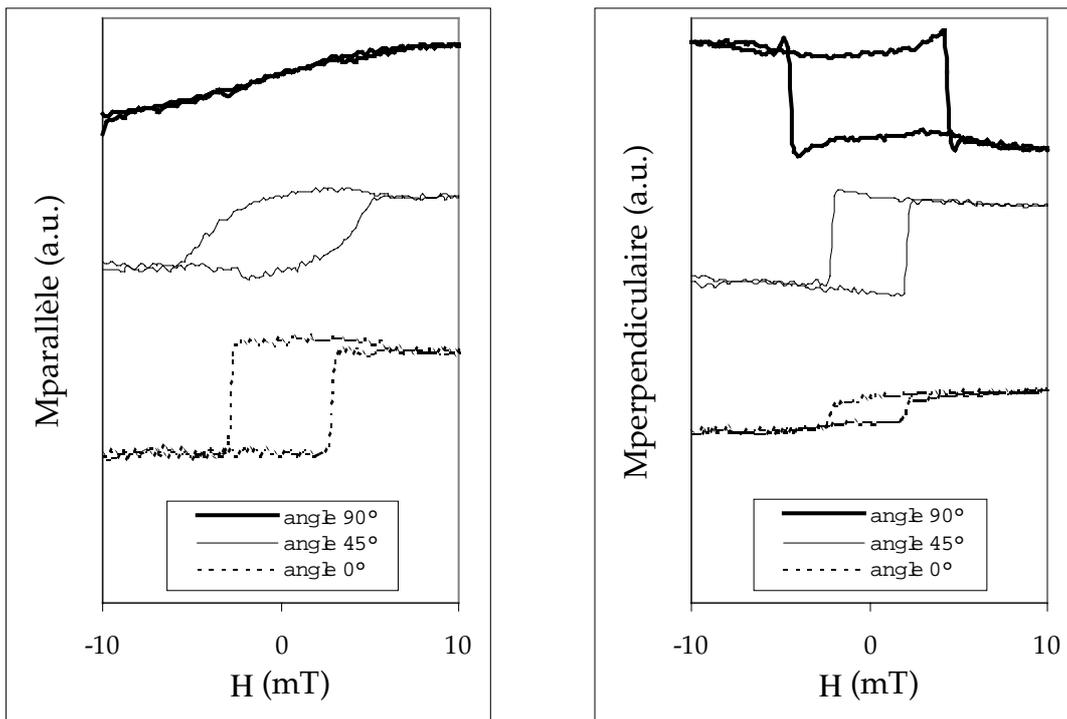


Figure 1 : cycles d'hystérésis d'une tricouche Au/Co(30nm)/Au déposée sur verre mesurés par effet Kerr. A gauche, aimantation parallèle au champ appliqué, à droite, aimantation perpendiculaire au champ appliqué. En haut, champ magnétique perpendiculaire à l'axe d'anisotropie, au milieu, angle de  $45^\circ$  entre les deux axes, en bas, champ magnétique parallèle à l'axe d'anisotropie.

Il est possible de simuler numériquement les cycles d'hystérésis  $(H, M_\perp)$  et  $(H, M_\parallel)$ . L'expression de l'énergie libre du système est donnée par :

$$E = E_{MC} + K_u \sin^2 \theta - \mathbf{M} \cdot \mathbf{H} + \frac{1}{2} \mu_0 M_n^2 \quad (\text{II.33})$$

où  $E_{MC}$  est l'énergie d'anisotropie magnétocristalline,  $K_u$  une constante d'anisotropie uniaxiale et  $\theta$  l'angle entre l'aimantation et l'axe d'anisotropie. Les deux derniers termes ont pour origine l'énergie Zeeman et l'énergie de champ démagnétisant. On trouvera une discussion plus détaillée de ces termes dans le chapitre 3. La direction de l'aimantation en fonction du champ est simplement obtenue par minimisation de la fonction d'énergie libre. Ce type de calcul donne des résultats très satisfaisants dans le cas de films minces monocristallins de fer (Florczak, 1991 et Daboo, 1993). Dans le cas du film de cobalt précédent, ce modèle ultrasimple ne permet pas de

rendre compte de manière totalement satisfaisante des mesures. La Figure 2 montre les résultats obtenus dans l'hypothèse d'un film non texturé (sans anisotropie magnéto-cristalline) mais avec un axe d'anisotropie uniaxial caractérisé par une constante d'anisotropie  $K_u$  de  $0.5 \times 10^{-6}$  erg/cm<sup>2</sup>. Les cycles d'hystérésis de l'aimantation parallèle au champ appliqué (partie gauche) sont assez bien reproduits (cycles fermé, arrondi et carré). Le cycle pour une orientation de 45° n'est pas aussi arrondi que le cycle mesuré. Cela peut être dû à des défauts de piégeage. L'accord dans le cas de l'aimantation perpendiculaire est nettement moins satisfaisant (Figure 2b). Cependant, les amplitudes des signaux sont relativement bien reproduites. De plus dans le cas d'une orientation à 0°, on reproduit l'augmentation du champ coercitif observé. Les formes ne sont à peu près satisfaisantes que dans les cas d'un angle de 0° et 45°. La forme du cycle de la mesure faite à 0° ne trouve pas d'explication simple. L'anisotropie magnétique du film trouve sans doute son origine dans le champ magnétique résiduel existant lors du dépôt du film mince.

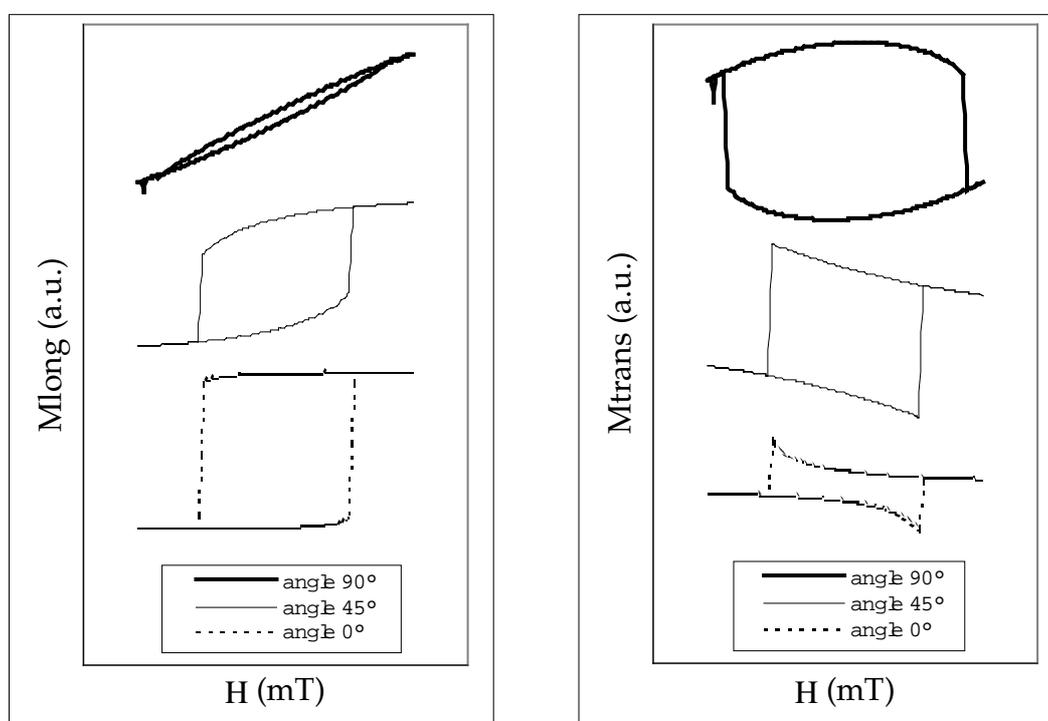


Figure 2 : simulations des cycles d'hystérésis dans l'hypothèse d'une rotation cohérente de l'aimantation. A gauche, aimantation parallèle au champ appliqué; à droite, aimantation perpendiculaire au champ appliqué.

## 2. Détermination de la direction de l'aimantation sans rotation du champ magnétique extérieur.

Nous allons proposer une méthode quelque peu différente de la méthode précédente pour déterminer la direction de l'aimantation. Celle-ci s'affranchit de la nécessité d'effectuer une rotation du champ magnétique extérieur ; cela peut être intéressant pour certains montages où le champ n'est pas orientable. Cette méthode est basée sur la rotation de l'angle de l'analyseur de polarisation. Une méthode similaire a été proposée par (Florczak, 1990, 1991).

La méthode exige une connaissance minimale des caractéristiques optiques du système étudié. En général ceci n'est pas un problème mais il faut tout de même être prudent car les films minces présentent souvent des caractéristiques optiques relativement différentes des matériaux massifs. La Figure 3 montre la différence entre les indices d'une couche de nickel mesurés et tabulés<sup>2</sup>. L'accord n'est pas très bon.

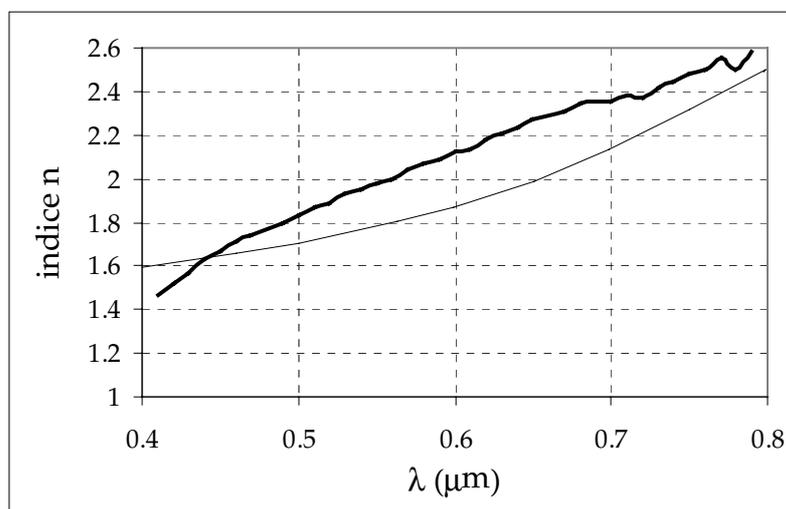


Figure 3 : indice optique d'un film mince de nickel déposé par sputtering en fonction de la longueur d'onde (trait fin : valeurs tabulées ; trait gras : valeurs mesurées).

La méthode de détermination de la direction de l'aimantation de films minces se base sur des mesures réalisées avec un montage à polariseur tournant (modulation périodique en  $\omega t$  de la direction de polarisation de la lumière incidente). Après réflexion sur l'échantillon la lumière est analysée par un analyseur faisant un angle  $A$  avec le plan d'incidence. Un montage en lock-in permet de mesurer les composantes de l'intensité en phase et en quadrature de phase avec la rotation  $\omega t$  du polariseur. L'annexe C décrit les relations entre ces intensités et les coefficients de la matrice de réflexion sur l'échantillon ainsi que les angles ellipsométriques. On définit l'angle  $\phi$  tel que :

$$\tan \phi = \frac{\beta}{\alpha} \quad (\text{II.35})$$

où  $\alpha$  et  $\beta$  sont les intensités en phase et en quadrature de phase de l'intensité.

La Figure 4 montre les variations de cet angle  $\phi$  en fonction de l'angle de l'analyseur pour deux angles d'incidence différents (mesure sur une couche simple de nickel). Dans le premier cas (incidence  $75^\circ$ ), on est proche de l'angle de Brewster  $\theta = 77.8^\circ$  (correspondant à un minimum du coefficient de réflexion  $r_{pp}$ ) ; les variations de  $\phi$  sont assez "brutales" autour de  $25^\circ$ . Dans le deuxième cas (incidence  $50^\circ$ ) les variations de  $\phi$  sont beaucoup plus molles.

<sup>2</sup> J'ai effectué les mesures spectroscopiques de l'indice optique des couches de nickel sur le spectromètre du Dr. Salczer au Service de Physique de l'Etat Condensé.

De manière générale, les variations de  $\phi(A)$  sont d'autant plus abruptes que l'on est proche de l'angle de Brewster.

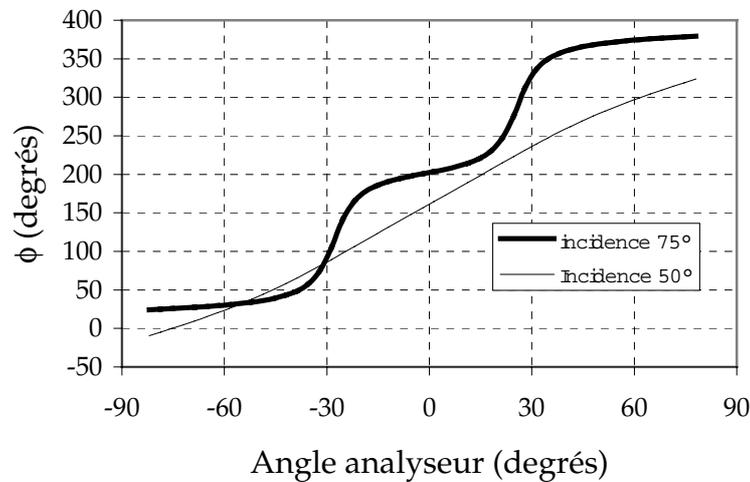


Figure 4 : variations de  $\phi$  (défini par (II.35)) en fonction de l'angle analyseur dans le cas d'une réflexion sur une couche de nickel (traits gras :  $\theta_{inc} = 50^\circ$  ; traits fins :  $\theta_{inc} = 75^\circ$ ).

La technique de détermination de la direction de l'aimantation que nous proposons est basée sur la mesure de la quantité  $\delta\phi = \phi(M) - \phi(-M)$  en fonction de l'angle de l'analyseur. Cette quantité peut être obtenue soit en faisant subir à l'échantillon une rotation de  $180^\circ$ , soit en inversant la direction du champ (si l'on est sûr que l'état magnétique du système est antisymétrique par rapport au champ magnétique appliqué).

Considérons une couche mince de nickel déposée sur un substrat de verre. La Figure 5 montre l'évolution du signal  $\delta\phi(A)$  en fonction de l'angle de l'aimantation par rapport au plan d'incidence de la lumière (les paramètres magnéto-optiques de la couche de nickel utilisé pour la simulation sont  $(n, k) = (1.7, 3)$  et  $Q = (0.031, -0.018)$ ). *N.B.* : dans toute la suite du paragraphe nous supposerons que l'aimantation du système est planaire et que le champ magnétique est appliqué dans le plan de l'échantillon.

On remarque que la parité des courbes  $\delta\phi(A)$  dépend de l'orientation de l'aimantation par rapport au plan d'incidence de la lumière. On passe d'une situation où  $\delta\phi(A)$  est paire dans le cas où l'aimantation est parallèle au plan d'incidence à une situation où  $\delta\phi(A)$  est impaire dans le cas où l'aimantation est transverse<sup>3</sup>. Dans les cas intermédiaires, les pics changent en amplitude relative (Figure 5).

<sup>3</sup> On peut expliquer cette symétrie (dans les deux cas extrêmes, M longitudinal et M transverse) en considérant la symétrie de la polarisation électrique  $\vec{P}$  induite par la présence de l'aimantation. On rappelle que  $\vec{P} \propto \vec{E} \times \vec{M}$  (Sokolov, 1967).

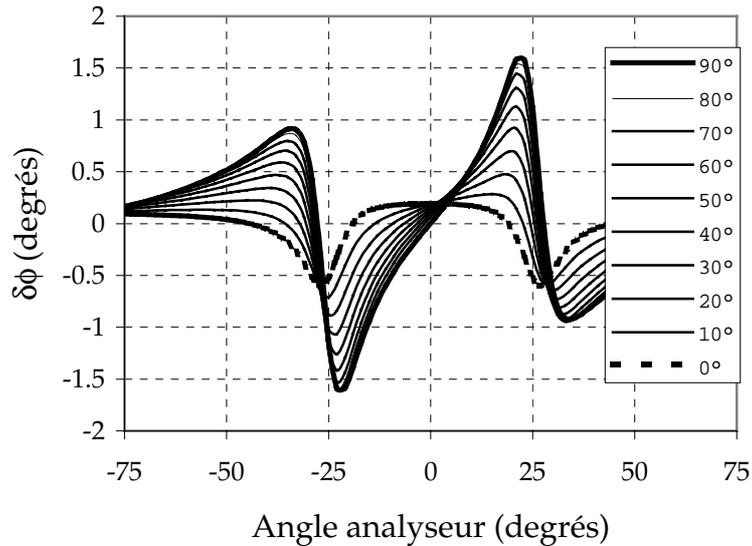


Figure 5 : évolution du signal  $\delta\phi(A)$  pour différentes directions de l'aimantation par rapport au plan d'incidence de la lumière (trait gras : aimantation transverse ; trait pointillé : aimantation longitudinale). Les angles correspondent à la direction de l'aimantation par rapport au plan d'incidence. Simulations dans le cas d'une couche mince de nickel et d'une incidence du faisceau lumineux de  $75^\circ$ .

On peut rendre la Figure 5 plus lisible en ne traçant que le rapport des amplitudes des deux pics principaux (autour de  $23^\circ$ ) en fonction de la direction de l'aimantation (Figure 6). La simple mesure de l'amplitude des pics permet de déterminer la direction de l'aimantation.

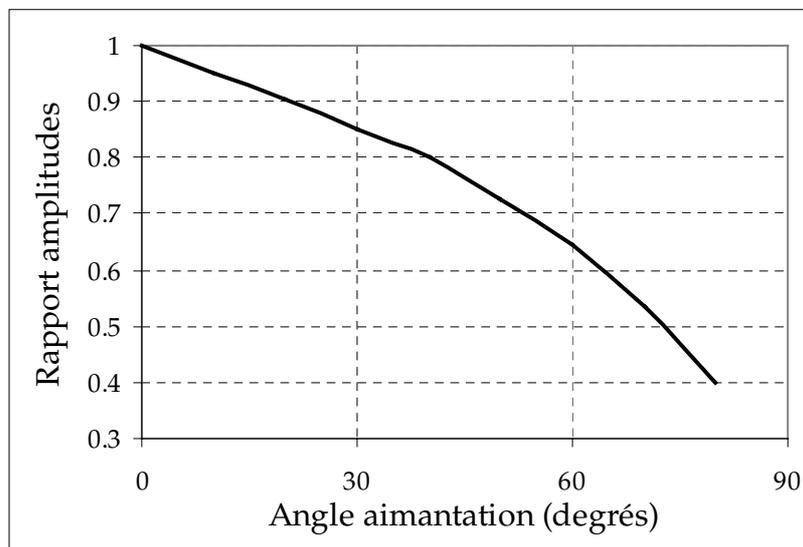


Figure 6 : rapport des amplitudes des pics principaux en fonction de la direction de l'aimantation.

Cependant si l'on veut obtenir une détermination plus précise de la direction de l'aimantation, il est préférable d'ajuster numériquement les courbes  $\delta\phi(A)$  telles que celles présentées sur la Figure 5.

Nous allons présenter quelques mesures expérimentales sur une couche de nickel illustrant la technique. La Figure 7 montre une série de mesures de  $\delta\phi(A)$  pour une incidence de  $75^\circ$  et pour différentes directions de l'aimantation par rapport au plan d'incidence de la lumière.

Les variations de  $\delta\phi$  sont assez piquées. Au contraire pour des angles d'incidence plus éloignés de l'angle de Brewster, on retrouve une différence  $\delta\phi$  présentant des variations plus molles. La Figure 8 montre un exemple de mesure de  $\delta\phi$  pour une incidence de  $50^\circ$ .

Dans le cadre de mesures expérimentales, on cherche à obtenir une sensibilité maximale du signal. Les variations de  $\delta\phi$  sont directement reliées aux variations des coefficients  $r_{pp}$  et  $r_{ss}$ . Les variations de ces coefficients sont les plus prononcées autour de l'angle de Brewster et donnent donc lieu à des variations plus importantes du signal  $\delta\phi$ . Il faut cependant être prudent, à la position de l'angle de Brewster, la détermination de l'angle de l'analyseur doit être extrêmement précise pour donner des informations fiables. En effet comme on peut l'observer sur la Figure 4, les variations de  $\phi$  sont brutales autour de certaines positions et ce sont à ces positions que l'on observe des pics importants dans le signal  $\delta\phi$ . Le meilleur rapport signal sur bruit sera obtenu pour des angles proches de l'angle de Brewster mais suffisamment éloignés pour que la précision sur l'angle de l'analyseur ne soit pas une limitation. Une étude détaillée serait nécessaire pour estimer quelle est la position optimale de mesure en fonction de la précision du système expérimental.

Dans une première approximation, on peut dire qu'il suffit de s'éloigner de quelques degrés par rapport à l'angle de Brewster pour obtenir un signal relativement précis. La meilleure position de mesure étant souvent donnée par l'usage et l'expérience.

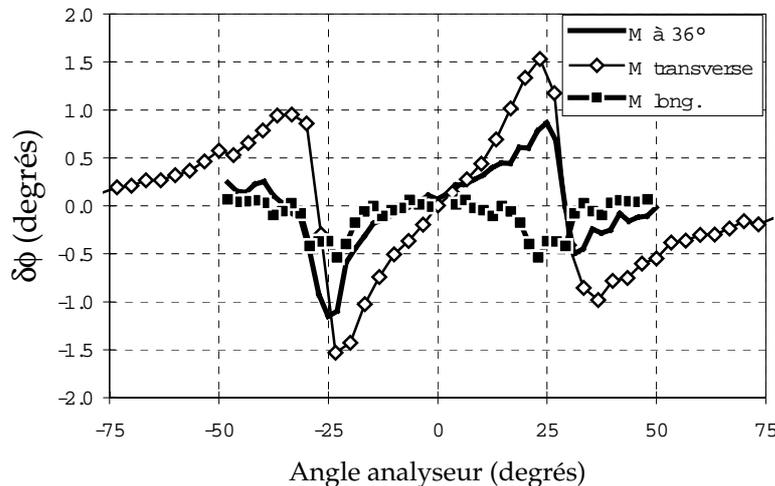


Figure 7 : mesure de la variation  $\delta\phi$  pour différentes orientations de l'aimantation et pour un angle d'incidence de  $75^\circ$  (mesure sur une couche de nickel déposée sur silicium).

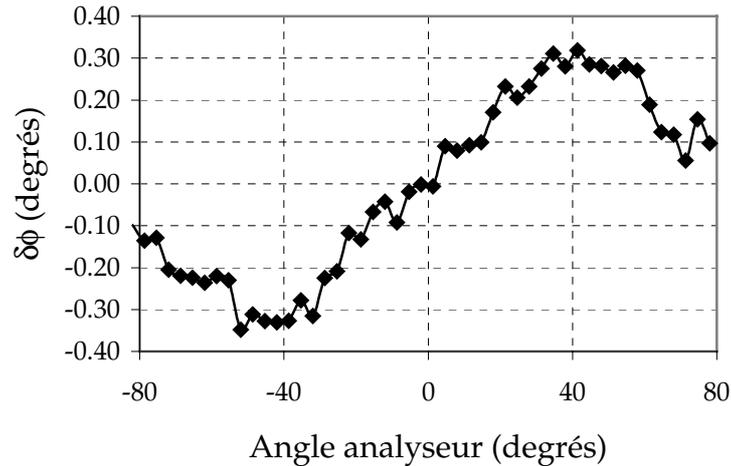


Figure 8 : variation de  $\delta\phi$  pour un angle d'incidence de  $50^\circ$  sur l'échantillon.

Il est possible d'ajuster numériquement les courbes  $\delta\phi(A)$  ainsi obtenues. Un exemple d'ajustement dans le cas d'une aimantation transverse est présenté sur la Figure 9. Dans la procédure d'ajustement, l'indice optique est supposé connu, les paramètres ajustables sont le paramètre magnéto-optique  $Q$  (voir équation II.3) et la direction de l'aimantation par rapport au plan d'incidence. Les paramètres optiques issus de l'ajustement sont  $(n, k) = (1.7, 3)$  et  $Q = (0.031, -0.018)$ .

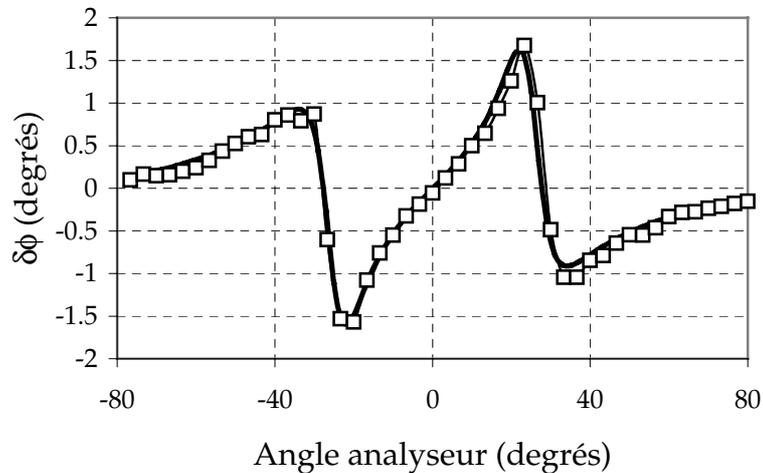


Figure 9 : ajustement numérique (trait gras) du signal  $\delta\phi$  dans le cas d'une aimantation transverse (carrés blancs) et ajustement numérique (trait gras).

### 3. Conclusion.

Nous avons montré qu'il est possible de déterminer des directions d'aimantation sans avoir recours à une rotation du champ magnétique. Cette technique s'applique à des montages classiques d'ellipsométrie où l'on utilise une modulation de la polarisation incidente sur l'échantillon et où l'on dispose d'un analyseur tournant.

Par rapport à la réflectivité de neutrons polarisés, les techniques magnéto-optiques présentées ci-avant présentent des avantages de rapidité et de facilité de mise en œuvre. Cependant, elles ont le désavantage de ne pas donner de valeur absolue de l'aimantation. Par ailleurs un des grands avantages de la PNR est la possibilité d'obtenir une résolution en profondeur dans l'épaisseur du film ou du système magnétique, ce que ne permet pas directement la magnéto-optique.

Dans le paragraphe suivant nous allons essayer d'aller plus loin en évaluant le potentiel des mesures magnéto-optiques pour la détermination d'informations magnétiques résolues en profondeur voire de profils d'aimantation.

## **E. Obtention d'informations magnétiques résolues en profondeur par technique magnéto-optique.**

Les mesures magnéto-optiques sont relativement simples à mettre en œuvre mais dans une mesure classique de magnéto-optique on a seulement accès à l'aimantation globale du système. Nous nous sommes intéressés au potentiel des mesures MO pour la détermination de profils magnétiques résolus en profondeur. Quelques groupes ont récemment envisagé ce problème (Hubert 1993 ; Atkinson 1995). Il a été montré sur un système de bicouches magnétiques (Pénissard, 1995) qu'il était possible de mesurer séparément l'aimantation des couches individuelles. Cette méthode est basée sur l'extinction du signal magnéto-optique d'une des couches par rapport à l'autre par ajustement de la longueur d'onde ou de la phase du signal. Les méthodes magnéto-optiques ont l'avantage par rapport à la RNP d'être sensible à la composante perpendiculaire de l'aimantation et sont donc un outil complémentaire potentiel.

Nous proposons deux approches qui nous semblent plus applicables en pratique que les méthodes proposées et qui essaient de s'affranchir autant que possible de mesures " absolues " de constantes optiques et magnéto-optiques du système étudié.

### **1. Technique basée sur le principe de l'analyseur tournant.**

Nous allons utiliser la méthode présentée dans le paragraphe précédent et étudier l'influence d'un profil magnétique non homogène en profondeur.

Considérons deux couches magnétiques de nickel de 5 nm séparées par un espaceur métallique d'aluminium (épaisseur 5 nm) et déposées sur silicium. Nous allons étudier l'évolution du signal  $\delta\phi$  (voir partie précédente) en fonction de la direction *relative* de l'aimantation des deux couches.

Une première série de simulations compare une situation où l'aimantation  $M_2$  de la couche du dessous est " verrouillée " en position longitudinale (c'est-à-dire dans le plan d'incidence de la lumière) et l'aimantation  $M_1$  de la couche supérieure varie d'une configuration parallèle à une configuration antiparallèle et une situation où l'aimantation  $M_1$  de la couche supérieure est verrouillée dans une configuration longitudinale et la direction de l'aimantation  $M_2$  de la couche inférieure évolue d'une configuration parallèle à une configuration antiparallèle (voir Figure 1). Ce type de situation est assez classique dans les systèmes de bicouches couplées ou bien dans des systèmes de couches minces présentant un couplage quadratique. La Figure 2 montre l'évolution du signal  $\delta\phi$  en fonction des directions des aimantations des deux couches. Les deux configurations  $(M_1(0^\circ); M_2(45^\circ))$  et  $(M_1(45^\circ); M_2(0^\circ))$  sont très similaires même si une légère asymétrie commence à apparaître, il faudrait cependant être prudent si on voulait la quantifier à partir des mesures expérimentales. Les autres configurations au contraire deviennent extrêmement dissimilaires. Les deux situations finales  $(M_1(0^\circ); M_2(180^\circ))$  et  $(M_1(180^\circ); M_2(0^\circ))$  donnent des résultats antisymétriques.

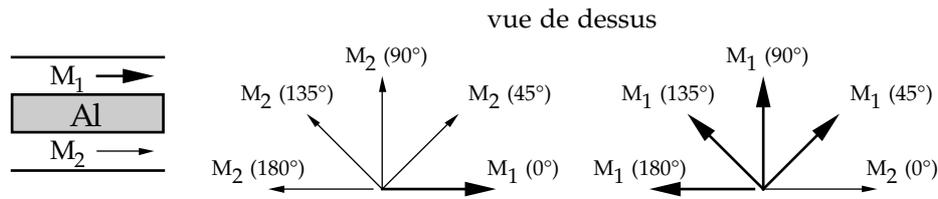


Figure 1 : système de bicouche et les différentes configurations magnétiques que l'on souhaite comparer. Au centre, l'aimantation  $M_1$  est fixe et  $M_2$  tourne de  $0^\circ$  à  $180^\circ$  par rapport à la direction de  $M_1$ . A droite,  $M_2$  est fixe et  $M_1$  tourne de  $0^\circ$  à  $180^\circ$  par rapport à la direction de  $M_2$ .

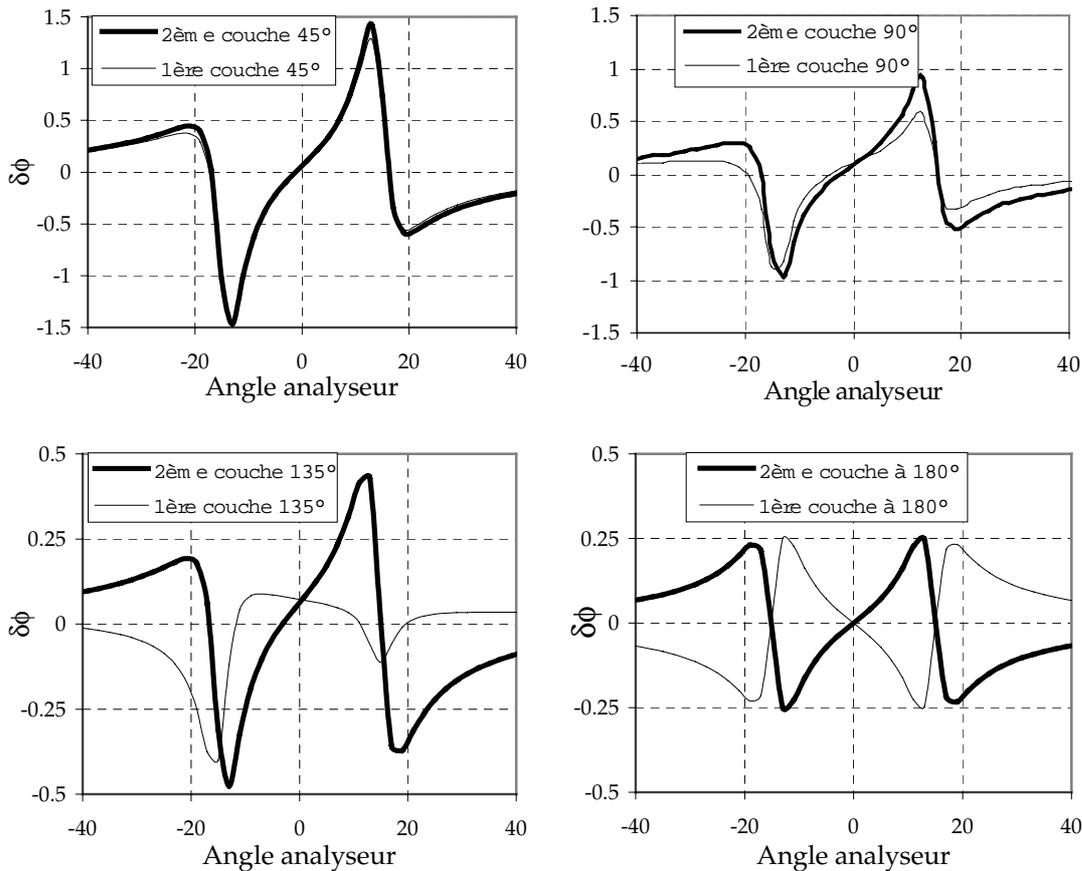


Figure 2 : évolution du signal  $\delta\phi(A)$ . (en trait gras) : l'aimantation  $M_1$  de la couche supérieure est parallèle au plan d'incidence et l'aimantation  $M_2$  de la couche inférieure tourne de  $0^\circ$  à  $180^\circ$  par rapport à  $M_1$  ; (trait fin) : l'aimantation  $M_2$  de la couche inférieure est parallèle au plan d'incidence et l'aimantation  $M_1$  de la couche supérieure tourne de  $0^\circ$  à  $180^\circ$  par rapport à  $M_2$ . Les angles sont calculés relativement au plan d'incidence.

On peut évidemment aussi considérer la situation où une des deux aimantations est verrouillée en position transverse (perpendiculaire au plan d'incidence) et l'aimantation de la deuxième couche tourne de  $0^\circ$  à  $180^\circ$  par rapport à l'aimantation de la couche verrouillée en position transverse à  $90^\circ$  (voir Figure 3).

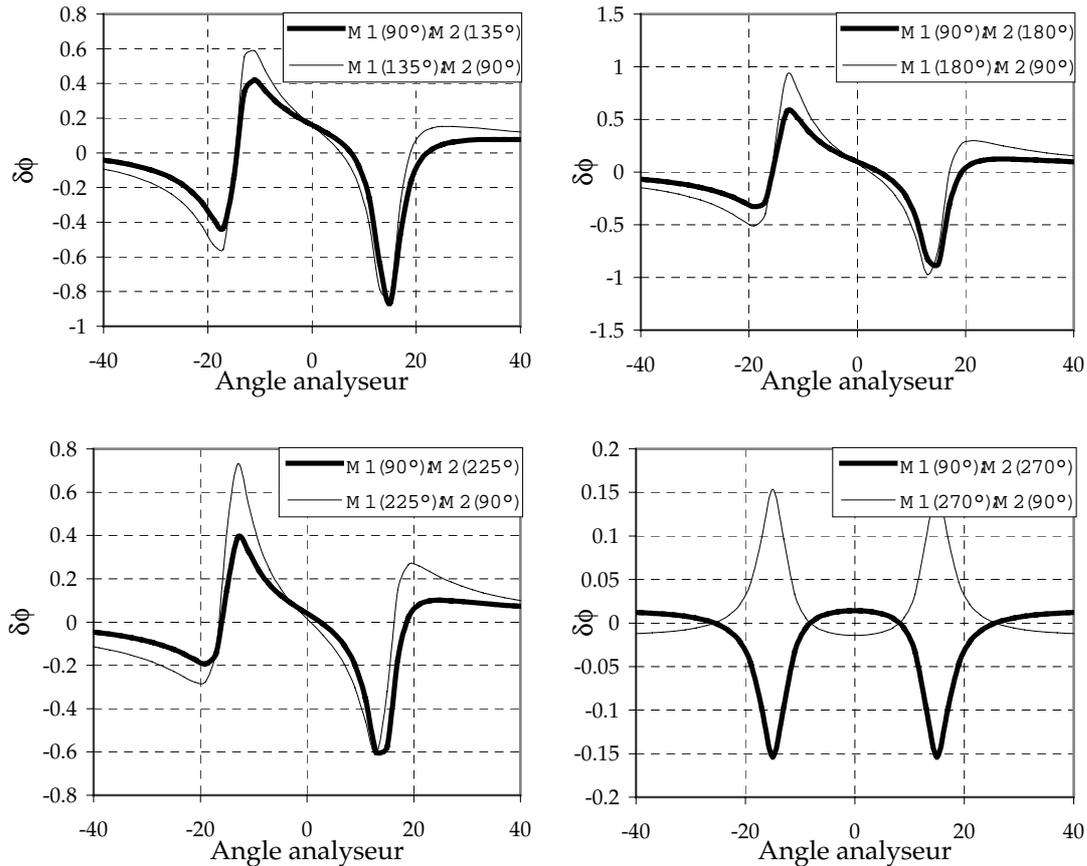


Figure 3 : évolution du signal  $\delta\phi(A)$ . (en trait fin) : l'aimantation  $M_1$  de la couche supérieure est perpendiculaire au plan d'incidence et l'aimantation  $M_2$  de la couche inférieure tourne de  $0^\circ$  à  $180^\circ$  par rapport à  $M_1$  ; (trait gras) : l'aimantation  $M_2$  de la couche inférieure est perpendiculaire au plan d'incidence et l'aimantation  $M_1$  de la couche supérieure tourne de  $0^\circ$  à  $180^\circ$  par rapport à  $M_2$ . Les angles sont calculés relativement au plan d'incidence.

Les simulations des Figure 2 et Figure 3 suggèrent qu'il est très facile de distinguer les différentes configurations magnétiques possibles d'un système de bicouches. Cependant il faut remarquer que même si cette approche semble présenter des intérêts (sensibilité et absence de rotation de champ) elle nécessite tout de même de tourner l'échantillon de  $180^\circ$  ou d'inverser la direction du champ pour pouvoir mesurer le signal  $\delta\phi(A)$ . C'est d'ailleurs ce qui rend la méthode sensible puisqu'on ne mesure que les effets magnétiques en excluant autant que possible les problèmes liés à la structure de la couche.

## 2. Approche plus systématique.

Tout ce qui a été présenté dans le paragraphe précédent s'est focalisé sur une situation particulière de géométrie (incidence fixe et montage à polariseur tournant avec détection synchrone). Nous allons aborder le problème de manière plus systématique en étudiant l'évolution du signal magnéto-optique en fonction de l'angle d'incidence et de la polarisation de la lumière incidente.

A la différence du cas considéré précédemment, nous considérerons dans la suite une polarisation de l'onde incidente  $\theta = 45^\circ$  par rapport au plan d'incidence et une ellipticité variant de  $-45^\circ$  à  $+45^\circ$ . L'ellipticité peut être modulée de différentes manières : compensateur, modulateur acousto-optique ou modulateur électro-optique. Nous allons montrer que pour un système magnétique, il existe des conditions expérimentales (angle d'incidence et ellipticité incidente) qui permettent de résoudre en profondeur des structures magnétiques. Cette technique de mesure exige de faire des mesures absolues des états de polarisation de la lumière avec une assez grande précision ( $<0.01^\circ$ ).

Considérons un système de deux couches magnétiques de 5 nm d'épaisseur à aimantation perpendiculaire (matériau utilisé pour l'enregistrement magnéto-optique abrégé par MO avec  $n = 2.75 + i 3.53$ ,  $Q = 0.021 - 0.005$ ) séparées par un espaceur métallique d'aluminium de 5 nm d'épaisseur. La Figure 4 montre la polarisation et l'ellipticité de l'onde réfléchie en fonction de l'ellipticité de l'onde incidente et de l'angle d'incidence sur l'échantillon (la polarisation de l'onde incidente est fixée à  $45^\circ$ ) dans l'état saturé magnétiquement de l'échantillon. Comme on s'intéresse à la direction de polarisation de l'onde réfléchie les déterminations expérimentales de la polarisation réfléchie les plus précises sont obtenues dans le cas où l'ellipticité est proche de  $0^\circ$ . Cette zone correspond à des angles d'incidence autour de  $75^\circ$  (voir Figure 4b) où l'ellipticité de l'onde réfléchie reste inférieure à  $10^\circ$ .

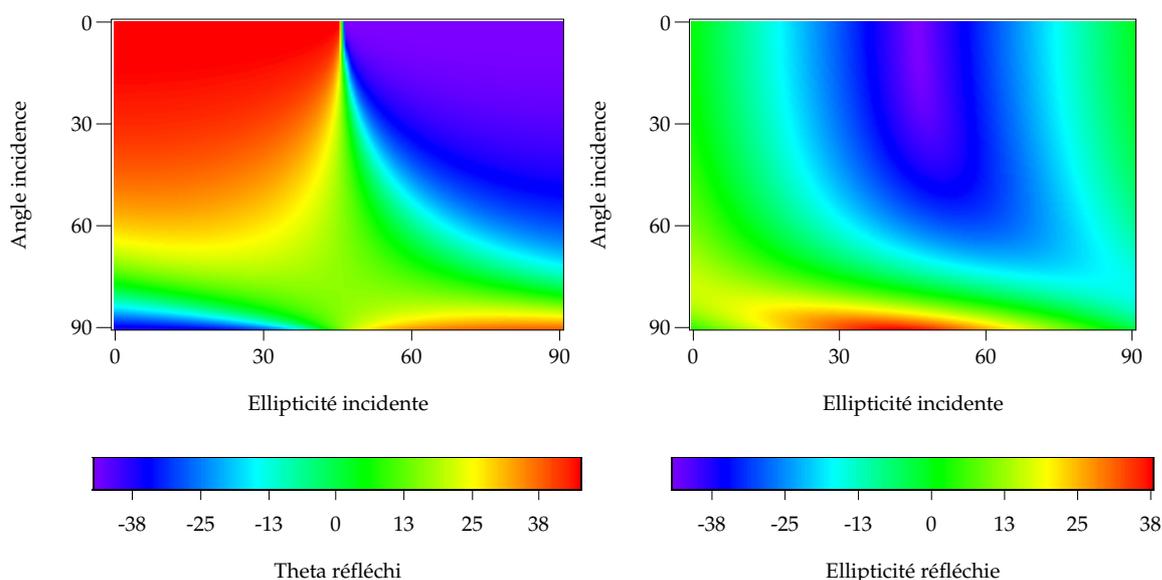


Figure 4 : polarisation de l'onde réfléchie sur une tricouche MO(5nm)/Al(5nm)/MO(5nm) en fonction de l'angle d'incidence et de l'ellipticité incidente (pour une polarisation incidente de  $45^\circ$ ). A gauche, polarisation de l'onde réfléchie ; à droite, ellipticité de l'onde réfléchie.

Supposons que le champ magnétique de retournement ne soit pas le même pour les deux couches. C'est souvent le cas en pratique, les raisons pouvant être une différence d'épaisseur ou une différence de qualité... On observe alors un cycle d'hystérésis à "deux sauts" avec deux champs coercitifs correspondants au renversement successif de l'aimantation de chacune des deux couches (voir Figure 5).

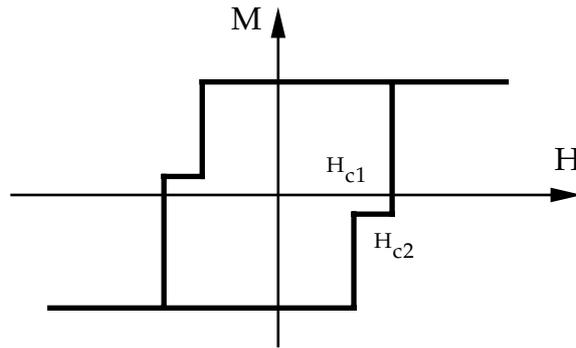


Figure 5 : exemple de cycle d'hystérésis à deux sauts et deux champs coercitifs sur un système de bicouche magnétique.

La Figure 6 montre la différence de polarisation de l'onde réfléchie entre l'état saturé où l'aimantation des deux couches est orientée vers le " haut " (abrégé par " Up-Up ") et l'état " Down-Up " (correspondant à un retournement de l'aimantation de la couche supérieure). Si l'on trace une coupe à angle d'incidence fixé de  $84^\circ$  (Figure 6b) on observe un signal dépendant de l'ellipticité de l'onde incidente qui varie de  $0^\circ$  à  $0.1^\circ$  puis redescend à  $0^\circ$ . La Figure 7 montre la différence de polarisation de l'onde réfléchie entre l'état saturé et l'état " Up-Down " (correspondant à un retournement de l'aimantation de la couche inférieure). La coupe à angle d'incidence fixe de  $84^\circ$  (Figure 7b) part d'une valeur négative, augmente jusqu'à  $0.05^\circ$  puis redevient négatif.

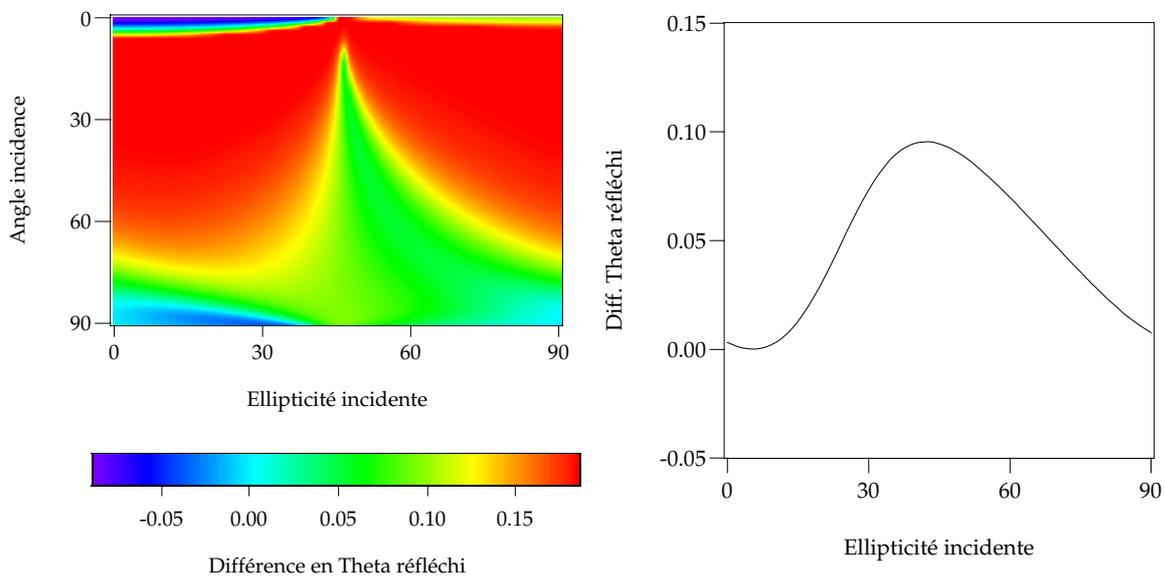


Figure 6 différence de la polarisation de l'onde réfléchie sur un système MO(5nm)/Al(5nm)/MO(5nm) entre le cas où les deux couches sont saturées magnétiquement " up " et le cas où la première couche s'est retournée en position " down ". A droite, coupe pour un angle d'incidence de  $84^\circ$ .

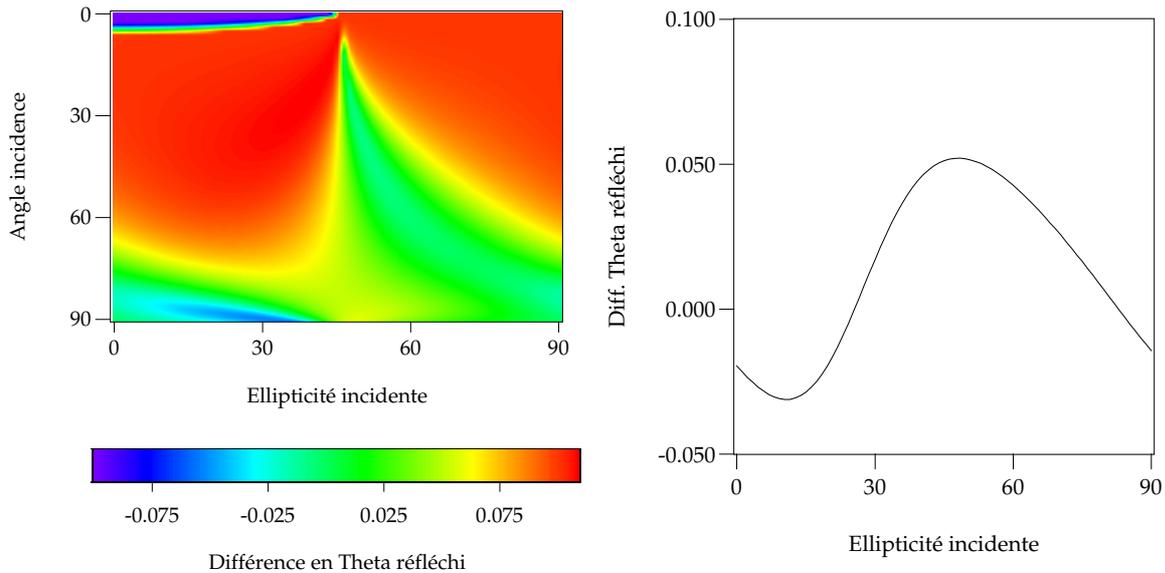


Figure 7 : différence de la polarisation de l'onde réfléchi sur un système MO(5nm)/Al(5nm)/MO(5nm) entre le cas où les deux couches sont saturées magnétiquement " up " et le cas où la deuxième couche s'est retournée en position " down ". A droite, coupe pour un angle d'incidence de 84°.

Si nous comparons les deux situations des Figure 6 et Figure 7 nous constatons que la détermination de la configuration magnétique est sans ambiguïté : il y a changement du signe du signal. Cela est rendu possible par le choix judicieux de l'angle d'incidence.

Ce type de considération s'applique à de nombreux autres systèmes. On obtient qualitativement le même type de résultats dans le cas de l'absence d'espaceur non magnétique.

Dans le cas d'une couche magnétique simple, il serait par exemple aussi facile de distinguer entre des configurations où une partie de la couche n'est pas magnétique ou bien dans le cas où l'aimantation est dans le plan (voir Figure 8). Les résultats sont qualitativement les mêmes (pour un angle d'incidence bien choisi) que ceux présentés sur les Figure 6 et Figure 7. En pratique cependant, on n'observe que rarement de très grandes inhomogénéités d'aimantations dans des couches simples.

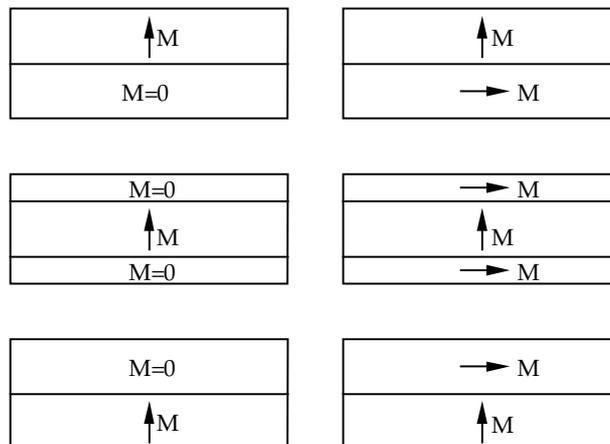


Figure 8 : exemples de configurations magnétiques non homogènes dans une couche mince simple.

De plus, nous avons vérifié qu'une variation des indices optiques dans une marge de plus ou moins 20% ne donne pas de changements quantitatifs importants. Cette propriété est intéressante dans le sens où elle permet de s'affranchir d'une détermination très précise des caractéristiques optiques du système étudié<sup>1</sup>.

En conclusion, il semble tout à fait raisonnable d'envisager des mesures de magnéto-optiques résolues en profondeur. Cela est d'autant plus intéressant que les équipements de magnéto-optique sont des équipements légers (comparativement aux neutrons ou aux rayons X) et ne demandent que des investissements modestes. Cependant des handicaps subsistent. Les longueurs d'onde visibles sont très grandes et rendent les résolutions à grands vecteurs de diffusion  $\mathbf{q}$  inaccessibles. Par ailleurs, les effets magnétiques sont très faibles et rendront les mesures expérimentalement délicates. L'interaction neutron-matière a aussi l'avantage d'être théoriquement beaucoup plus simple à traiter que l'interaction onde électromagnétique-lumière. De plus, les indices optiques peuvent dépendre grandement de la qualité ou de la structure des films minces, alors que les longueurs de diffusion nucléaires sont des constantes immuables.

Une autre approche de l'étude des films minces et des interfaces est la génération de second harmonique (Straub, 1996 ; Rasing, 1997). Cette technique est en plein développement et semble très prometteuse.

### ***F. Parallèle entre les techniques magnéto-optiques et de réflectivité de neutrons.***

Comme cela a déjà été évoqué, les deux techniques de réflectivité de neutrons polarisés et de magnéto-optique sont très similaires. Dans ces deux techniques, on observe la modification de la polarisation de l'onde incidente en fonction de l'angle d'incidence ou du champ magnétique appliqué.

La Figure 9 illustre le parallèle entre les deux formalismes. Une différence importante apparaît au niveau du potentiel d'interaction entre l'onde incidente et l'aimantation. Dans le cas des neutrons, le potentiel d'interaction est calculable exactement. De plus, l'interaction magnétique est du même ordre de grandeur que l'interaction nucléaire. Dans le cas des ondes lumineuses, il est impossible (ou très difficile) de calculer le potentiel d'interaction car il dépend de détails microscopiques du système. En général, l'interaction magnétique est introduite par le biais d'un tenseur de permittivité non diagonal dont les éléments hors diagonaux permettent de rendre compte de l'interaction magnétique de manière phénoménologique.

Les équations de propagation des neutrons et des ondes électromagnétiques peuvent toutes les deux se mettre sous la forme d'une équation de Helmholtz. Dans le cas des neutrons, l'équation de propagation est donnée par l'équation de

---

<sup>1</sup> Il est cependant possible de déterminer expérimentalement de manière précise les caractéristiques optiques des matériaux du système.



## **G. Conclusion.**

Dans ce chapitre nous avons présenté un formalisme nous permettant de calculer la réponse magnéto-optique d'un système magnétique en couches minces quelconque basé sur les travaux de (Mansuripur, 1990).

Nous avons utilisé ces modèles pour présenter une nouvelle méthode permettant de déterminer la direction vectorielle de l'aimantation dans des films minces sans avoir à effectuer une rotation du champ magnétique extérieur appliqué (ce qui pose en général un problème pratique). La méthode présentée utilise des mesures avec un analyseur tournant et est basée sur la différence des mesures entre deux états magnétiques antisymétriques.

Nous avons par ailleurs montré qu'à partir d'une connaissance des paramètres optiques d'un système en couches minces il est possible de déterminer des profils d'aimantation résolus en profondeur dans des couches minces. Nous proposons une première méthode basée sur une analyse tournante qui est une extension naturelle de la technique permettant de déterminer des aimantations vectorielles développée auparavant. Nous avons aussi exploré de manière plus systématique les possibilités ouvertes dans le cas où on peut varier d'autres paramètres : l'angle d'incidence, l'ellipticité de l'onde incidente, soit éventuellement un autre paramètre. Dans le cas de bicouches magnétiques, nous avons montré qu'il existe une " zone de travail " où l'on peut s'affranchir des valeurs absolues des paramètres optiques et où les signes individuels des aimantations sont donnés par le signe des variations des paramètres optiques de l'onde réfléchie.

## *Chapitre 3*

# ***Détermination de profils d'aimantation dans des multicouches magnétiques soumises à des déformations mécaniques.***

<b>III. Détermination de profils d'aimantation dans des multicouches magnétiques soumises à des déformations mécaniques.</b>	<b>117</b>
<b>A. Les anisotropies magnétiques.</b>	<b>117</b>
1. Energie magnéto-cristalline.	117
2. Energie d'anisotropie de forme.	118
3. Energie magnéto-élastique.	119
4. Relations entre les constantes magnéto-élastiques et les constantes de magnétostriction.	121
5. Comportement magnétique de couches minces soumises à des contraintes de déformation.	122
<b>B. Profils de constantes magnéto-élastiques dans des couches simples de nickel.</b>	<b>123</b>
1. Détermination de profils d'aimantation dans des couches simples de nickel soumises à des déformations mécaniques.	125
2. Modélisation des résultats par un gradient de constantes ME.	130
3. Conclusion.	133
<b>C. Création de couplages magnétiques quadratiques dans des systèmes de tricouches par application de déformations mécaniques.</b>	<b>133</b>
1. Système d'alliage nickel-fer à composition modulée.	134
2. Effet de déformations mécaniques sur des systèmes de bicouches avec espaceur non magnétique.	137
<b>D. Conclusion.</b>	<b>141</b>

### III. Détermination de profils d'aimantation dans des multicouches magnétiques soumises à des déformations mécaniques.

L'aimantation de systèmes magnétiques peut-être modifiée par l'application de contraintes de déformation mécaniques. Technologiquement, on souhaite en général disposer de systèmes insensibles aux déformations mécaniques.

Cependant le comportement sous contraintes de couches minces s'écarte du comportement des matériaux massifs. Nous avons utilisé la réflectivité de neutrons polarisés pour déterminer des profils d'aimantation dans des couches minces magnétiques soumises à des contraintes.

Nous nous sommes ensuite intéressé à la création de structures magnétiques "non conventionnelles". Nous avons étudié la possibilité de moduler la direction de l'aimantation dans des systèmes de couches minces en fabriquant des structures dont les propriétés magnéto-élastiques sont modulées en profondeur. Le comportement sous contraintes mécaniques de telles structures a été étudié par réflectivité de neutrons polarisés.

#### A. Les anisotropies magnétiques.

Deux types principaux d'interaction sont à l'origine de l'anisotropie magnétique :

- l'interaction spin-orbite couple l'aimantation au réseau cristallin.
- l'interaction dipolaire (de longue portée) est à l'origine de l'anisotropie de forme

Les paragraphes suivants décrivent les différents types d'anisotropie et la forme de l'énergie libre que l'on peut leur associer (Herpin, 1968).

##### 1. Energie magnéto-cristalline.

Soit  $\mathbf{a}_1, \mathbf{a}_2, \mathbf{a}_3$  les cosinus directeurs de l'aimantation par rapport aux axes cristallins d'un cristal cubique (cas du fer et du nickel). Phénoménologiquement on peut développer l'énergie libre suivant les puissances de ces cosinus directeurs. Les propriétés de symétrie  $E(M)=E(-M)$  imposent que le développement soit pair par rapport à la direction de l'aimantation (i.e. les  $\mathbf{a}_i$  apparaissent en puissances paires) :

$$E_{MC} = K_1 (\mathbf{a}_1^2 \mathbf{a}_2^2 + \mathbf{a}_2^2 \mathbf{a}_3^2 + \mathbf{a}_3^2 \mathbf{a}_1^2) + K_2 \mathbf{a}_1^2 \mathbf{a}_2^2 \mathbf{a}_3^2 \quad (\text{III.2})$$

N.B. : les termes d'ordre 2 disparaissent car  $\mathbf{a}_1^2 + \mathbf{a}_2^2 + \mathbf{a}_3^2 = 1$ .

Dans le cas des cristaux hexagonaux (cas du cobalt) ou quadratiques, on peut développer l'énergie en fonction de l'angle  $\mathbf{q}$  de l'aimantation par rapport à l'axe  $\mathbf{c}$  suivant les harmoniques sphériques :

$$E_{MC} = K_1 \sin^2 \mathbf{q} + K_2 \sin^4 \mathbf{q} \quad (\text{III.4})$$

Les coefficients  $K_1$  et  $K_2$  sont appelés *constantes d'anisotropie magnéto-cristalline* du premier ordre et du deuxième ordre respectivement. La pratique montre que ce développement rend très bien compte du comportement magnétique des matériaux avec un nombre de termes limité à seulement deux voire un terme. Les valeurs numériques de quelques unes de ces constantes sont données dans le Tableau 1 à la température ambiante<sup>1</sup>.

	K1 (J/m <sup>3</sup> )	K2 (J/m <sup>3</sup> )
Fe	48100	12000
Ni	-5480	2470
Co	412000	143000

Tableau 1 : valeurs des constantes d'anisotropie des matériaux magnétiques usuels.

Les valeurs numériques du Tableau 1 appellent des commentaires. La première constante d'anisotropie du fer est positive : l'axe de facile aimantation est suivant les axes [100]. La première constante d'anisotropie du nickel est négative : l'axe de facile aimantation du nickel est suivant les directions [111]. Les constantes d'anisotropie du cobalt sont extrêmement grandes par rapport à celles du fer et du nickel. De manière générale, les axes des cristaux hexagonaux ou quadratiques définissent des anisotropies magnétiques très marquées. Ces remarques sont illustrées par la Figure 1.

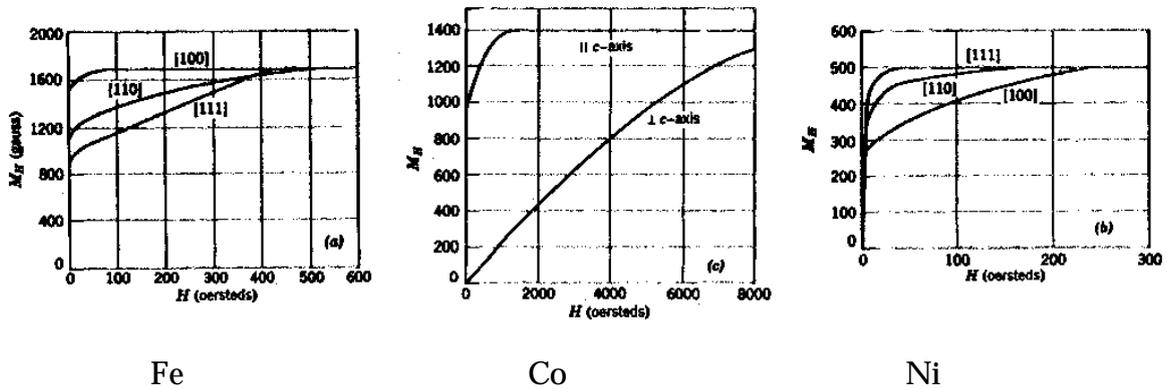


Figure 1 : courbes d'aimantation du fer, du cobalt et du nickel massifs dans différentes directions cristallographiques (d'après Morrish, 1965).

## 2. Energie d'anisotropie de forme.

Le champ démagnétisant d'un solide d'aimantation  $\mathbf{M}$  (de forme ellipsoïdale) est donné par :

$$\mathbf{H}_d = -\mathbf{D} \cdot \mathbf{M}, \quad (\text{III.6})$$

où  $\mathbf{D}$  est le tenseur démagnétisant.

Dans le cas d'une sphère,  $\mathbf{D}$  est diagonal et  $D_{xx} = D_{yy} = D_{zz} = 1/3$ .

Dans le cas d'une couche mince, si (Oz) est la direction perpendiculaire à la couche,

<sup>1</sup> La dépendance en température de ces constantes est non triviale.

$D_{xx} = D_{yy} = 0$  et  $D_{zz} = 1$ .

L'énergie d'interaction d'un aimant permanent d'aimantation  $\mathbf{M}$  avec son champ démagnétisant est de la forme :

$$E = -\frac{1}{2} m_0 \mathbf{M} \cdot \mathbf{H} = \frac{1}{2} m_0 \mathbf{M} \cdot (\mathbf{D} \cdot \mathbf{M}), \quad (\text{III.8})$$

Le facteur  $\frac{1}{2}$  est introduit pour ne pas compter les interactions entre dipôles deux fois : l'expression classique sans le facteur  $\frac{1}{2}$  compterait chaque dipôle une fois comme source du champ et une fois comme aimant dans le champ.

Dans le cas d'une couche mince on obtient :

$$E_{dip} = \frac{1}{2} m_0 M^2 \cos^2 \mathbf{q} \quad (\text{III.10})$$

où  $\mathbf{q}$  est l'angle de l'aimantation par rapport à la normale à la couche mince.

### 3. Energie magnéto-élastique.

L'énergie magnéto-élastique est due à l'interaction entre l'aimantation et les déformations mécaniques du réseau cristallin. Pour exprimer la dépendance de l'énergie d'anisotropie due aux déformations, on peut développer l'énergie en série de Taylor sur les composantes du tenseur de déformation :

$$E = E_0 + \sum_{i \geq j} \left( \frac{\mathcal{I}E}{\mathcal{I}e_{ij}} \right)_0 e_{ij} + \dots \quad (\text{III.12})$$

où les  $e_{ij}$  désignent les composantes du tenseur de déformation.  $E_0$  doit satisfaire la symétrie cubique mais les termes  $(\mathcal{I}E/\mathcal{I}e_{ij})_0 e_{ij}$  peuvent avoir une symétrie plus basse car ils se réfèrent au cristal déformé.

Si on se restreint aux termes du premier ordre en déformation  $e$ , dans le cas d'un cristal cubique, les considérations de symétrie donnent:

$$\begin{aligned} \mathcal{I}E/\mathcal{I}e_{xx} &= B_1 \mathbf{a}_1^2; & \mathcal{I}E/\mathcal{I}e_{xy} &= B_2 \mathbf{a}_1 \mathbf{a}_2 \\ \mathcal{I}E/\mathcal{I}e_{yy} &= B_1 \mathbf{a}_2^2; & \mathcal{I}E/\mathcal{I}e_{yz} &= B_2 \mathbf{a}_2 \mathbf{a}_3 \\ \mathcal{I}E/\mathcal{I}e_{zz} &= B_1 \mathbf{a}_3^2; & \mathcal{I}E/\mathcal{I}e_{zx} &= B_2 \mathbf{a}_3 \mathbf{a}_1 \end{aligned} \quad (\text{III.14})$$

où les constantes  $B_1$  et  $B_2$  sont appelées *constantes de couplage magnéto-élastique (ME)*

L'énergie magnéto-élastique se met donc sous la forme :

$$E_{ME} = B_1 (\mathbf{a}_1^2 e_{xx} + \mathbf{a}_2^2 e_{yy} + \mathbf{a}_3^2 e_{zz}) + B_2 (\mathbf{a}_1 \mathbf{a}_2 e_{xy} + \mathbf{a}_2 \mathbf{a}_3 e_{yz} + \mathbf{a}_3 \mathbf{a}_1 e_{zx}). \quad (\text{III.16})$$

Dans le cas des cristaux hexagonaux :

$$E_{ME} = B_1 (\mathbf{a}_1^2 e_{xx} + \mathbf{a}_2^2 e_{yy} + 2\mathbf{a}_1 \mathbf{a}_2 e_{xy}) + B_2 e_{zz} (1 - \mathbf{a}_3^2) + B_3 (e_{xx} + e_{yy}) (1 - \mathbf{a}_3^2) + B_4 (\mathbf{a}_2 \mathbf{a}_3 e_{23} + \mathbf{a}_1 \mathbf{a}_3 e_{13}) \quad (\text{III.18})$$

	B <sub>1</sub> (J/m <sup>3</sup> )	B <sub>2</sub> (J/m <sup>3</sup> )
Fe	-2.9x10 <sup>6</sup>	3.2x10 <sup>6</sup>
Ni	6.2x10 <sup>6</sup>	9x10 <sup>6</sup>

Tableau 2 : valeurs numériques des constantes magnéto-élastiques pour des cristaux de fer et de nickel.

On peut remarquer que les valeurs des coefficients de couplage magnéto-élastique sont très élevées et donc mêmes de faibles déformations peuvent apporter une contribution non négligeable à l'énergie d'anisotropie.

Le cas du nickel est intéressant parce que ses constantes d'anisotropie sont assez faibles alors que ses constantes magnéto-élastiques sont assez grandes. De ce fait, le nickel est un matériau particulièrement sensible aux déformations mécaniques extérieures. La Figure 2 montre l'évolution de la direction de facile aimantation d'un cristal de nickel pour des déformations mécaniques croissantes. Le tenseur de déformation que l'on considère dans ce cas est de la forme :

$$\tilde{\epsilon} = \begin{pmatrix} e_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -e_{xx} \end{pmatrix} \quad (\text{III.20})$$

C'est-à-dire que l'on considère une déformation d'élongation suivant la direction (Ox) avec en même temps une contraction suivant (Oz).

Pour un cristal de nickel non soumis à des contraintes, la direction de facile aimantation est la direction [111]. Lorsque la déformation d'élongation augmente, la direction de facile aimantation pivote dans le plan (yOz) (direction perpendiculaire à la contrainte appliquée car  $B_1 < 0$ ). Puis pour des déformations plus élevées, la direction de facile aimantation s'aligne suivant la direction (Oz).

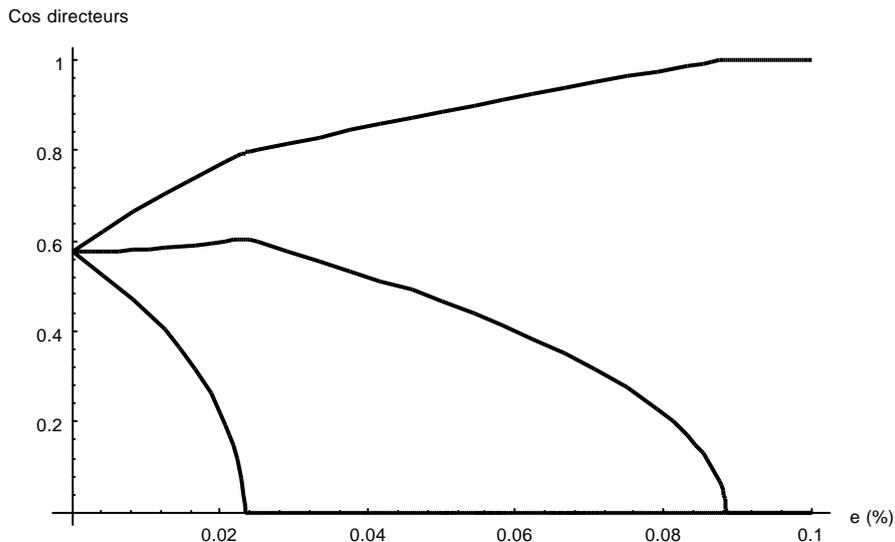


Figure 2 : évolution de la direction de facile aimantation d'un cristal de nickel (donnée par ses cosinus directeurs) en fonction de la déformation mécanique appliquée .

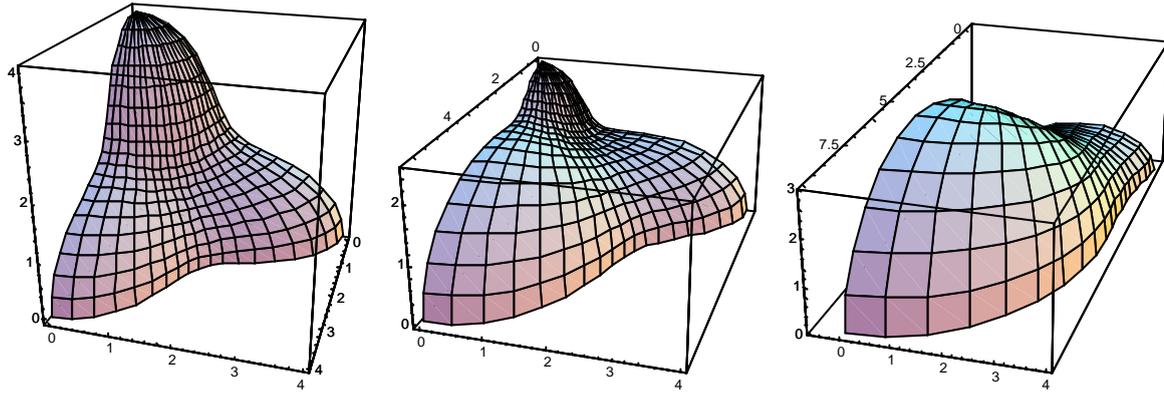


Figure 3 : évolution de l'énergie libre d'un cristal de nickel (unités arbitraires) en fonction des différentes directions de l'espace. Dans le cas non contraint (a), le minimum d'énergie est situé dans la direction [111]. Lorsque l'on applique une déformation de 0.02%, la direction de facile aimantation pivote dans le plan (yOz) (cas b). A partir d'une déformation de 0.08% (cas c), la direction de facile aimantation est alignée suivant (Oz).

#### 4. Relations entre les constantes magnéto-élastiques et les constantes de magnétostriction.

Bien que les constantes de couplage magnéto-élastiques soient les grandeurs physiques fondamentales, les analyses expérimentales introduisent souvent les *constantes de magnétostriction*. Celles-ci sont introduites dans l'équation de magnétostriction (du premier ordre) : (Becker et Döring, 1939)

$$\frac{dl}{l} = \frac{3}{2} I_{100} \left( a_1^2 b_1^2 + a_2^2 b_2^2 + a_3^2 b_3^2 - \frac{1}{3} \right) + 3 I_{111} (a_1 a_2 b_1 b_2 + a_1 a_3 b_1 b_3 + a_2 a_3 b_2 b_3) \quad (\text{III.22})$$

où les  $a_i$  sont les cosinus directeurs de l'aimantation, les  $b_i$  sont les cosinus directeurs de la direction dans laquelle la déformation  $dl$  est mesurée ;  $I_{100}$  et  $I_{111}$  sont les valeurs à saturation de la magnétostriction longitudinale dans les directions [100] et [111]. Les constantes magnéto-élastiques et les constantes de magnétostriction sont reliées par (Kittel, 1949) :

$$\begin{aligned} I_{100} &= -\frac{2}{3} \frac{B_1}{c_{11} - c_{12}} \\ I_{111} &= -\frac{1}{3} \frac{B_2}{c_{44}} \end{aligned} \quad (\text{III.24})$$

où les  $c_{ij}$  sont les composantes du tenseur de module élastique.

Si on suppose que la magnéto-striction est isotrope,  $I_{100} = I_{111}$ . On a alors :

$$\frac{dl}{l} = \frac{3}{2} I \left( \cos^2 q - \frac{1}{3} \right) \quad (\text{III.26})$$

où  $q$  est la direction entre l'aimantation et la direction de la déformation. L'énergie magnéto-élastique est donnée par :

$$E_{ME} = \frac{3}{2} IT \sin^2 q \quad (\text{III.28})$$

où T est la tension appliquée.

Dans le cas d'alliages de matériaux ferromagnétiques, les constantes d'anisotropie varient évidemment en fonction de la composition de l'alliage. La Figure 4 montre l'évolution de la constante d'anisotropie des alliages  $Ni_xFe_{1-x}$  en fonction de la concentration  $x$  en nickel. Cette constante change de signe lorsque l'on passe d'une composition à dominante en fer vers du nickel pur. Elle s'annule autour de 70%, elle reste très faible autour de  $x = 80\%$  correspondant à la composition du permalloy.

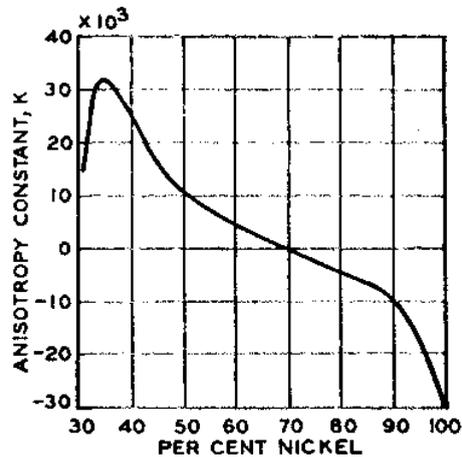


Figure 4 : évolution de la constante d'anisotropie des alliages  $Ni_xFe_{1-x}$  à la température ambiante. La constante d'anisotropie s'annule autour de  $x = 70\%$  (adapté de Kittel, 1949)

La Figure 5 montre l'évolution de la constante de magnétostriction des alliages  $Ni_xFe_{1-x}$ , celle-ci s'annule pour  $x = 82\%$ .

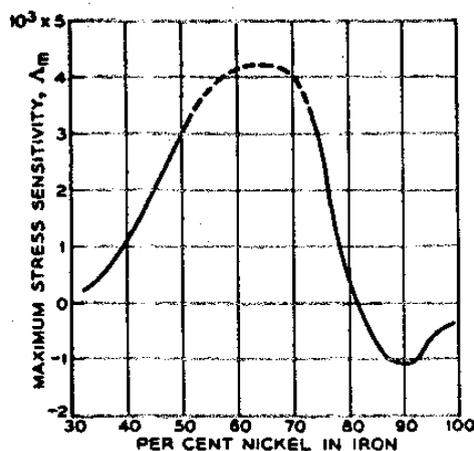


Figure 5 : évolution de la constante de magnétostriction des alliages  $Ni_xFe_{1-x}$  en fonction de la concentration  $x$  en nickel (adapté de Bozorth, 1951)

## 5. Comportement magnétique de couches minces soumises à des contraintes de déformation.

Dans le cas de couches minces d'alliages de nickel, pour des épaisseurs supérieures à 20 nm, l'aimantation reste toujours plane. Nous adoptons un modèle simple un

modèle simple à un paramètre pour décrire l'énergie magnéto-élastique : nous nous restreignons à un développement du premier ordre sur les harmoniques sphériques. L'énergie magnéto-élastique prend la forme :

$$E_{me} = B e \sin^2(\mathbf{j} - \mathbf{q}_{me}) \quad (\text{III.30})$$

où  $\mathbf{q}_{me}$  est la direction de la déformation  $e$  appliquée et  $\mathbf{j}$  est la direction de l'aimantation.

Le comportement des couches minces d'alliage nickel-fer soumises à des contraintes de déformation est résumé sur la Figure 6. On rappelle que la constante magnéto-élastique des alliages  $\text{Ni}_x\text{Fe}_{1-x}$  change de signe pour  $x = 0.8$  ( $B$  est positive pour  $x < 0.8$  et négative pour  $x > 0.8$ ). C'est pourquoi pour des alliages à composante dominante en fer, une contrainte d'élongation crée un axe d'anisotropie parallèle à la contrainte d'élongation, au contraire une déformation de contraction crée un axe d'anisotropie perpendiculaire à la déformation appliquée. C'est la situation inverse dans les alliages à dominante de nickel.

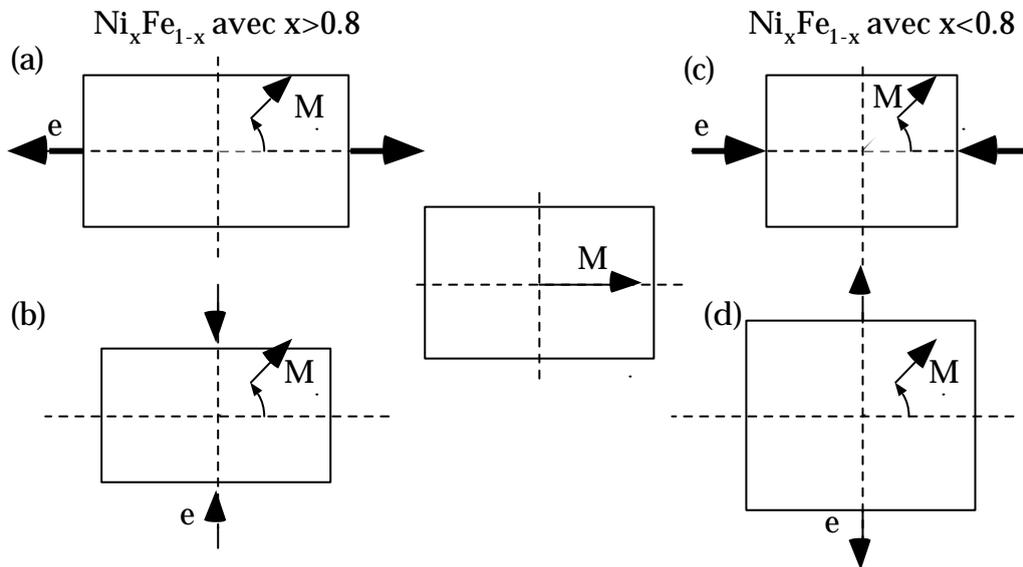


Figure 6 : comportement de l'aimantation de couches minces d'alliage nickel-fer de différentes compositions pour différentes contraintes appliquées. Au centre, on part d'une couche avec une aimantation "horizontale" pas de contrainte appliquée. Colonne de gauche (cas (a) et (b)) alliages  $\text{Ni}_x\text{Fe}_{1-x}$  avec  $x > 0.8$ , l'aimantation tourne perpendiculairement à la direction d'une contrainte d'élongation ou parallèlement à une contrainte de contraction. Colonne de droite (cas (c) et (d)), alliages  $\text{Ni}_x\text{Fe}_{1-x}$  avec  $x < 0.8$ , l'aimantation tourne perpendiculairement à la direction d'une contrainte de contraction ou parallèlement à une contrainte d'élongation.

## B. Profils de constantes magnéto-élastiques dans des couches simples de nickel.

Nous nous sommes intéressés au comportement magnétique de couches simples de nickel soumises à des déformations mécaniques. Des études récentes (Song, 94) ont montré que dans des films de  $\text{Ni}_x\text{Fe}_{1-x}$  les constantes magnéto-élastiques peuvent augmenter considérablement pour des films minces (environ 10 nm) et cela même pour la composition du permalloy où les coefficients ME sont normalement nuls. Ces

résultats ont été interprétés en considérant un coefficient ME comme la somme d'une contribution volumique plus une contribution surfacique décroissant comme l'inverse de l'épaisseur du film.

$$B_{eff}(z) = B_{bulk} + B_{surf} / (z - z_0) \quad (III.32)$$

C'est une forme similaire à la forme proposée par Néel pour décrire les anisotropies de surface. Le décalage  $z_0$  pourrait être dû à la rugosité d'interface entre le film et le substrat.

Nous avons proposé de vérifier que pour des films plus épais, il existe effectivement un gradient  $B(z)$  de constante ME en fonction de la profondeur dans le film.

S'il existe effectivement un tel gradient, les différentes parties du film seront plus ou moins sensibles aux contraintes appliquées. Dans le cas où ce gradient est important, il est possible que malgré la forte énergie d'échange on puisse observer une rotation inhomogène de l'aimantation en profondeur en fonction de la contrainte appliquée, c'est-à-dire à créer un gradient de direction de l'aimantation.

La réflectivité de neutrons polarisés avec analyse de polarisation est un outil qui permet de mesurer des profils d'aimantation. La Figure 7 illustre la sensibilité de la technique à des effets de rotation inhomogène de l'aimantation. Les deux courbes en pointillés sont les courbes de réflectivité de spin-flip obtenues sur une couche de nickel de 40 nm pour des aimantations faisant respectivement des angles de  $20^\circ$  et  $30^\circ$  par rapport à l'axe de quantification. La courbe en trait plein montre la courbe obtenue dans le cas intermédiaire où l'aimantation n'est pas homogène dans l'épaisseur de la couche mais effectue une rotation de  $20^\circ$  à  $30^\circ$  par rapport au champ appliqué dans l'épaisseur de la couche. On constate que ces trois cas sont très faciles à distinguer expérimentalement en réflectivité de neutrons polarisés.

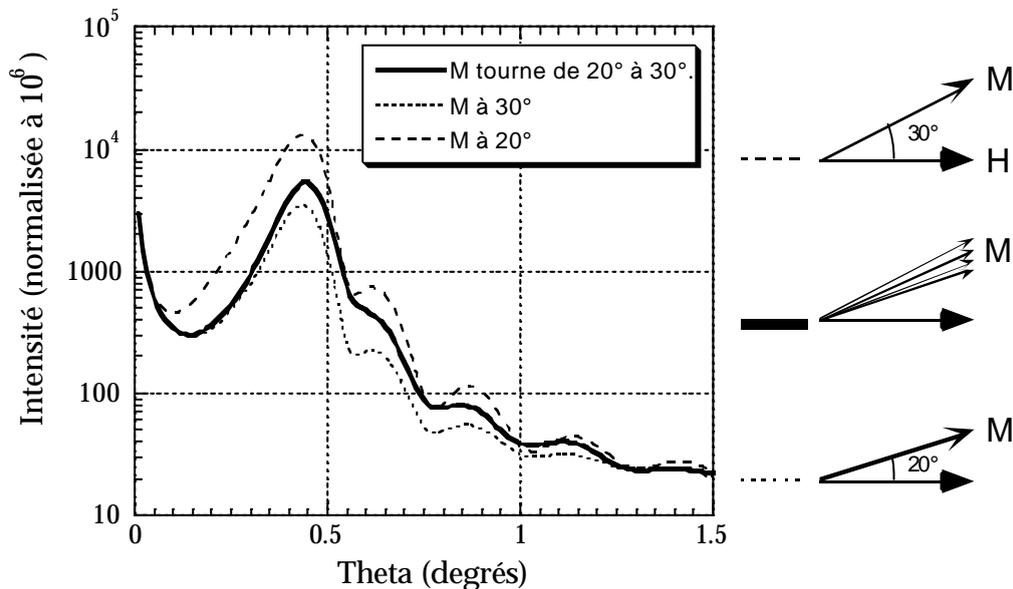


Figure 7 : comparaison du signal de spin-flip entre différentes configurations de l'aimantation d'une couche de 40 nm de nickel. Les deux courbes en pointillé décrivent des situations où l'aimantation fait un angle fixe ( $20^\circ$  et  $30^\circ$ ) homogène dans l'épaisseur de la couche par rapport au champ extérieur appliqué. Le trait plein est un cas intermédiaire où l'aimantation tourne de  $20^\circ$  à  $30^\circ$  dans l'épaisseur de la couche.

### 1. Détermination de profils d'aimantation dans des couches simples de nickel soumises à des déformations mécaniques.

Afin de vérifier si les effets d'interface influent sur les propriétés magnéto-élastiques des films minces, nous avons déterminé des profils d'aimantation dans des couches de nickel soumises à des déformations mécaniques. Les épaisseurs des films étudiés varient de 20 à 100 nm.

Les couches de nickel ont été déposées par pulvérisation cathodique sur des substrats de verre ou de silicium. Les films ont été déposés à la température ambiante sous une pression d'argon de  $5 \times 10^{-3}$  et une vitesse de 25 nm par minute. Les films obtenus sont polycristallins.

La procédure expérimentale a consisté à appliquer une contrainte mécanique aux films et à observer leur état d'aimantation. Les contraintes sont obtenues par flexion mécanique du substrat (voir Figure 8). Les contraintes sont exprimées en déformation relative et sont déterminées par la déformation géométrique du substrat. Nous supposons que la déformation du substrat est transmise au film mince. On peut montrer que la déformation est égale à  $DL/L = a / 2 R$  où  $L$  est la longueur de l'échantillon,  $a$  est son épaisseur et  $R$  est la courbure de l'échantillon.

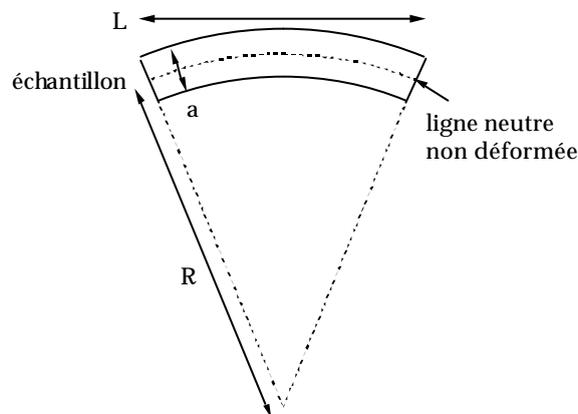


Figure 8 : courbure d'un substrat pour induire une déformation mécanique du film mince déposée sur ce substrat.  $L$  est la longueur du substrat,  $a$  son épaisseur et  $R$  la courbure. La " ligne neutre " du substrat est la zone qui ne subit pas de déformation. La déformation relative de la surface est égale à  $DL/L = a / 2 R$ .

Dans le cas du silicium, la limite de déformation avant cassure du substrat est d'environ 0.03% en déformation relative. Dans le cas de substrats de verre, cette limite est d'environ 0.06%. Ces valeurs sont bien inférieures aux limites élastiques des films métalliques.

Des mesures d'effet Kerr montrent l'évolution des cycles d'hystérésis en fonction des déformations appliquées. Dans ces mesures, le champ magnétique est appliqué le long de la direction de la contrainte. Comme cela a été souligné précédemment, dans le cas du nickel, les coefficients ME sont négatifs et donc une déformation d'*élongation* crée un axe facile *perpendiculaire* à la direction de la contrainte appliquée. Au contraire, une déformation de *contraction* crée un axe facile *parallèle* à la direction de la contrainte

appliquée. La Figure 9 montre des mesures par effet Kerr sur un film de nickel déposé sur un substrat de silicium. La déformation de compression a pour conséquence un cycle d'hystérésis plus carré. La déformation d'élongation induit au contraire un cycle d'hystérésis plus arrondi.

Ces cycles m-H nous permettent de calculer les coefficients ME en utilisant la méthode proposée par (O'Handley, 1993). La partie non hystérétique des cycles m-H permet d'estimer un coefficient magnéto-élastique d'environ  $1.2 \times 10^6$  ( $\pm 20\%$ )  $J.m^{-3}$ . (la valeur de l'aimantation absolue en magnéton de Bohr par atome a été obtenue par les mesures de neutrons.) Cette valeur de constante ME est assez inférieure aux valeurs des matériaux massifs ( $6 \times 10^6 J.m^3$ ).

Cependant une des limitations des mesures magnéto-optiques est que bien que les mesures optiques soient typiquement des mesures de surface elles ont tout de même une longueur de pénétration non nulle. On obtient donc une mesure moyennée sur une certaine épaisseur du film. Cet effet peut être décrit en considérant une moyenne des valeurs locales  $B(z)$  sur l'épaisseur  $l$  de l'échantillon (Song, 1994) :

$$B(z) = \frac{\int_0^l g(z)B(z)dz}{\int_0^l g(z)dz}, \quad (33)$$

où  $z$  est la profondeur dans le film et  $g(z)$  est une fonction poids qui peut être mise sous la forme :

$$g(z) = e^{-z/d}, \quad (34)$$

où  $d \approx 20nm$  est l'épaisseur de peau. Les mesures magnéto-optiques ne donnent que des valeurs de surface ou des valeurs moyennes des coefficients ME.

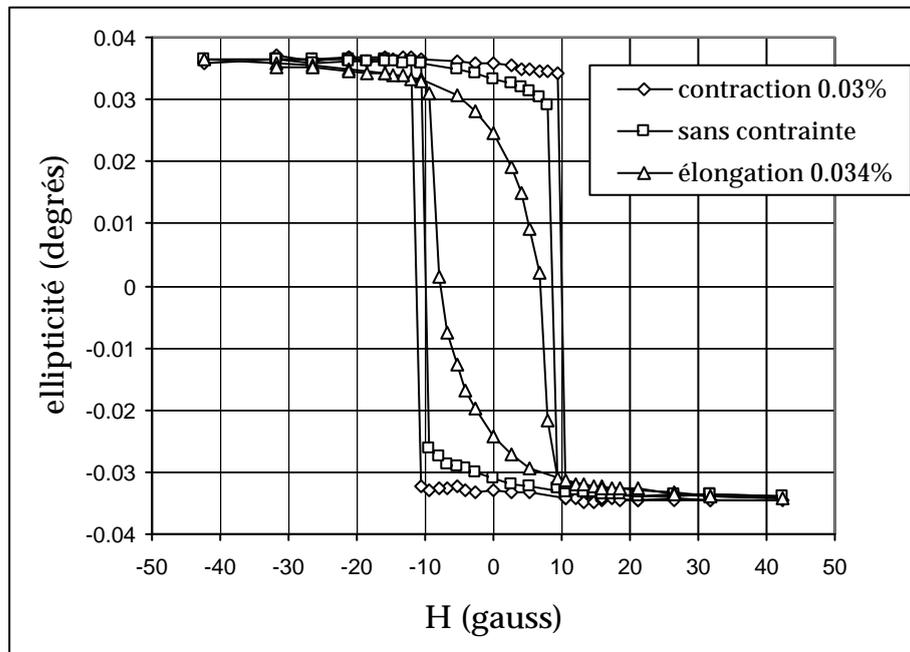


Figure 9 : mesures par effet Kerr de cycles d'hystérésis sur un échantillon de 18 nm de nickel déposé sur silicium pour différentes contraintes appliquées.

Nous avons réalisé des mesures de réflectivité de neutrons polarisés afin de déterminer un profil de constante ME (en fonction de  $z$ ). La procédure expérimentale est la suivante. Afin d'avoir une direction préférentielle de rotation et d'éviter la formation de domaines qui créerait un important signal non spéculaire, nous avons saturé l'échantillon le long d'une direction faisant  $20^\circ$  avec l'axe (Ox) puis diminué le champ jusqu'à 6 G. Les déformations du substrat sont alors appliquées suivant la direction (Oy). Les contraintes appliquées sont de  $3 \times 10^{-4}$  aussi bien en contraction qu'en élongation.

Le champ résiduel de 6 G est appliqué afin d'éviter tout problème de dépolarisation

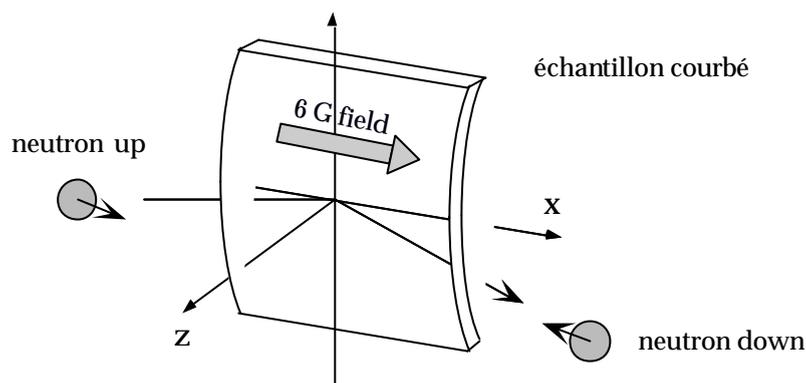


Figure 10 : géométrie de réflexion du faisceau de neutrons polarisés sur l'échantillon contraint.

La Figure 12 montre les courbes expérimentales de réflectivité de neutrons et les résultats des ajustements numériques sur une couche de 40 nm de nickel déposée sur verre. La première étape est d'ajuster les courbes de réflectivité sur l'échantillon non contraint et saturé magnétiquement. Cela permet de déterminer les caractéristiques magnétiques de l'échantillon et de déterminer ce que nous appellerons des couches d' "alliage " entre le substrat et le film et à la surface du film et qui permettent de rendre compte de la rugosité substrat-film ainsi que de la rugosité de la surface ou d'éventuels adsorbats. Dans une deuxième étape le modèle de la couche obtenu à partir de la mesure dans l'état saturé a été divisé en un certain nombre de sous-couches (5 dans notre cas). L'ajustement des courbes de l'échantillon déformé a été obtenu en laissant varier la direction de l'aimantation dans chacune de ces sous-couches.

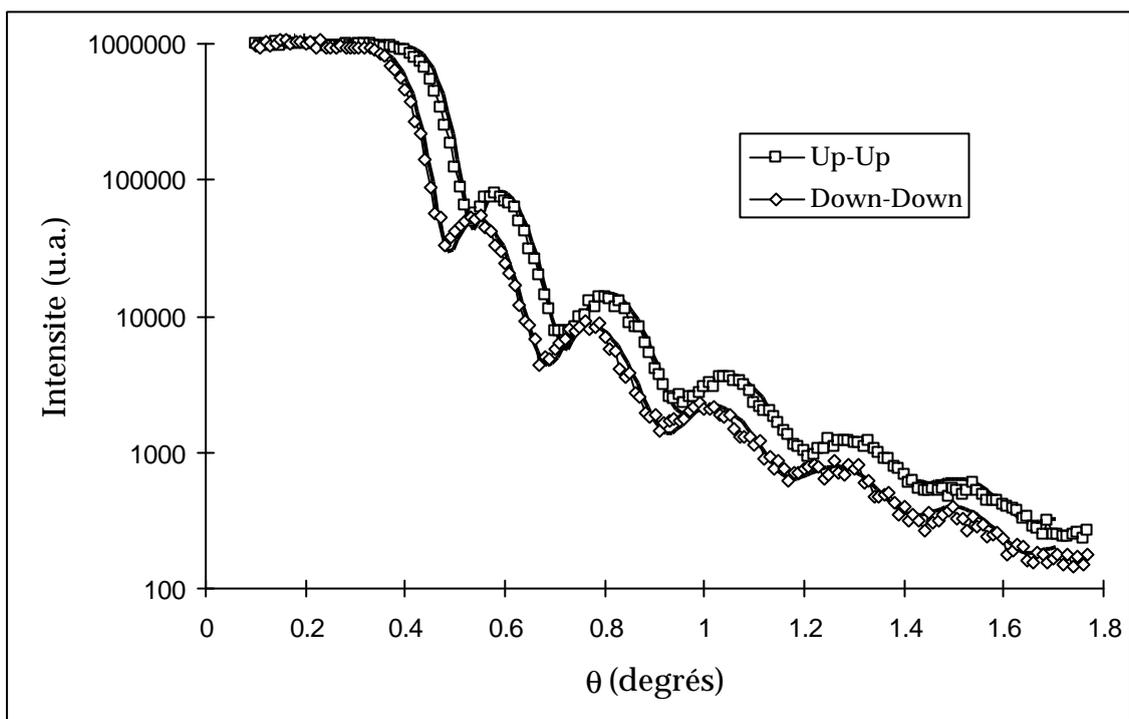


Figure 11 réflectivité d'un échantillon de nickel de 40 nm d'épaisseur non contraint dans un champ magnétique de 100 G. Les ajustements numériques sont tracés en traits gras.

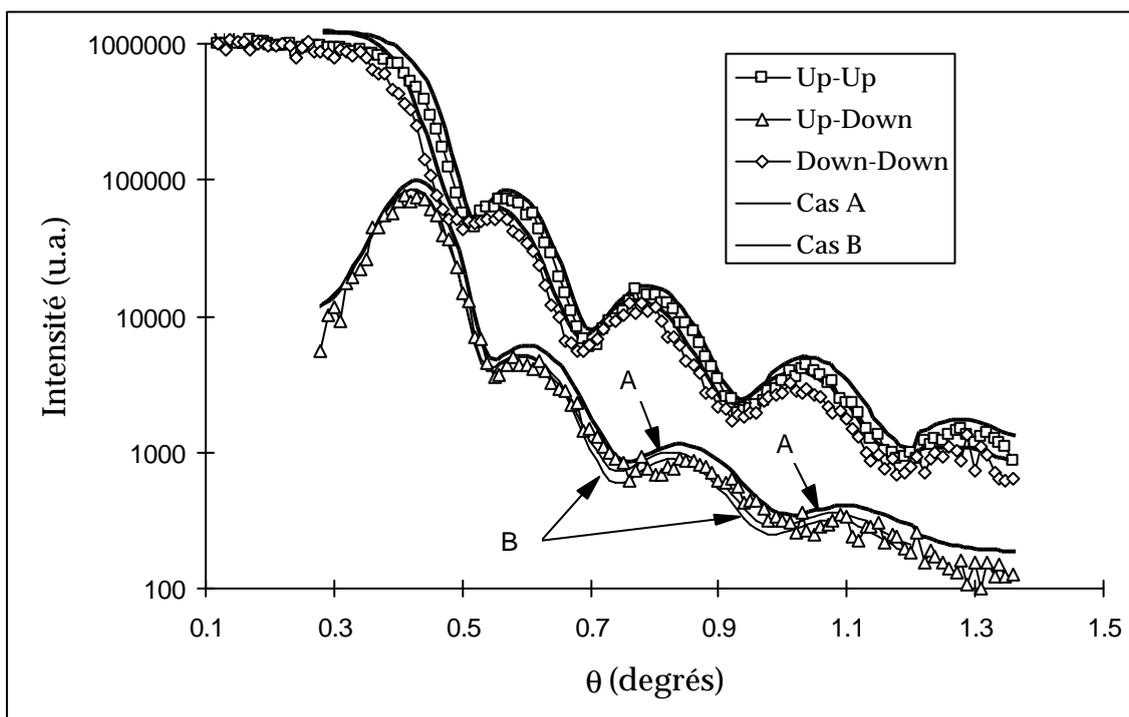


Figure 12 : réflectivité d'un échantillon de nickel d'épaisseur 40 nm soumis à une déformation d'élongation de 0.034%. Les ajustements numériques sont tracés en traits gras.

Les résultats des ajustements numériques ainsi obtenus sont résumés sur la Figure 13 et dans le Tableau 3. Pour le film de 80 nm, la résolution expérimentale ne nous a pas permis de déterminer un profil précis. Ces résultats ne doivent pas être considérés comme des valeurs absolues mais doivent être lus comme des valeurs relatives. Il y a

plusieurs raisons à cela : le champ magnétique peut être mal aligné par rapport à la contrainte appliquée, la valeur de la déformation appliquée est déterminée avec une précision de seulement 10%.

Le point important est que dans les deux cas nous avons observé un gradient de rotation de l'aimantation allant jusqu'à  $10^\circ$  entre les surfaces du film et le milieu du film. Les paramètres de sous-couches internes 2 et 3 du modèle ne varient pas beaucoup.

*N.B.* : on peut aussi remarquer que la saturation des films sous les faibles champs appliqués n'est pas totale. On ne retrouve que  $0.53 \mu_B$  par atome au lieu de la valeur théorique de  $0.6 \mu_B$  par atome à saturation complète. Cela peut être expliqué par une réduction de la densité des films déposés par pulvérisation cathodique par rapport à la valeur théorique de la densité (une diminution de 5% de la densité est courante).

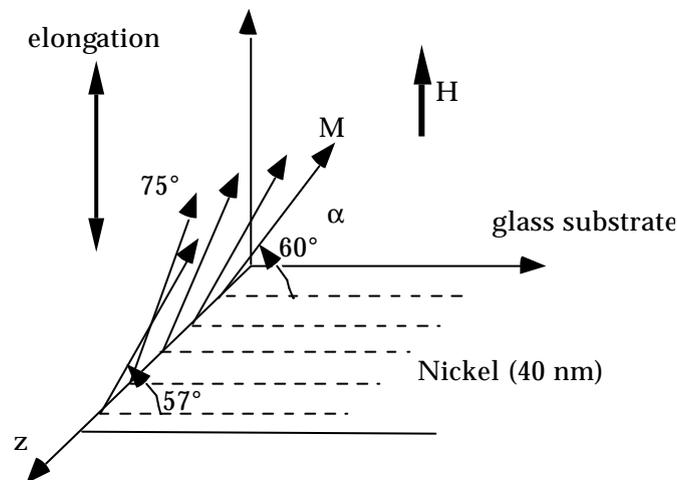


Figure 13 : configuration de l'expérience. Une contrainte d'élongation est appliquée le long du champ magnétique, elle crée un axe facile perpendiculaire au champ appliqué. Les flèches indiquent les directions des aimantations obtenues par l'ajustement des courbes de réflectivité de neutrons.

	couche de nickel de 18 nm déposée sur silicium			couche de 40 nm de nickel déposée sur verre		
	épaisseur (Å)	m ( $\mu_B$ )	$\alpha$ ( $^\circ$ )	épaisseur (Å)	m ( $\mu_B$ )	$\alpha$ ( $^\circ$ )
couche d'alliage	26	0.2	56	40	0.177	62.3
1 <sup>ère</sup> couche de Ni	35	0.53	62	100	0.53	61.7
2 <sup>ème</sup> couche de Ni	38	0.53	65	100	0.53	70
3 <sup>ème</sup> couche de Ni	38	0.53	64	100	0.53	74.4
4 <sup>ème</sup> couche de Ni	35	0.53	57	94.5	0.53	75.3
couche de surface	15	0.37	41	31.3	0.5	56.7

Tableau 3 : résumé des ajustements numériques obtenus sur les courbes de réflectivité mesurées sur des couches de nickel simples. L'angle  $\alpha$  est l'angle entre la direction de l'aimantation et la direction perpendiculaire à la contrainte appliquée.

Pour illustrer la sensibilité de la mesure, deux autres situations expérimentales ont été envisagées. Dans le premier cas (cas A), la direction de l'aimantation de la couche de surface a été tournée de  $20^\circ$ . Sur la Figure 12, cette rotation de l'aimantation de la couche de surface modifie le signal de spin-flip au-delà de  $0.7^\circ$  (voir flèches A). Les effets sur les courbes de non spin-flip sont plus difficiles à observer. Le rapport de des

intensités  $I^{++}$  et  $I^-$  en fonction de l'angle d'incidence est tracé sur la Figure 14. La courbe en trait gras correspond au meilleur fit obtenu. La courbe correspondant à une aimantation de surface tournée de  $20^\circ$  est tracée en trait fin. En dessous de  $0.7^\circ$ , on n'observe pas de différence par rapport au meilleur ajustement. Au delà de  $0.8^\circ$ , un écart significatif apparaît. Le rapport  $I^{++}/I^-$  est sous-estimé par rapport aux points expérimentaux.

N.B. : on observe bien que pour des variations sur des épaisseurs fines les changements apparaissent à "grands  $q$ ".

Un autre cas a été envisagé (cas B) : celui d'une rotation homogène de l'aimantation dans l'épaisseur de la couche. Sur la Figure 12, on observe que dans ce cas, on sous-estime le signal de spin-flip au-delà de  $0.7^\circ$  (voir flèches B). Sur la Figure 14 (le cas B est représenté par un trait fin pointillé), on observe qu'il y a une sous-estimation "importante" du rapport  $I^{++}/I^-$  dans la zone  $0.4 - 0.8^\circ$ . On constate que pour des changements touchant l'ensemble de la couche, des modifications du signal de réflectivité apparaissent sur tout le domaine en  $q$ .

Ces modifications peuvent apparaître minimes mais nous pensons qu'elles sont cependant significatives. La précision sur les directions de l'aimantation peut être estimée à  $\pm 5^\circ$ . Pour des variations angulaires inférieures, les écarts deviennent non significatifs.

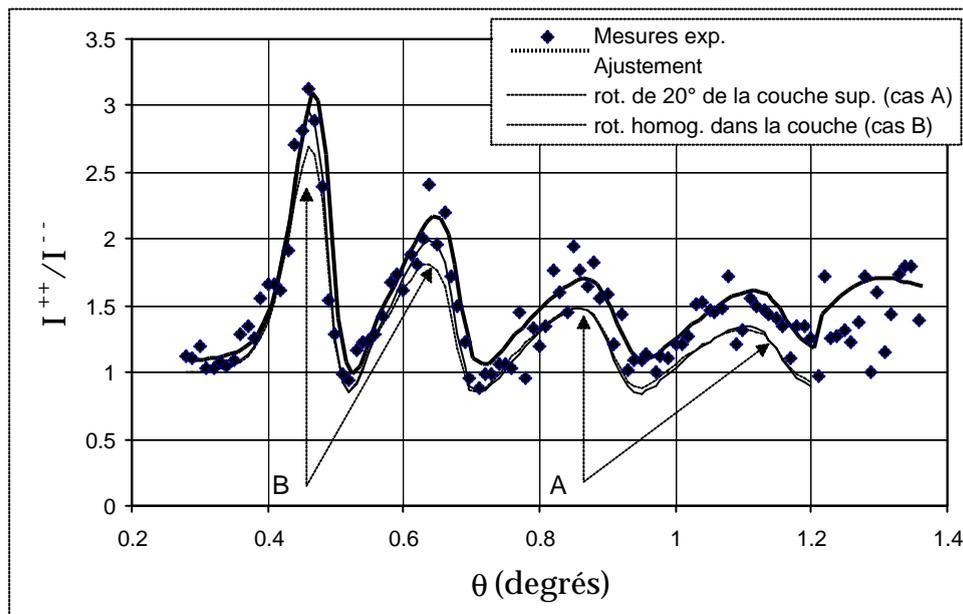


Figure 14 : rapport  $I^{++}/I^-$  en fonction de l'angle d'incidence pour les courbes de réflectivité mesurées sur une couche mince de 40 nm de nickel sous contrainte de déformation (voir Figure 12). En losanges, points expérimentaux ; en trait gras, meilleur fit obtenu avec les valeurs du Tableau 3 ; en trait fin continu (cas A), cas où l'aimantation de la couche de surface est tournée de  $20^\circ$  ; en trait pointillé (cas B), situation où l'on impose une rotation homogène de l'aimantation dans l'épaisseur de la couche.

## 2. Modélisation des résultats par un gradient de constantes ME.

Afin de décrire ces comportements, nous avons introduit un coefficient ME  $B(z)$  fonction de la profondeur dans le film. Cette dépendance peut être reliée à des

contraintes de relaxations de surfaces ou de dislocations. Boutry et al (Boutry, 1996) ont montré que les films minces présentent toujours des gradients de contraintes internes très élevés. Ces gradients dépendent beaucoup de la technique et des conditions de dépôt. Nos mesures sont une mesure indirecte des conséquences de ces effets. La Figure 15 illustre l'effet de contraintes internes présentes dans les films minces. Des techniques de gravure simples permettent de fabriquer des éléments de films minces autoportés (c'est à dire ne reposant plus sur un substrat). Ces éléments subissent des déformations spontanées ; soit vers le haut, soit vers le bas en fonction des conditions de dépôt. Ces déformations sont dues à des contraintes mécaniques internes dans le film non homogènes dans l'épaisseur du film et qui créent ainsi un effet " bilame " .

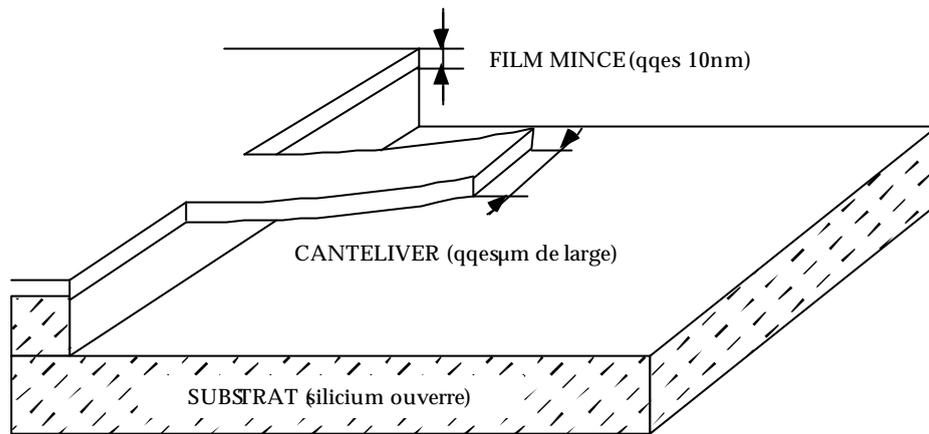


Figure 15 : film mince autoporté (cantilever de quelques dizaines de microns de long et de quelques microns de large). Il subit une déformation spontanée indiquant l'existence de contraintes internes (adapté de Boutry, 1996).

Une approche pour l'évaluation du profil  $B(z)$  peut être envisagée en introduisant l'énergie totale du système et en la minimisant en fonction du profil d'aimantation mesuré.

Il y a quatre types d'énergie : l'interaction Zeeman :

$$E_z = -M \cdot H_{ext} \cos(j(z) - q_e), \quad (III.36)$$

l'énergie magnéto-élastique :

$$E_{me} = e \cdot B(z) \cdot \sin^2(j(z) - q_{me}), \quad (III.38)$$

l'énergie d'échange :

$$E_{ex} = A \cdot (j(z) / j_z)^2, \quad (III.40)$$

l'énergie d'anisotropie :

$$E_a = K \cdot \sin^2(f(z)). \quad (III.42)$$

Dans ces expressions,  $j(z)$  est la direction de l'aimantation à la profondeur  $z$  dans le film.  $q_{me}$  est la direction de l'axe facile créé par la contrainte extérieure,  $H_0$  est le champ extérieur appliqué et  $q_e$  est la direction du champ extérieur appliqué. La

constante d'échange  $A$  prend des valeurs de l'ordre de  $10 \times 10^{-12}$  J/m dans les alliages nickel-fer (Frait, 1962).

L'énergie libre totale du système est donnée par l'intégration de ces énergies sur l'épaisseur  $z_0$  de la couche mince :

$$\int_0^{z_0} (E_z + E_a + E_{me} + E_{ech}) dz \quad (\text{III.44})$$

Considérons un système possédant une distribution  $B(z)$  de constantes magnéto-élastiques non constante dans l'épaisseur de la couche. Sous l'application d'une contrainte, les directions de l'aimantation  $\mathbf{j}(z)$  vont s'ajuster pour minimiser l'énergie libre du système. Cette condition de minimisation est donnée par la dérivée fonctionnelle :

$$\frac{dE}{d\mathbf{j}(z)} = 0 \quad (\text{III.46})$$

Cette dérivée fonctionnelle se calcule en utilisant les équations d'Euler-Lagrange :

$$\frac{\mathcal{J}E}{\mathcal{J}\mathbf{j}} - \frac{\mathcal{J}}{\mathcal{J}z} \left( \frac{\mathcal{J}E}{\mathcal{J}\mathbf{j}'} \right) = 0 \quad (\text{III.48})$$

On se place dans le cas particulier de notre expérience c'est-à-dire  $\mathbf{q}_{me} = 90^\circ$  et  $\mathbf{q}_e = 0^\circ$ . Par ailleurs par souci de simplification, on néglige l'énergie d'anisotropie. Les contributions des différentes énergies à l'équation de minimisation sont :

$$\begin{aligned} E_{ech} &\rightarrow -2A\mathbf{j}''(z) \\ E_z &\rightarrow M.H_{ext} \cdot \sin(\mathbf{j}(z)) \\ E_{me} &\rightarrow -e.B(z) \cdot \sin^2(\mathbf{j}(z) - \mathbf{q}_{me}) \end{aligned} \quad (\text{III.50})$$

La condition de minimisation devient :

$$-2A\mathbf{j}''(z) - 2e.B(z) \cdot \sin(\mathbf{j}(z)) \cdot \cos(\mathbf{j}(z)) + M.H_{ext} \cdot \sin(\mathbf{j}(z)) = 0 \quad (\text{III.52})$$

Une solution triviale de cette équation est  $\mathbf{j}(z) = 0$ , celle-ci correspond en fait à un maximum local.

On peut faire une première évaluation en faisant l'hypothèse simplificatrice  $\mathbf{j}'(z) = cste$  qui correspond à une rotation homogène de l'aimantation. Dans ce cas l'équation de minimisation devient :

$$-2e.B(z) \cdot \cos(\mathbf{j}(z)) + M.H_{ext} = 0 \quad (\text{III.54})$$

Celle-ci relie de manière directe le profil de constante ME avec le profil d'aimantation :

$$B(z) = \frac{M.H_{ext} \sin \mathbf{j}(z)}{e \sin^2(\mathbf{j}(z) - \mathbf{q}_{me})} \quad (\text{III.56})$$

L'application numérique dans le cas du nickel et d'une déformation de 0.03% donne : (avec  $M_{Ni} = 0.64 T \equiv 0.51 MA/m$  et  $H_{ext} = 6 \times 10^{-4} T$ )

$$B(z) = 1.02 \times 10^6 \frac{\sin \mathbf{j}(z)}{\sin^2(\mathbf{j}(z) - \mathbf{q}_{me})} \quad (\text{III.58})$$

La Figure 16 montre les profils de constantes ME déduits à partir des valeurs des ajustements numériques des courbes de réflectivité de neutrons. Ces valeurs ne sont pas en accord quantitatif ( $\pm 40\%$ ) avec les mesures magnéto-optique. Cependant, étant donné les approximations faites dans le calcul de ces profils, le résultat est relativement satisfaisant. En particulier il montre qualitativement l'augmentation des constantes ME au niveau des interfaces comme observé par (Song, 1994). Cependant on ne peut pas observer les augmentations spectaculaires (d'un facteur 3 ou 4) obtenues dans des films ultraminces ( $< 5$  nm). Cela est dû à la limitation de la résolution en  $z$  du profil magnétique mesuré en neutrons. De plus on note que ces valeurs sont relativement faibles par rapport aux valeurs tabulées pour des monocristaux.

Les mesures de neutrons ne sont pas assez fiables pour pouvoir inclure le terme en dérivée seconde dans l'équation de minimisation. L'erreur sur cette valeur est trop importante.

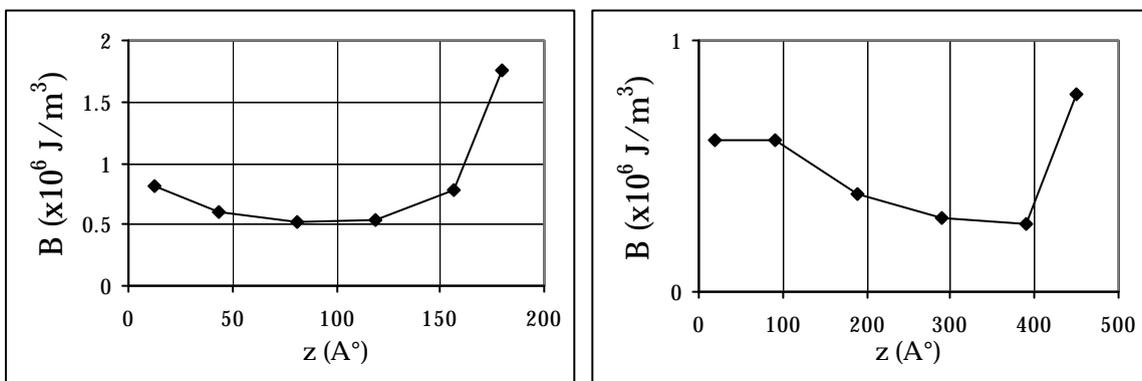


Figure 16 : profils de constantes ME en fonction de la profondeur dans le film. A gauche pour le film de 20 nm, A droite pour le film de 46 nm.

### 3. Conclusion.

Des mesures de réflectivité de neutrons sur des films minces de nickel ont montré qu'il est possible d'induire des gradients de rotation de l'aimantation de l'ordre de  $10^\circ$  à  $15^\circ$  lorsque ces films minces sont soumis à des déformations mécaniques. Nous attribuons ces effets à des gradients de constantes magnéto-élastiques dans l'épaisseur des films minces. Les résultats obtenus sont cohérents avec les résultats de (Song, 1994) sur des films ultraminces d'alliages NiFe mais nous n'obtenons cependant pas des variations de constante ME aussi importants.

### C. Création de couplages magnétiques quadratiques dans des systèmes de tricouches par application de déformations mécaniques.

Nous avons étudié la possibilité de créer des ordres magnétiques quadratiques artificiels par application de déformations mécaniques. Nous présentons l'utilisation de la réflectivité de neutrons pour la détermination des configurations magnétiques dans des systèmes de tricouches.

### 1. Système d'alliage nickel-fer à composition modulée.

Nous nous sommes intéressés à des systèmes de tricouches nickel/nickel-fer/nickel dans lequel l'alliage nickel-fer en sandwich entre les deux couches de nickel possède une constante ME positive c'est-à-dire de signe opposé aux deux couches de nickel (voir Figure 17). Lors de l'application d'une déformation mécanique, les aimantations des deux types de couches auront tendance à tourner dans des directions faisant  $90^\circ$  l'une par rapport à l'autre si l'on exclut le couplage d'échange entre les couches : ces structures se comportent sous contraintes comme une paroi de Bloch ou un empilement de parois de Bloch. En fait il y a compétition entre l'énergie magnéto-élastique et l'énergie d'échange, l'application d'une contrainte n'aura pour effet que de moduler la direction de l'aimantation. Une structure en tricouche a été choisie pour des raisons de symétrie. La somme des épaisseurs des deux couches de nickel est choisie égale à l'épaisseur de la couche d'alliage nickel fer.

La structure en tricouche est réalisée par pulvérisation cathodique avec deux cibles ; la première est une cible de nickel pur, la deuxième est un alliage de nickel-fer. La stoechiométrie de la couche d'alliage nickel-fer déterminée par réflectivité de neutrons est (Fe 65% ; Ni 35%). Son comportement magnétique sous contrainte a été déterminé par technique magnéto-optique.

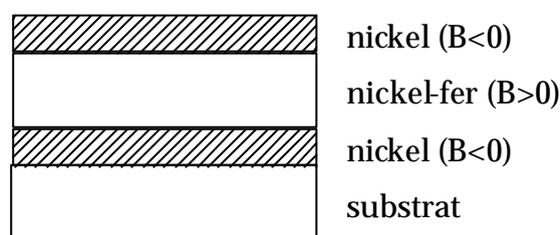


Figure 17 : tricouche Ni/NiFe/Ni dans laquelle les coefficients magnéto-élastiques sont modulés en signe.

La Figure 18 montre un cycle d'hystérésis sur une telle couche de nickel-fer. Les couches sont parfaitement couplées : on n'observe pas deux champs coercitifs qui correspondraient aux deux compositions magnétiques (nickel et alliage nickel-fer). Cela est attendu car les deux couches sont très couplées par le couplage d'échange.

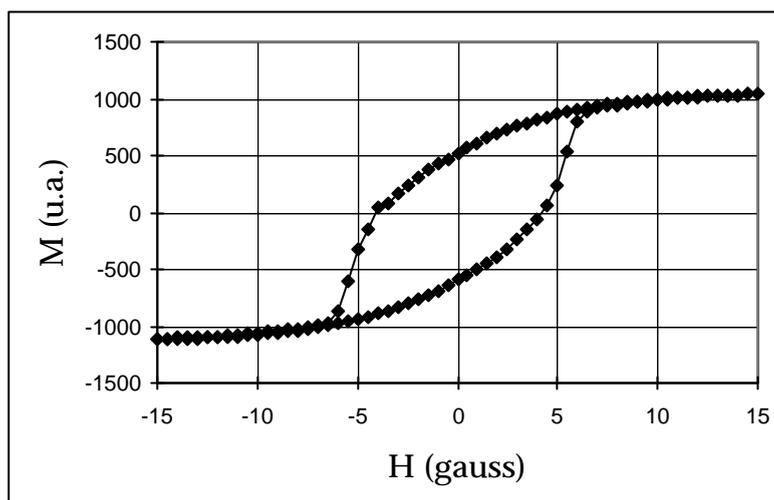


Figure 18 : cycle d'hystérésis d'une tricouche Ni(20)/Ni-Fe(40)/Ni(20).

Pour les mesures de réflectivité de neutrons, nous avons suivi la même procédure expérimentale que dans le cas de couches simples de nickel. Une mesure sous champ saturant (120 G) permet de déterminer la structure et les caractéristiques magnétiques des couches. Le champ est diminué jusqu'à une valeur de 5 G puis une déformation élastique est appliquée. La Figure 20 montre la réflectivité obtenue sous champ saturant. Le deuxième jeu de courbes (Figure 20) est obtenu pour une déformation d'élongation de 0.03%. Nous observons l'apparition d'un important signal de spin-flip.

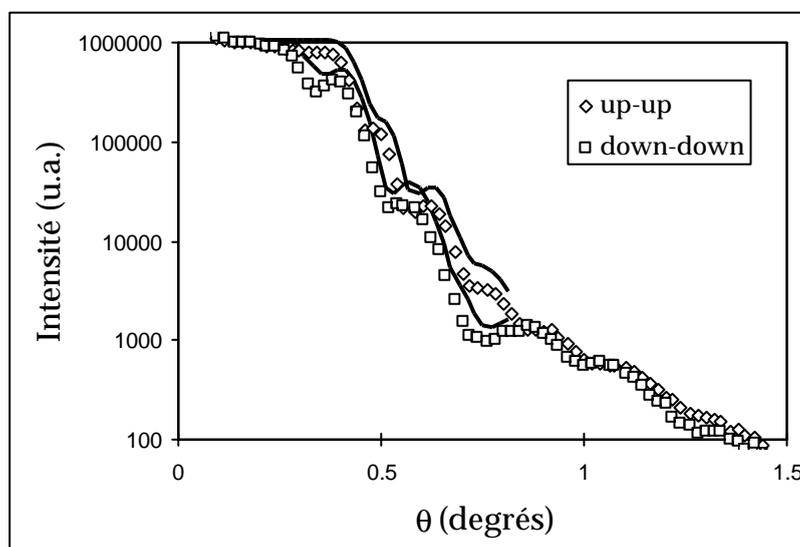


Figure 19 : réflectivité d'une tricouche nickel/nickel-fer/nickel sous un champ saturant de 120G. Les ajustements numériques sont tracés en traits gras.

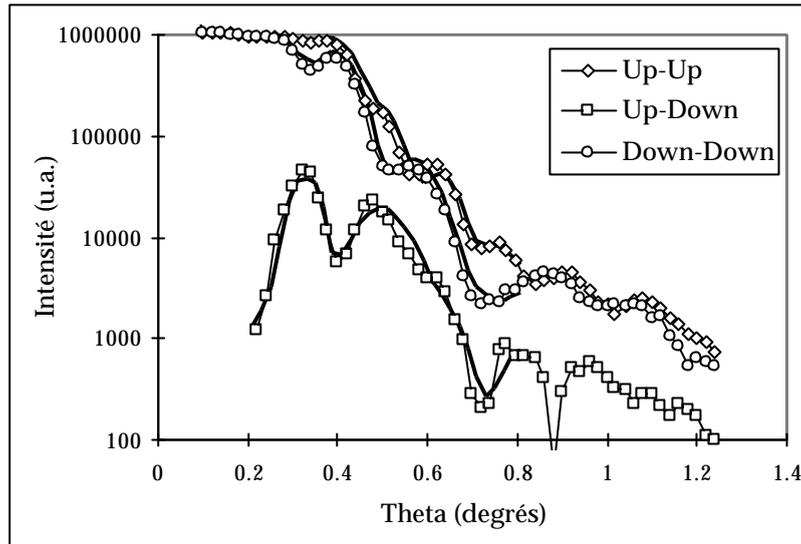


Figure 20 : réflectivité d'une tricoche nickel/nickel-fer/nickel soumise à une déformation d'élongation de 0.034%. Ajustements en traits pleins.

Les résultats des ajustements numériques montrent que malgré l'énergie d'échange il est possible de moduler la direction de l'aimantation. La Figure 21 résume schématiquement les résultats des ajustements numériques. Pour cet ajustement, il a été nécessaire d'introduire des couches d' "alliages" aux interfaces entre les couches. Cela n'est pas surprenant puisque le nickel et le fer sont très miscibles et lors du dépôt il est tout à fait probable que des couches d'alliage de composition intermédiaire se forment à l'interface entre les couches.

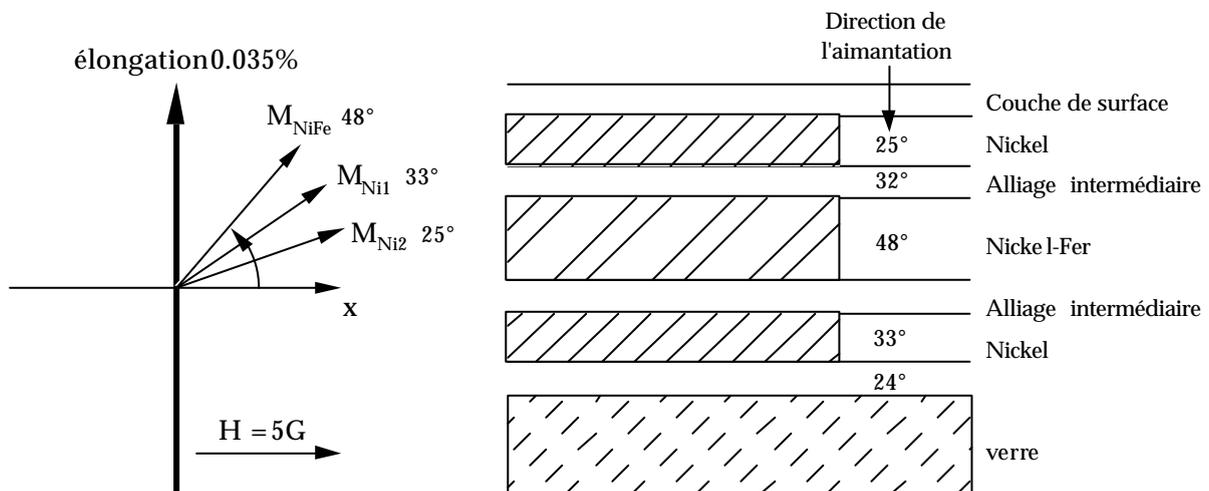


Figure 21 : résultat de l'ajustement numérique de la configuration magnétique d'une tricoche Ni/NiFe/Ni soumise à une déformation de 0.035% (voir Figure 20). Les angles indiquent la direction de l'aimantation perpendiculairement à la direction de la déformation appliquée. A gauche, vue de dessus ; à droite, vue de côté.

Le résultat intéressant est que malgré des couplages d'échange a priori très importants, des déformations mécaniques relativement faibles (0.035%) peuvent induire des gradients de rotation de l'aimantation assez importants. La différence de direction de l'aimantation entre la première couche de nickel et la couche d'alliage

NiFe est de  $15^\circ$ . Cette différence de direction atteint  $23^\circ$  entre la couche de NiFe et la couche supérieure de nickel.

## 2. Effet de déformations mécaniques sur des systèmes de bicouches avec espaceur non magnétique.

Il est possible de “ construire ” expérimentalement des systèmes ayant des propriétés magnétiques particulières. Afin d'essayer de diminuer le couplage d'échange, nous avons étudié des systèmes de tricouches composés de deux couches magnétiques séparées par un espaceur non magnétique (de type Ag ou Cu). Les deux couches magnétiques ont été choisies de telle sorte à avoir des coefficients ME de signe opposé comme dans le système étudié ci-avant. La Figure 22 montre la structure typique de ces tricouches.

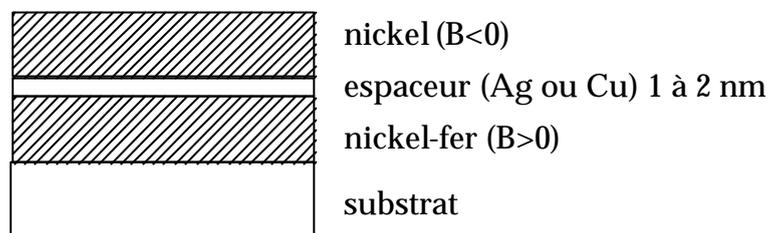


Figure 22 : structure en tricouche. Deux couches de matériaux magnétiques ayant des coefficients ME de signe opposé sont séparées par un espaceur non magnétique (typiquement Ag ou Cu).

Dans le cas d'une couche non contrainte, le couplage entre les couches sera déterminé par l'épaisseur de l'espaceur. Lorsque les couches seront soumises à des contraintes mécaniques de contraction ou d'élongation, les aimantations des couches magnétiques auront tendance à s'orienter à  $90$  degrés l'une de l'autre.

### a) Exemple d'un système Ni/Ag/NiFe.

La Figure 23 montre un cycle d'hystérésis sur un tel système. On constate que ce cycle est très carré. Ce cycle ne présente qu'un seul champ coercitif. L'espaceur d'argent ne découple pas totalement les deux couches magnétiques. Cependant, les mesures de réflectivité de neutrons (voir Figure 25) montrent que pour des déformations d'environ  $0.03\%$ , les aimantations des deux couches magnétiques font un angle de  $35^\circ$  l'une par rapport à l'autre. La faible valeur de l'angle peut être attribuée au couplage encore très important entre les deux couches magnétiques malgré l'espaceur. Les mesures de neutrons montrent qu'effectivement la rugosité est très importante à l'interface entre les couches magnétiques et l'espaceur d'argent. Il est nécessaire d'introduire une couche d'alliage NiAg de  $1$  nm d'épaisseur au niveau des interfaces avec l'espaceur d'argent, ce qui montre que cette couche de découplage ne peut pas être considérée comme de l'argent pur.

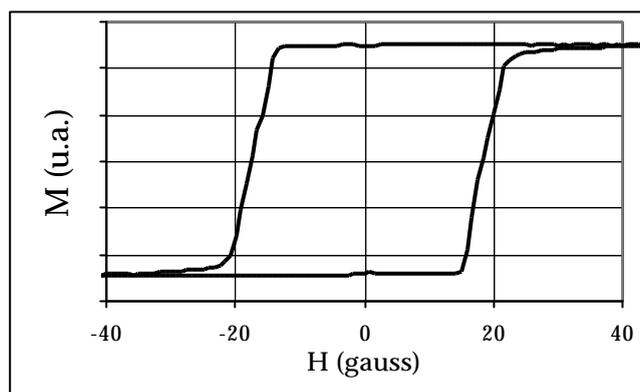


Figure 23 : cycle d'hystérésis mesuré sur une tricouche Ni/Ag/Ni-Fe. On obtient un cycle très carré avec une rémanence égale à  $M_{\text{saturation}}$ .

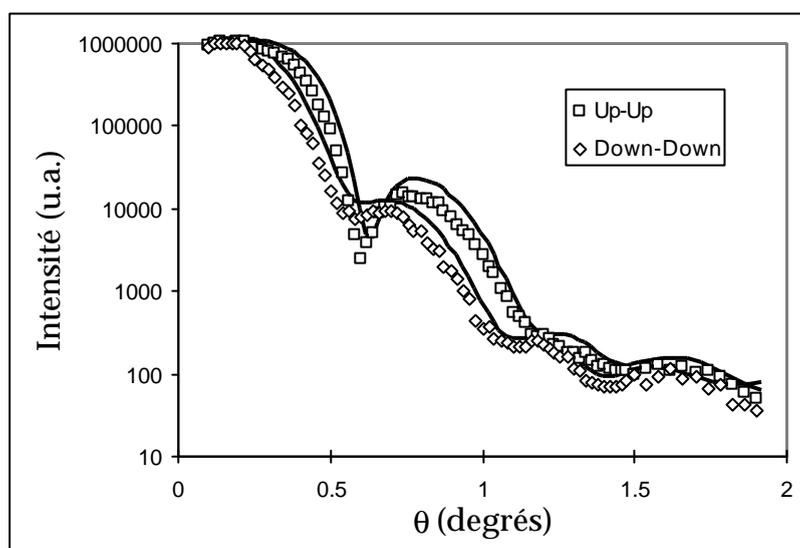


Figure 24 : réflectivité d'une tricouche Ni/Ag/Ni-Fer sous un champ magnétique saturant de 100G (mesure de référence sous saturation). Les ajustements numériques sont en traits gras.

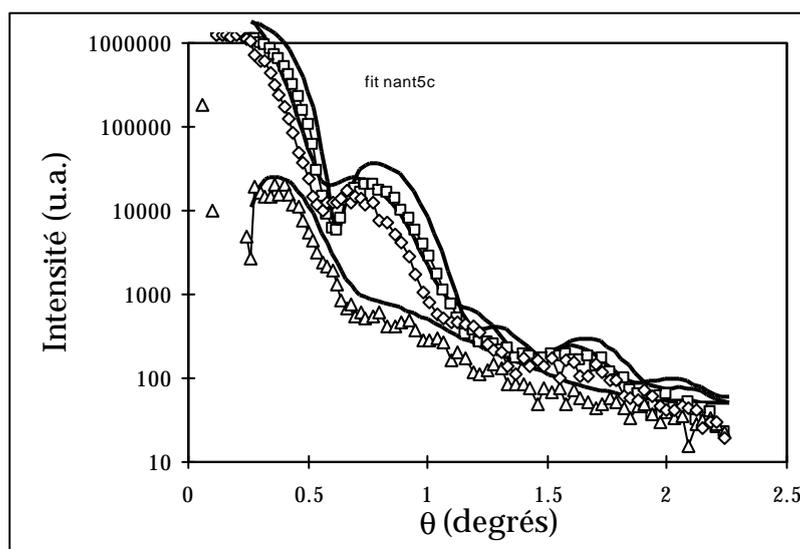


Figure 25 : réflectivité d'une tricouche Ni/Ag/Ni-Fer soumise à une déformation d'élongation de 0.03%. Carrés (up-up), losanges (down-down), triangles (spin-flip) ; ajustements numériques en traits pleins.

La Figure 26 résume schématiquement le résultat de l'ajustement numérique et montre les rotations d'aimantation induites par la déformation mécanique.

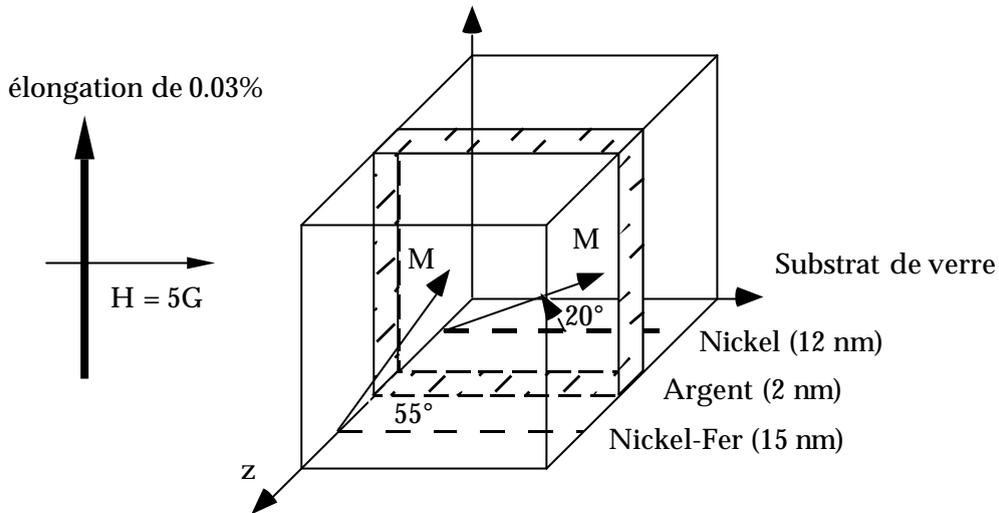


Figure 26 : configuration magnétique d'un système Ni/Ag/NiFe soumis à une déformation de 0.03%, déduit de l'ajustement numérique des courbes de la Figure 25. Les directions des aimantations des deux couches magnétiques font un angle de 35° l'une par rapport à l'autre.

b) Exemple d'un système Ni/Cu/NiFe.

Dans le cas de ce système, nous obtenons un cycle d'hystérésis différent du système précédent. Le cycle est très arrondi mais les couches sont légèrement découplées par l'espaceur de cuivre (voir Figure 27). Le tracé de la dérivée de l'aimantation par rapport au champ montre deux changements de pente suggérant que les deux couches sont magnétiquement découplées.

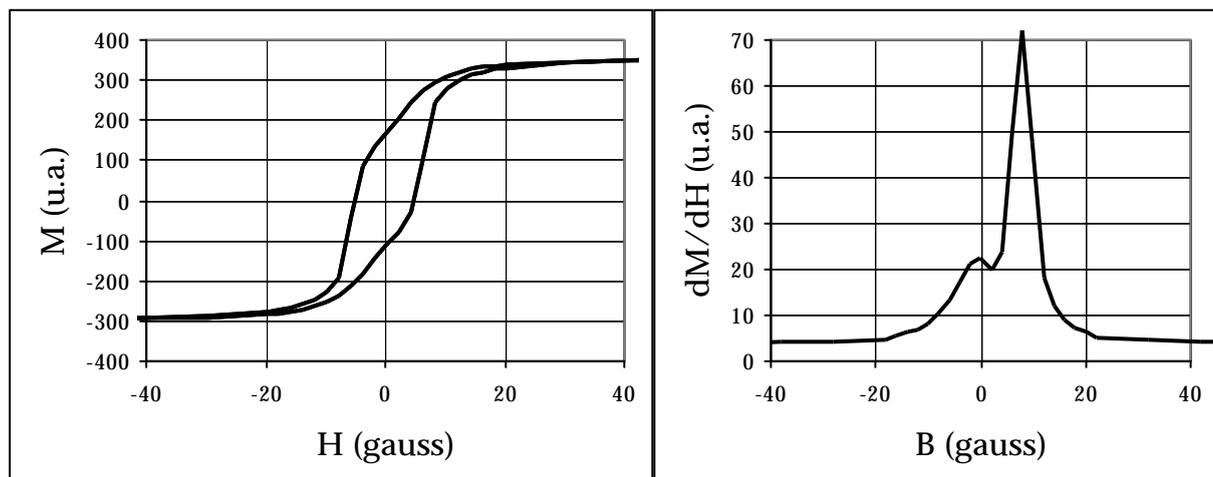


Figure 27 : à gauche, cycle d'hystérésis mesuré sur une tricouche Ni/Cu/NiFe (mesure par SQUID). A droite, la dérivée de l'aimantation par rapport au champ montre deux changements de pente suggérant que les deux couches sont magnétiquement découplées.

Les mesures de réflectivité de neutron montrent que pour une déformation de 0.03%, les aimantations des deux couches magnétiques font un angle de  $50^\circ$  l'une par rapport à l'autre.

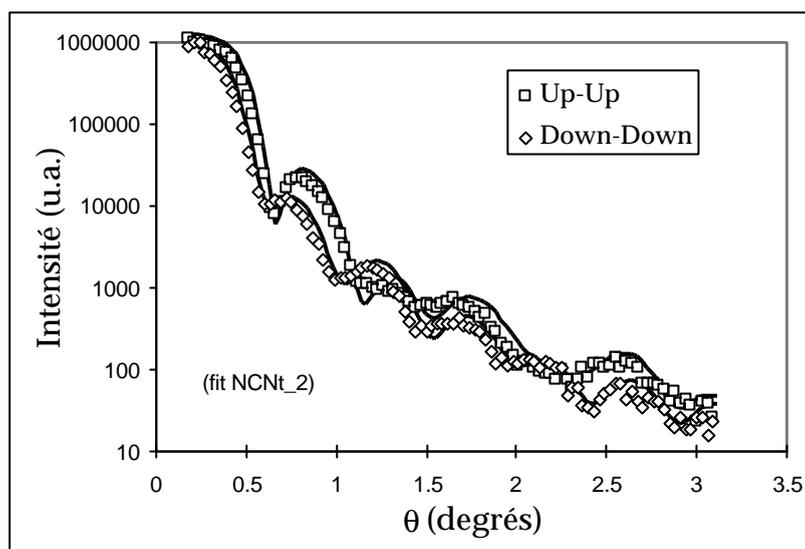


Figure 28 : réflectivité d'une tricouche Ni/Cu/Ni-Fer sous un champ de 100G (mesure de référence sous saturation). Les ajustements sont tracés en traits gras. Ajustements en traits gras.

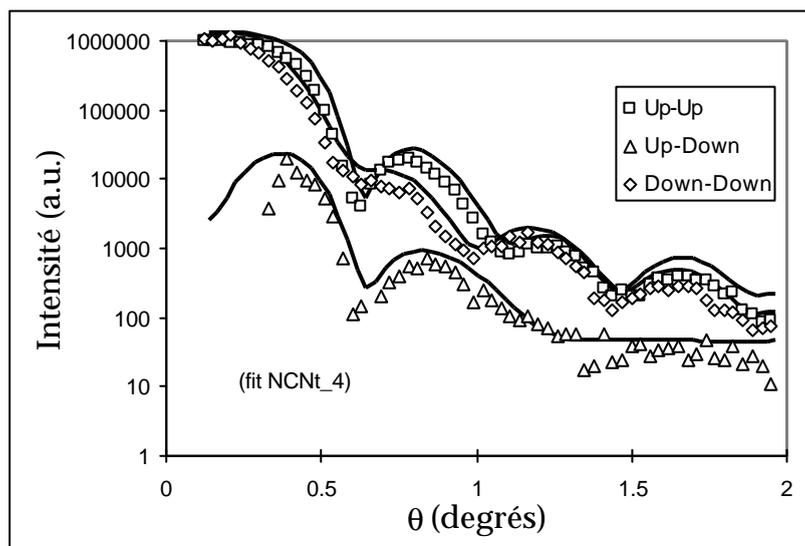


Figure 29 : réflectivité d'une tricouche Ni/Cu/Ni-Fe soumise à une déformation d'élongation de 0.03%. Les ajustements sont tracés en traits gras.

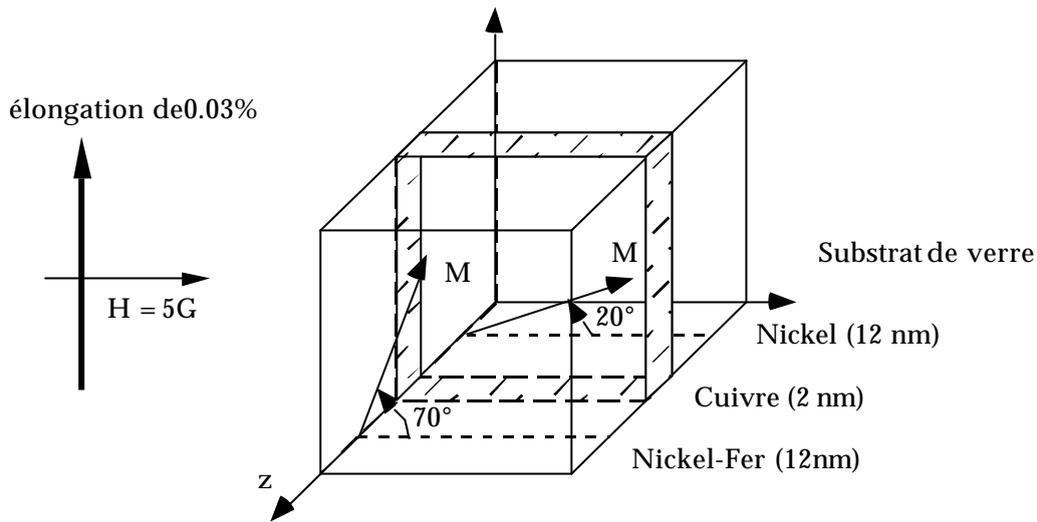


Figure 30 : configuration magnétique d'un système Ni/Cu/NiFe soumis à une déformation de 0.03%, déduite de l'ajustement numérique des courbes de réflectivité de la Figure 29. Les directions des aimantations des deux couches magnétiques font un angle de  $50^\circ$  l'une par rapport à l'autre.

On constate donc que de très faibles déformations mécaniques (déformations relatives de 0.03%) permettent d'induire des changements importants dans l'aimantation de films minces et de créer des structures magnétiques " non conventionnelles ".

Une étude ultérieure devra s'intéresser aux propriétés de transport de ces systèmes. En effet des structures en tricouches de ce type présentent un effet de magnétorésistance géante, c'est-à-dire que la résistance électrique du système dépend de l'ordre magnétique dans les couches et en particulier du couplage ferromagnétique ou anti-ferromagnétique entre les couches. Il est donc possible d'envisager de moduler la résistance électrique du système en fonction de la contrainte appliquée puisque l'application d'une contrainte permettra de passer d'une configuration ferromagnétique ou anti-ferromagnétique à une configuration quadratique (aimantation des deux couches faisant un angle de  $90^\circ$  l'une par rapport à l'autre). On peut ainsi obtenir un système sensible aux déformations mécaniques. Une application directe est bien sûr une utilisation sous forme de capteurs de déformations. Au lieu d'être basé sur un effet de déformation géométrique comme pour les jauges de contraintes " classiques " on disposerait d'un système sensible à ces contraintes par l'intermédiaire du couplage magnétique. Suivant l'amplitude de l'effet de magnétorésistance géante, la sensibilité pourrait être grandement améliorée par rapport aux capteurs classiques.

#### D. Conclusion.

Nous avons montré que la réflectivité de neutrons permet de mesurer la structure magnétique interne détaillée de systèmes magnétiques. Il a été possible d'observer des inhomogénéités d'aimantation dans des systèmes simples de couches de nickel. Nous avons attribué ces inhomogénéités à des gradients de constantes magnéto-

élastique dans l'épaisseur des films minces. Dans des systèmes de bicouches et de tricouches magnétiques à profil de constantes magnéto-élastiques modulé (volontairement), la réflectivité de neutrons polarisés nous a permis de vérifier qu'il est possible d'induire des gradients d'aimantation importants par application de contraintes mécaniques.

Ce type de mesures contraste avec les études plus classiques sur des systèmes de multicouches. En effet dans les mesures de réflectivité sur des superréseaux, on ne peut obtenir qu'une information moyennée sur l'ensemble des couches ; cela s'apparente à la diffraction classique qui donne des informations sur l'ordre magnétique à longue distance et est donc une mesure plus "globale". Dans nos mesures nous avons montré qu'il est possible d'obtenir des informations relativement "locales" sur l'aimantation de systèmes simples. Ceci est particulièrement intéressant puisque cela permet de mesurer des effets autrement très difficiles à observer. Dans l'avenir, l'extension du domaine en  $q$  accessible (par l'augmentation du flux) permettra d'obtenir des résolutions spatiales supérieures sur ces aimantations d'interface. Ce type d'études est sans aucun doute appelé à se développer.

## **Chapitre 4**

### ***Problèmes à deux dimensions : diffusion sur des structures lithographiées.***

<b>IV. Problèmes à deux dimensions : diffusion sur des structures lithographiées.</b>	<b>145</b>
<b>A. Approximation de Born.</b>	<b>145</b>
1. Equation intégrale de la diffusion.	145
2. Approximation de Born.	147
3. Développement de Born.	148
4. Approximation de Born généralisée. Distorted Wave Born Approximation (DWBA).	149
<b>B. Calcul dynamique de la diffraction par un réseau.</b>	<b>151</b>
1. Cas non magnétique.	151
2. Cas magnétique.	155
<b>C. Techniques de lithographie de réseaux.</b>	<b>162</b>
1. Principe de la technique.	162
2. Résultats expérimentaux.	163
<b>D. Utilisation de réflectomètres en diffusion hors spéculaire.</b>	<b>167</b>
1. Géométrie de diffusion hors spéculaire.	167
2. Condition de diffraction.	167
3. Augmentation de la période effective d'un réseau.	168
4. Les différents modes de mesure sur un spectromètre deux axes.	171
5. Les différents modes de mesure sur un spectromètre en temps de vol.	172
6. Fonction de résolution du spectromètre EROS.	173
<b>E. Diffusion hors spéculaire sur des structures lithographiées.</b>	<b>174</b>
1. Influence des différents paramètres d'un réseau sur les modes de diffraction.	174
2. Diffusion sur des réseaux lithographiés. Comparaison entre mesures expérimentales et simulations numériques.	176
3. Augmentation des efficacités de diffraction.	183
4. Conclusion.	189
<b>F. Etude par diffusion hors spéculaire de neutrons du comportement magnétique de nanostructures lithographiées.</b>	<b>190</b>
1. Diffraction sur des réseaux de lignes lithographiées.	191
2. Diffraction de surface sur un réseau de domaines magnétiques ordonnés.	196
3. Conclusion.	200
<b>G. Utilisation de supermiroirs gravés pour l'analyse en énergie d'un faisceau de neutrons.</b>	<b>201</b>
1. Principe du système d'analyse par réseau gravé.	201
2. Problèmes de résolution et optimisation du dispositif.	202
<b>H. Conclusion.</b>	<b>203</b>

## **IV. Problèmes à deux dimensions : diffusion sur des structures lithographiées.**

Les problèmes de rugosité de surface sont des problèmes cruciaux en réflectivité. Un effort théorique très important a été conduit ces dix dernières années dans le domaine de la réflectivité X. Nous avons transposé ces efforts dans le domaine de la réflectivité de neutrons.

Une première partie de ce chapitre présentera le formalisme de l'approximation de Born et de l'approximation DWBA. Nous développerons ensuite un formalisme de calcul dynamique de la diffusion hors spéculaire sur des systèmes périodiques.

La réflectivité de neutrons permet des études du magnétisme des couches minces. Mais le potentiel d'interaction magnétique n'étant pas scalaire, les formalismes de réflectivité X ne se transposent pas directement au cas magnétique. Il n'existe actuellement aucune théorie de la diffusion sur de la "rugosité magnétique". C'est pourquoi nous avons développé un formalisme de calcul de la diffusion hors spéculaire sur des structures magnétiques périodiques (dérivé du cas non magnétique).

Expérimentalement, nous avons fabriqué des réseaux de diffraction de différentes périodicités et compositions. La fabrication de ces réseaux lithographiés que l'on peut considérer comme des systèmes à "rugosité contrôlée" est décrite dans le paragraphe C. Nous vérifierons que les formalismes décrits dans la première partie permettent de rendre compte des résultats expérimentaux de diffusion hors spéculaire sur ces réseaux. Etant donnée la limitation actuelle des flux de neutrons, nous avons dû limiter les études de diffusion hors spéculaire à l'étude de réseaux de diffraction afin de disposer d'intensités exploitables quantitativement.

Dans une optique plus appliquée, nous étudierons ensuite les possibilités d'augmentation des efficacités de diffraction de ces réseaux. Nous présenterons une application de ces réseaux en instrumentation neutronique pour l'analyse en énergie d'un faisceau de neutrons.

### **A. Approximation de Born.**

#### **1. Equation intégrale de la diffusion<sup>1</sup>.**

Soit  $V(\mathbf{r})$  le potentiel d'interaction forte entre le neutron et un noyau

---

<sup>1</sup> Tout ce qui est dit dans ce paragraphe se trouve dans tous les livres de mécanique quantique (Cohen, 1973; Messiah, 1995).

L'équation de Schrödinger décrivant l'évolution de la fonction d'onde de la particule dans le potentiel  $V(\mathbf{r})$  admet des solutions d'énergie  $E$  bien définie (états stationnaires) :

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \mathbf{y}(\mathbf{r}) e^{-iEt/\hbar} \quad (\text{IV.2})$$

où  $\mathbf{y}(\mathbf{r})$  est solution de l'équation aux valeurs propres :

$$\left[ \frac{-\hbar^2}{2m} \Delta + V(r) \right] \mathbf{y}(\mathbf{r}) = E \mathbf{y}(\mathbf{r}). \quad (\text{IV.4})$$

Nous posons :

$$E = \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m} \quad (\text{IV.6})$$

L'équation (IV.4) se réécrit alors :

$$[\Delta + k^2] \mathbf{y}(\mathbf{r}) = \frac{2m}{\hbar^2} V(r) \mathbf{y}(\mathbf{r}) \quad (\text{IV.8})$$

En invoquant la fonction de Green de l'équation (IV.8), on obtient une solution formelle (équation intégrale de la diffusion) :

$$\mathbf{y}(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} + \frac{2m}{\hbar^2} \int_{\Omega} dv' g(\mathbf{r}, \mathbf{r}') V(\mathbf{r}') \mathbf{y}(\mathbf{r}') \quad (\text{IV.10})$$

où  $dv'$  est un volume élémentaire,  $\Omega$  désigne le domaine où le potentiel  $V(\mathbf{r})$  agit et

$$g(r, r') = -\frac{e^{ik|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}}{4p|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}, \quad (\text{IV.12})$$

qui satisfait :

$$[\Delta + k^2] g(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \mathbf{d}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'). \quad (\text{IV.14})$$

Loin de la zone d'action du potentiel  $V(\mathbf{r})$  (i.e.  $|\mathbf{r}| \ll |\mathbf{r}'|$ ) on peut faire le développement suivant :

$$|\mathbf{r}-\mathbf{r}'| \approx r - \frac{(\mathbf{r}\cdot\mathbf{r}')}{r}. \quad (\text{IV.16})$$

On substitue cette expression dans (IV.10) :

$$\mathbf{y}(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}_i\cdot\mathbf{r}} + \frac{e^{ik_i r}}{r} \frac{m}{2p\hbar^2} \int_{\Omega} dv' V(\mathbf{r}') \mathbf{y}(\mathbf{r}') e^{-i\mathbf{k}_o\cdot\mathbf{r}'}, \quad (\text{IV.18})$$

où  $\mathbf{k}_i$  désigne le vecteur d'onde entrant (*in*) et  $\mathbf{k}_o$  désigne le vecteur d'onde de l'onde diffusée (*out*).

On peut mettre cette formule sous la forme :

$$\mathbf{y}(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}_i\cdot\mathbf{r}} + f(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_o) \frac{e^{ik_i r}}{r} \quad (\text{IV.20})$$

$$f(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_o) = -\frac{m}{2p\hbar^2} \int_{\Omega} dV V(\mathbf{r}') y(\mathbf{r}') e^{-i\mathbf{k}_o \cdot \mathbf{r}'} \quad (\text{IV.22})$$

où le facteur  $f(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_o)$  est l'amplitude de l'onde sphérique diffusée et est appelé " amplitude de diffusion " .

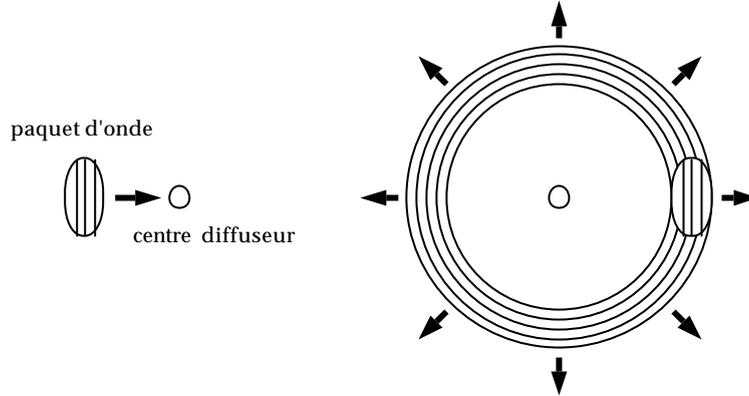


Figure 1 : A gauche, avant la collision, un paquet d'onde se dirige vers un centre diffuseur. A droite après la collision le paquet d'onde incident poursuit sa route peu perturbé mais le centre diffuseur a donné naissance à un paquet d'onde sphérique (adapté de (Cohen 1978)).

La section efficace différentielle de diffusion (qui est égale au nombre de particules  $dn$  comptées dans un détecteur d'angle solide  $d\Omega$  par unité de temps et de flux incident est donnée par :

$$\frac{dS}{d\Omega} = |f(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_o)|^2 \quad (\text{IV.24})$$

L'amplitude totale de diffusion du potentiel  $V(\mathbf{r})$  s'écrit :

$$S_S = \int_{4p} \frac{dS}{d\Omega} d\Omega = \int_{4p} |f(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_o)|^2 d\Omega \quad (\text{IV.26})$$

## 2. Approximation de Born.

L'équation intégrale de la diffusion est difficile à manipuler. L'approximation la plus simple est de développer l'amplitude de diffusion au premier ordre en considérant

$$y(\mathbf{r}) \approx \mathbf{j}(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}} \quad (\text{IV.28})$$

c'est à dire de supposer que l'onde diffusée diffère peu de l'onde plane incidente, ce qui est le cas quand le potentiel de diffusion est suffisamment petit. L'amplitude de diffusion prend alors la forme :

$$f(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_o) = -\frac{m}{2p\hbar^2} \int_{\Omega} dV V(\mathbf{r}) e^{-i(\mathbf{k}_o - \mathbf{k}_i) \cdot \mathbf{r}} = -\frac{m}{2p\hbar^2} \tilde{V}(\mathbf{q}) \quad (\text{IV.30})$$

où  $\tilde{V}(\mathbf{q})$  est la transformée de Fourier du potentiel diffuseur  $V(\mathbf{r})$ .

Le vecteur  $\mathbf{q} = \mathbf{k}_o - \mathbf{k}_i$  est appelé vecteur de diffusion.

Dans cette approximation, l'amplitude de diffusion est proportionnelle à la transformée de Fourier du potentiel diffuseur.

### Validité de l'approximation de Born.

Cette approximation est d'autant plus valide que la fonction d'onde totale est peu différente de la fonction d'onde incidente c'est-à-dire quand la diffusion par le potentiel est faible. En diffraction, cette validité est remise en cause lorsque la diffusion sur un pic de Bragg est très intense. En réflectivité, cette approximation est totalement fautive près du plateau de réflexion totale mais devient valide à grand vecteur de diffusion.

### 3. Développement de Born.

Considérons l'équation de diffusion :

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} + \int_{\Omega} dV' g(\mathbf{r}, \mathbf{r}') V(\mathbf{r}') \mathbf{j}(\mathbf{r}') \quad (\text{IV.32})$$

Un changement de notation ( $\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}' ; \mathbf{r}' \rightarrow \mathbf{r}''$ ) donne :

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}') = e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}'} + \int_{\Omega} dV'' g(\mathbf{r}', \mathbf{r}'') V(\mathbf{r}'') \mathbf{j}(\mathbf{r}'') \quad (\text{IV.34})$$

En reportant cette forme dans l'équation (IV.32), on obtient :

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} + \int_{\Omega} dV' g(\mathbf{r} - \mathbf{r}') V(\mathbf{r}') e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}'} + \int_{\Omega} dV' \int_{\Omega} dV'' g(\mathbf{r} - \mathbf{r}') V(\mathbf{r}') g(\mathbf{r}' - \mathbf{r}'') V(\mathbf{r}'') \mathbf{j}(\mathbf{r}'') \quad (\text{IV.36})$$

Dans le second membre, les deux premiers termes sont connus. Seul le troisième contient la fonction inconnue  $\mathbf{j}(\mathbf{r})$ . On peut répéter la substitution en introduisant la forme (IV.34) dans (IV.36). De proche en proche on construit le développement de Born de la fonction stationnaire de diffusion.

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} + \sum_{n=1}^{\infty} \int_{\Omega} dV' K_n(\mathbf{r}, \mathbf{r}') e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}'} \quad (\text{IV.38})$$

avec

$$K_n(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \int G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'') V(\mathbf{r}'') K_{n-1}(\mathbf{r}'', \mathbf{r}') d\mathbf{r}'' \quad (\text{IV.40})$$

$$K_1(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = G(\mathbf{r}, \mathbf{r}') V(\mathbf{r}') \quad (\text{IV.42})$$

Chaque terme du développement fait intervenir le potentiel une fois de plus que le précédent et donc si le potentiel est faible, les termes successifs sont de plus en plus petits. Les conditions de convergence du développement de Born sont discutées en

détail dans (Messiah, 1995). L'application directe de l'approximation de Born ne conduit pas à des résultats satisfaisants dans les problèmes de réflectivité car le développement n'est pas convergent proche du plateau de réflectivité totale. Le paragraphe suivant décrit une approche plus utile.

#### 4. Approximation de Born généralisée. Distorted Wave Born Approximation (DWBA).

Considérons un système parfait de type dioptré plan. On peut résoudre exactement ce problème en utilisant les formules de Fresnel. L'approximation DWBA part de cette solution exacte du problème pour le système parfait et permet de calculer les corrections à apporter à la solution quand le système s'écarte du cas idéal (apparition de rugosité par exemple) en traitant cet écart comme une perturbation de l'hamiltonien.

Soit  $H_1 = H_0 + U_1(r)$  l'hamiltonien non perturbé.

Soit  $H = H_1 + W_1(r)$  l'hamiltonien perturbé.

Soit  $V(\mathbf{r}) = U_1(\mathbf{r}) + W_1(\mathbf{r})$  où  $W_1(\mathbf{r})$  est une perturbation<sup>2</sup>.

Soit  $\mathbf{c}$  la solution de l'hamiltonien non perturbé  $H_1$  :  $H_1 \mathbf{c} = E \mathbf{c}$

Soit  $\mathbf{y}$  la solution de l'hamiltonien perturbé  $H$  :  $H \mathbf{y} = E \mathbf{y}$

Les développements asymptotiques de  $\mathbf{c}$  et de  $\mathbf{y}$  sont de la forme :

$$\begin{aligned} \mathbf{c}(\mathbf{r}) &= e^{i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}} + g(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_o) \frac{e^{i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}}}{r} \\ \mathbf{y}(\mathbf{r}) &= e^{i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}} + f(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_o) \frac{e^{i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}}}{r} \end{aligned}$$

Posons

$$T_1 = \langle \mathbf{j}_{k_o} | U_1 | \mathbf{c}_{k_i} \rangle \quad (\text{IV.44})$$

On a montré auparavant (IV.22) que

$$g(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_o) = -\frac{m}{2p\hbar^2} T_1$$

N.B. L'expression ci-dessus est exacte.

On peut montrer (Messiah, 1995) que<sup>3</sup> :

<sup>2</sup> On fait l'hypothèse que  $U_1$  et  $V$  tendent vers 0 plus vite que  $1/r$ .

<sup>3</sup> L'expression de  $T$  n'est valable que dans le cas d'un hamiltonien  $\mathbf{H}$  réel. L'expression dans le cas général est donnée par  $T = T_1 + \langle \mathbf{c}_{k_o}^{(-)} | W_1 | \mathbf{y}_{k_i}^{(+)} \rangle$  où (+) et (-) désignent respectivement les ondes entrantes et sortantes.

$$f(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_o) = -\frac{m}{2p\hbar^2} T$$

avec 
$$T = T_1 + \langle \mathbf{c}_{-k_o}^* | W_1 | \mathbf{y}_{k_i} \rangle \quad (\text{IV.46})$$

L'expression précédente (IV.46) est exacte. Si la perturbation  $W_1$  est nulle on retrouve la solution  $\mathbf{c}$  de l'hamiltonien non perturbé. Si la perturbation  $W_1$  est petite,  $\mathbf{y} \approx \mathbf{c}$ . Au premier ordre en  $W_1$ , l'amplitude de transition est alors donnée par :

$$T = T_1 + \langle \mathbf{c}_{-k_o}^* | W_1 | \mathbf{c}_{k_i} \rangle \quad (\text{IV.48})$$

L'approximation de Born généralisée ou DWBA peut être utile dans les cas où l'écart par rapport au système parfait est petit (faible rugosité par exemple). D'autres méthodes analytiques ont été développées (en général plus efficaces que l'approximation DWBA). On trouvera une discussion plus complète dans (Zhou, 1995).

Les résultats obtenus par la méthode DWBA peuvent donner des résultats satisfaisants dans les problèmes de réflectivité (Zhou, 1995 ; Mikulik, 1997) mais dans les situations de réseaux relativement profonds ou de rugosité importante qui nous intéressent, les développements de Born ne peuvent donner qu'une idée du résultat exact. De plus en deçà du plateau de réflectivité totale on obtient des résultats très peu satisfaisants.

C'est pourquoi on préférera à la méthode DWBA un calcul dynamique plus complet que nous développons dans le paragraphe suivant.

## B. Calcul dynamique de la diffraction par un réseau.

Nous allons développer un formalisme permettant de calculer les intensités diffractées par des structures périodiques dans le plan d'une couche mince (de type réseau de lignes). Le formalisme est basé sur une théorie dynamique et donc donne a priori des résultats exacts même dans le cas où la diffusion est très importante.

Dans une première partie nous présenterons le cas de la diffusion sur un réseau non magnétique. Dans une deuxième partie, nous étendrons le calcul au cas d'un réseau magnétique.

### 1. Cas non magnétique.

Nous souhaitons calculer les intensités des modes de diffraction sur un réseau lithographié. Le calcul présenté suit les théories développées pour la diffusion hors spéculaire de rayons X.

La technique utilisée est une technique matricielle consistant à considérer un réseau de diffraction comme la superposition de couches dans chacune desquelles le potentiel d'interaction est périodique suivant (Ox). Nous déterminerons les modes propres de propagation dans chacune de ces couches. Puis l'intensité des différents modes de diffraction sur le réseau sera obtenue en imposant les conditions de continuité au niveau des interfaces du système découpé en multicouches.

Considérons un réseau périodique de période  $d$  déposé sur un substrat (Figure 2). Dans le cas d'un réseau non carré, on discrétisera le réseau en sous-couches de telle sorte que l'on puisse considérer que dans chacune de ces sous-couches l'indice varie comme une fonction en créneau de période  $d$ . Toutes les sous-couches partagent la même période  $d$ .

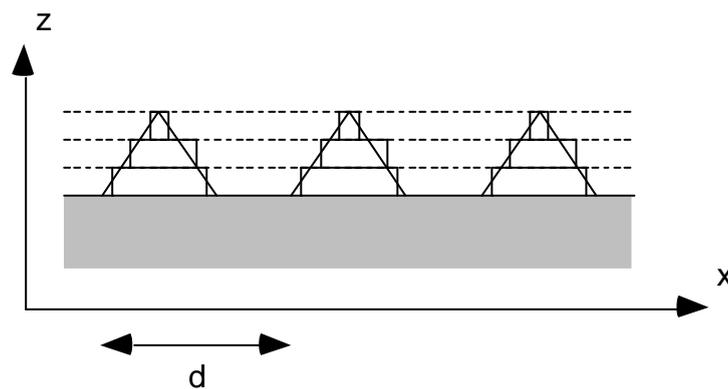


Figure 2: coupe d'un réseau triangulaire de période  $d$  suivant (Ox) discrétisé en tranches suivant (Oz).

Dans chacune des sous-couches l'équation de Schrödinger se met sous la forme:

$$\left[ \frac{-\hbar^2}{2m} \Delta + V(x) \right] \mathbf{j}(\mathbf{r}) = E \mathbf{j}(\mathbf{r}) \quad (\text{IV.50})$$

où  $V(x)$  est un potentiel périodique de période  $d$  suivant (Ox) mais constant suivant (Oz) dans la sous-couche considérée.

On pose:

$$k^2(x) = \frac{2m}{\hbar^2} (E - V(x)) \quad (\text{IV.52})$$

L'équation (IV.50) devient :

$$[\Delta + k^2(x)]\mathbf{j}(\mathbf{r}) = 0 \quad (\text{IV.54})$$

Dans la suite, pour alléger les notations, nous utiliserons  $\alpha$  (resp.  $\beta$ ) pour décrire les composantes planaires (resp. perpendiculaires) des vecteurs d'ondes.

Soit  $\mathbf{a}_0 = k_{0//}$  la composante planaire du vecteur d'onde incident. Les composantes planaires des vecteurs d'ondes des modes diffractés par le réseau sont données par :

$$\mathbf{a}_n = \mathbf{a}_0 + n \frac{2\mathbf{p}}{d} \quad (\text{IV.56})$$

Dans le cas d'un milieu homogène (vide ou substrat par exemple), les composantes perpendiculaires des vecteurs d'ondes sont directement données par:

$$\mathbf{b}_n = \sqrt{k^2 - \mathbf{a}_n^2} \quad (\text{IV.58})$$

et nous pouvons écrire les développements de Rayleigh classiques, dans le vide:

$$\mathbf{j}(x, z) = \mathbf{j}^{incident}(x, z) + \sum_n B_n e^{i(\mathbf{a}_n x + \mathbf{b}_n z)} \quad (\text{IV.60})$$

dans le substrat:

$$\mathbf{j}(x, z) = \sum_n T_n e^{i(\mathbf{a}_n x - \mathbf{b}_n z)} \quad (\text{IV.62})$$

Nous avons introduit les coefficients  $B_n$  et  $T_n$  qui représentent respectivement les amplitudes des différents modes réfléchis et transmis.

N.B. : la direction de propagation des modes  $e^{i\mathbf{b}z}$  est donnée par

$$\text{modes up : } \text{Re } \mathbf{b} + \text{Im } \mathbf{b} > 0 \quad (\text{IV.64})$$

$$\text{modes down : } \text{Re } \mathbf{b} + \text{Im } \mathbf{b} < 0 \quad (\text{IV.66})$$

Cependant, dans les milieux où l'indice est modulé suivant (Ox) on ne peut pas obtenir directement les composantes  $\mathbf{b}_n$ .

La fonction d'onde est pseudo-périodique :

$$\mathbf{j}(x + d, z) = \mathbf{j}(x, z) e^{i k_0 d} \quad (\text{IV.68})$$

Nous chercherons donc une solution de l'équation (IV.54) sous la forme :

$$\mathbf{j}(x, z) = \sum_n \mathbf{j}_n(z) e^{ia_n x} \quad (\text{IV.70})$$

Par ailleurs on peut développer  $k^2(x)$  en séries de Fourier :

$$k^2(x) = \sum_n c_n e^{in \frac{2p}{d} x} \quad (\text{IV.72})$$

Injectons les deux développements (IV.70) et (IV.72) dans l'équation (IV.54) :

$$\sum_n \frac{d^2 \mathbf{j}_{n(z)}}{dz^2} e^{ia_n x} - \sum_n \mathbf{a}_n^2 \mathbf{j}_{n(z)} e^{ia_n x} + \sum_m c_m e^{im \frac{2p}{d} x} \sum_n \mathbf{j}_{n(z)} e^{ia_n x} = 0 \quad (\text{IV.74})$$

Après projection de cette équation sur la base des  $e^{ia_n x}$ , nous obtenons un jeu d'équations valable quel que soit  $n$  :

$$\frac{d^2 \mathbf{j}_n(z)}{dz^2} = \mathbf{a}_n^2 \mathbf{j}_n(z) - \sum_m c_{n-m}(z) \mathbf{j}_m(z) \quad (\text{IV.76})$$

Afin de rendre de rendre le calcul plus lisible, nous introduisons une notation matricielle.

Soit  $\Phi$  le vecteur des  $\mathbf{j}_n$  défini par :

$$\Phi(z) = \begin{bmatrix} \mathbf{j}_{-N}(z) \\ \dots \\ \mathbf{j}_0(z) \\ \dots \\ \mathbf{j}_N(z) \end{bmatrix} \quad (\text{IV.78})$$

Soit  $\mathbf{V}$  la matrice dont les éléments sont définis par :

$$V_{n,m} = \mathbf{a}_n^2 \mathbf{d}_{n,m} - c_{n,m} \quad (\text{IV.80})$$

En utilisant les notations (IV.78) et (IV.80), les équations (IV.76) se réécrivent :

$$\frac{d^2 \Phi(z)}{dz^2} = \mathbf{V} \cdot \Phi(z) \quad (\text{IV.82})$$

Nous cherchons les solutions  $\Phi(z)$  sous la forme:

$$\Phi(z) = \mathbf{A} e^{ibz} \quad (\text{IV.84})$$

où  $\mathbf{A}$  est un vecteur de coefficients constants.

L'équation vectorielle (IV.82) devient une équation aux valeurs propres :

$$-b^2 \Phi = \mathbf{V} \Phi \quad (\text{IV.86})$$

Après résolution de cette équation aux valeurs propres, nous obtenons un jeu de valeurs propres  $\{\mathbf{b}_i\}$  et de vecteurs propres associés  $\{\mathbf{A}_i\}$ .

La fonction d'onde est alors donnée par une somme sur les modes propres :

$$\sum_n u_n \begin{bmatrix} A_{-N} \\ \dots \\ A_0 \\ \dots \\ A_N \end{bmatrix}_n \begin{bmatrix} e^{ia_{-N}x} & \dots & e^{ia_{+N}x} \end{bmatrix} e^{-ib_n z} + \sum_n d_n \begin{bmatrix} A_{-N} \\ \dots \\ A_0 \\ \dots \\ A_N \end{bmatrix}_n \begin{bmatrix} e^{ia_{-N}x} & \dots & e^{ia_{+N}x} \end{bmatrix} e^{+ib_n z} \quad (\text{IV.88})$$

où les paramètres à déterminer sont les  $u_n$  et les  $d_n$  qui donnent les amplitudes des modes propres d'excitation (up et down) de la fonction d'onde dans le grating. Pour déterminer ces amplitudes, il faut écrire les conditions de continuité de  $\mathbf{j}$  et de  $\nabla \mathbf{j}$  aux interfaces.

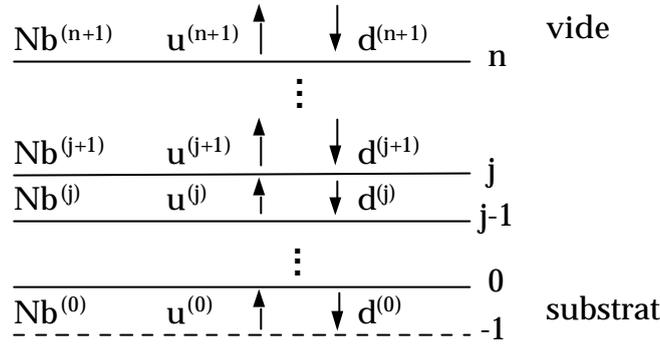


Figure 3 : grating discrétisé et notations associées.

Considérons l'interface entre la couche  $j$  et la couche  $j+1$ , les conditions aux limites s'écrivent :

$$\mathbf{j}_j(z_j) = \mathbf{j}_{j+1}(z_j) \quad (\text{IV.90})$$

$$\left( \frac{\mathcal{U}_j}{\mathcal{I}z} \right)_{z_j} = \left( \frac{\mathcal{U}_{j+1}}{\mathcal{I}z} \right)_{z_j} \quad (\text{IV.92})$$

La forme (IV.88) de la fonction d'onde peut s'écrire :

$$\sum_n u_n e^{ib_n z} \sum_i [A]_{n,i} e^{ia_i x} + \sum_n d_n e^{-ib_n z} \sum_i [A]_{n,i} e^{ia_i x} = \sum_i e^{ia_i x} \left( \sum_n u_n e^{ib_n z} [A]_{n,i} + d_n e^{-ib_n z} [A]_{n,i} \right) \quad (\text{IV.94})$$

A la limite entre deux couches l'égalité de la fonction d'onde (et de  $grad_z$ ) doit être vérifiée quel que soit  $x$ . Après projection sur la base des  $e^{ia_i x}$ , les conditions de continuité donnent un jeu d'équations qui doit être vérifié quel que soit  $i$  :

*N.B. : les indices en superscript désignent l'indice de la couche considérée.*

$$\sum_n u_n^j e^{ib_n^j z} [A]_{n,i}^j + d_n^j e^{-ib_n^j z} [A]_{n,i}^j = \sum_n u_n^{j+1} e^{ib_n^{j+1} z} [A]_{n,i}^{j+1} + d_n^{j+1} e^{-ib_n^{j+1} z} [A]_{n,i}^{j+1} \quad (\text{IV.96})$$

$$\sum_n u_n^j \mathbf{b}_n^j e^{ib_n^j z} [A]_{n,i}^j - d_n^j \mathbf{b}_n^j e^{-ib_n^j z} [A]_{n,i}^j = \sum_n u_n^{j+1} \mathbf{b}_n^{j+1} e^{ib_n^{j+1} z} [A]_{n,i}^{j+1} - d_n^{j+1} \mathbf{b}_n^{j+1} e^{-ib_n^{j+1} z} [A]_{n,i}^{j+1} \quad (\text{IV.98})$$

Une notation matricielle rend les équations plus lisibles :

$$W^j \begin{bmatrix} [u]^j \\ [d]^j \end{bmatrix} = W^{j+1} \begin{bmatrix} [u]^{j+1} \\ [d]^{j+1} \end{bmatrix} \quad (\text{IV.100})$$

où les  $[u]$  et  $[d]$  désignent les vecteurs de composantes  $u_n$  et  $d_n$  et les matrices  $W$  sont définies par :

$$\mathbf{W} = \begin{bmatrix} [A]_{-N} & \dots & [A]_N & [A]_{-N} & \dots & [A]_N \\ \mathbf{b}_{-N}[A]_{-N} & \dots & \mathbf{b}_N[A]_N & -\mathbf{b}_{-N}[A]_{-N} & \dots & -\mathbf{b}_N[A]_N \end{bmatrix}$$

La matrice de propagation de l'interface  $j-1$  à l'interface  $j$  s'écrit :

$$\mathbf{L} = \begin{bmatrix} [I_{n,p}^u] & [0] \\ [0] & [I_{n,p}^d] \end{bmatrix} \quad (\text{IV.102})$$

avec 
$$I_{n,p}^u = \mathbf{d}_{np} e^{i\mathbf{b}_n(z_j - z_{j-1})} \quad \text{et} \quad I_{n,p}^d = \mathbf{d}_{np} e^{-i\mathbf{b}_n(z_j - z_{j-1})} \quad (\text{IV.104})$$

En principe le problème peut se résoudre en utilisant la formule de récursion classique :

$$\begin{bmatrix} [u]^{vide} \\ [d]^{vide} \end{bmatrix} = \mathbf{W}^{n+1-1} \cdot \left( \prod_{j=1}^n \mathbf{W}^j \cdot \mathbf{L}^j \cdot \mathbf{W}^{j-1} \right) \cdot \mathbf{W}^0 \begin{bmatrix} [u]^{substrat} \\ [d]^{substrat} \end{bmatrix} \quad (\text{IV.106})$$

Cependant dans le cas du problème de la diffraction par un réseau, les solutions numériques ne sont pas stables. Ceci est dû au fait que les matrices de propagation font intervenir des exponentielles croissantes dans le cas de modes évanescents et des termes mal définis du type  $(\infty - \infty)$  qui engendrent des pertes de précision très rapides.

Pour s'affranchir de ces problèmes numériques, une méthode efficace est d'utiliser l'algorithme S-matrix (L. Li, 1996). Une description plus détaillée de l'algorithme S-matrix utilisé pour l'implémentation numérique peut être trouvée dans l'Annexe D. Elle permet d'obtenir une relation de la forme :

$$\begin{bmatrix} [u]^{vide} \\ [d]^{substrat} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} T_{uu} & R_{ud} \\ R_{du} & T_{dd} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} [u]^{substrat} \\ [d]^{vide} \end{bmatrix} \quad (\text{IV.108})$$

où les termes  $T_{uu}$ ,  $T_{dd}$ ,  $R_{du}$  et  $R_{ud}$  sont obtenus par des formules de récursion ne faisant pas intervenir d'exponentielles croissantes. Toutes les matrices restent d'ordre  $O(1)$  et il n'y a pas de problèmes de stabilité numérique. Cet algorithme peut a priori s'appliquer à des gratings très profonds.

## 2. Cas magnétique.

Nous allons nous intéresser au problème de la diffraction de neutrons sur un réseau magnétique périodique dans le plan d'une couche mince. Ce réseau peut être créé soit artificiellement par gravure de motifs dans des couches magnétiques ou bien s'organiser naturellement (domaines magnétiques en lignes par ex.).

Dans ces deux cas, les champs magnétiques dipolaires rayonnés deviennent non négligeables. De plus l'interaction magnétique du neutron avec la couche magnétique va aussi dépendre de l'aimantation perpendiculaire au plan de la couche (le calcul de l'annexe A) ne s'applique plus si la couche magnétique n'est pas continue).

Pour tenir compte de ces champs dipolaires, nous allons appliquer le même principe que dans le paragraphe précédent, c'est à dire que nous allons subdiviser l'espace en tranches dans lesquelles nous pourrions considérer que le potentiel d'interaction est seulement fonction de  $(Ox)$ . Dans les zones situées au-dessus et en-dessous des motifs magnétiques et où les champs dipolaires ne sont pas négligeables, nous introduisons des tranches supplémentaires permettant de tenir compte de ces champs magnétiques dipolaires.

Le potentiel d'interaction neutron-matière s'écrit :

$$V(\mathbf{r}) = \frac{2p\hbar^2}{m} \mathbf{r}b(\mathbf{r}) - g_n \mathbf{m}_h \vec{s} \cdot \vec{H}(\mathbf{r}) \quad (\text{IV.110})$$

où le potentiel d'interaction chimique  $b(\mathbf{r})$  est une fonction périodique suivant  $(Ox)$  et l'interaction magnétique fait intervenir un champ  $H(\mathbf{r})$  lui aussi périodique et qui inclut le champ extérieur appliqué  $H_0$ , le champ dipolaire créé par les motifs magnétiques et l'aimantation du matériau.

A l'extérieur des motifs magnétiques :

$$H(\mathbf{r}) = H_0 + H_{dip}(\mathbf{r}) \quad (\text{IV.112})$$

A l'intérieur des motifs magnétiques :

$$H(\mathbf{r}) = H_0 + M(\mathbf{r}) \cdot (1 - D(\mathbf{r})) \mathbf{e}_z \quad (\text{IV.114})$$

*N.B.*: en général le facteur démagnétisant  $D(\mathbf{r})$  n'est pas constant dans le matériau magnétique.

Les Figure 6 et Figure 7 montrent l'amplitude des champs dipolaires dans le cas de la configuration magnétique décrite sur la Figure 4. Les amplitudes des champs dipolaires sont très importantes; pour connaître le potentiel d'interaction neutron-motifs magnétiques, il est impératif de calculer les champs dipolaires.

a) *Exemples de champs dipolaires dans une configuration modèle.*

La Figure 4 montre une configuration magnétique possible entre des lignes magnétiques (lignes perpendiculaires au plan de la figure, section des lignes de  $1\ \mu\text{m}$  de largeur x  $0.5\ \mu\text{m}$  d'épaisseur). On a supposé que le matériau magnétique présente une anisotropie perpendiculaire.

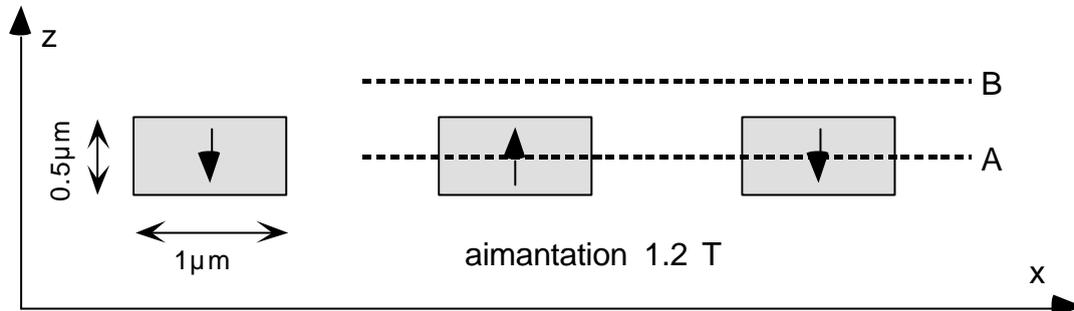


Figure 4: coupe perpendiculairement à un réseau de lignes à aimantation perpendiculaire ; deux lignes de coupe sont indiquées par les lignes pointillées A et B.

La Figure 5 montre l'intensité du champ dipolaire autour des lignes. On constate que l'amplitude du champ dipolaire est encore très importante dans une région de l'ordre de  $0.5\ \mu\text{m}$  autour des lignes. Les Figure 6 et Figure 7 montrent les valeurs du champ dipolaire suivant les deux sections de coupes indiquées sur la Figure 4.

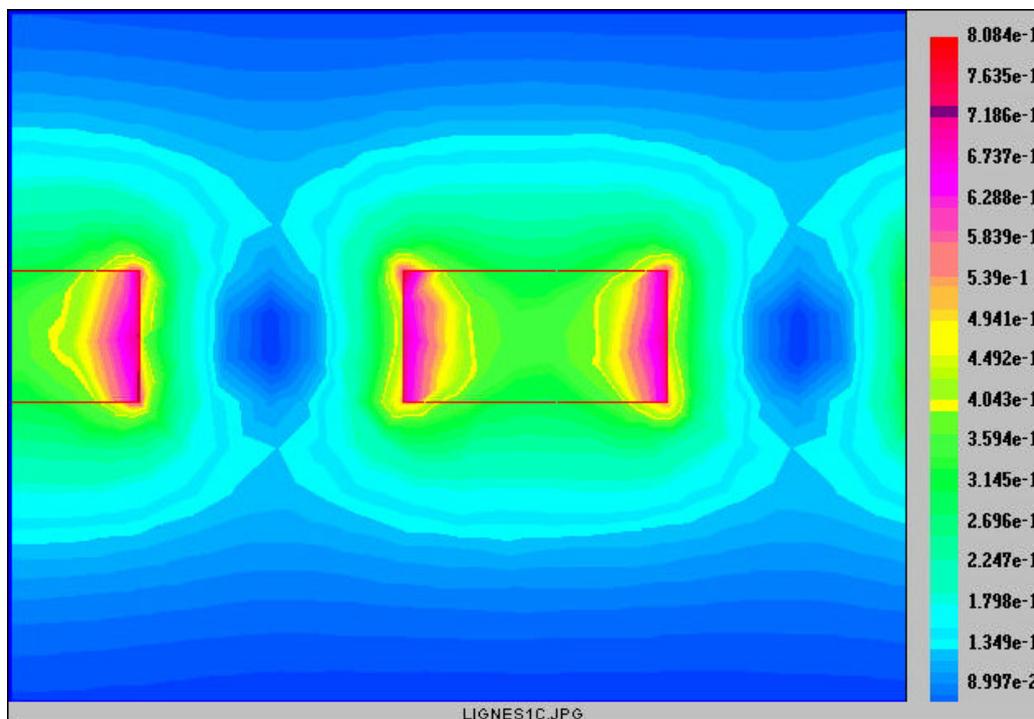


Figure 5 : champ magnétique dipolaire autour et à l'intérieur des lignes décrites sur la Figure 4.

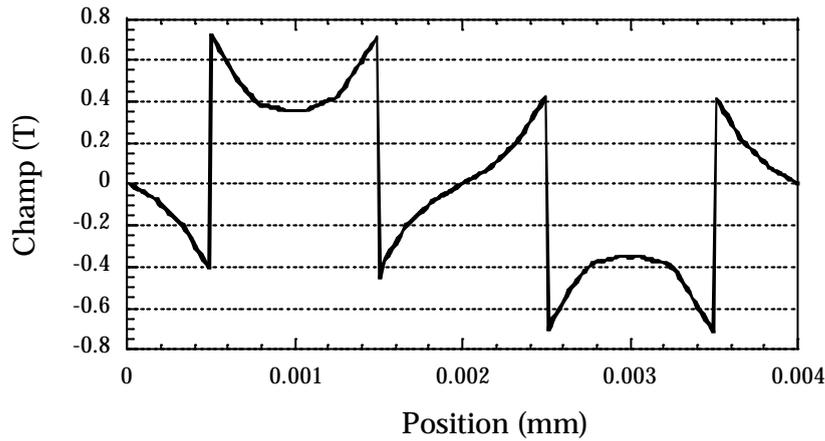


Figure 6: variation de la composante Hz du champ magnétique le long de la section de coupe A indiquée sur la Figure 4.

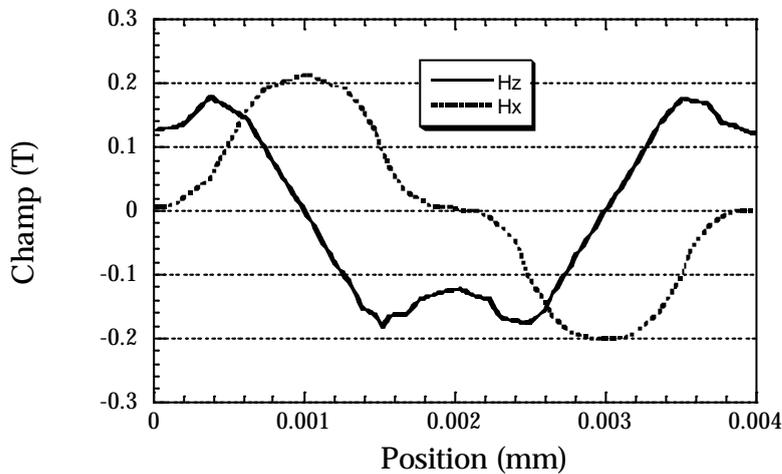


Figure 7: variation des deux composantes Hx et Hz du champ magnétique le long de la section de coupe B indiquée sur la Figure 4.

b) *Formalisme de calcul de la diffraction sur un réseau magnétique.*

Reprenons l'équation de Schrödinger stationnaire :

$$\Delta \mathbf{j} - \frac{2m}{\hbar^2} (V(\mathbf{r}) - E) \mathbf{j} = 0 \quad (\text{IV.116})$$

où  $V(\mathbf{r})$  désigne le potentiel (IV.110).

Pour simplifier les notations nous posons :

$$\begin{aligned} \frac{2m}{\hbar^2} V_{\text{nucléaire}} &= 4prb \\ \frac{2m}{\hbar^2} V_{\text{magnétique}} &= a \vec{\mathbf{s}} \cdot \vec{\mathbf{H}} \end{aligned} \quad (\text{IV.118})$$

L'équation de Schrödinger devient :

$$\begin{aligned} \left( \nabla^2 + \frac{2mE}{\hbar^2} - 4\text{prb}(\mathbf{r}) - aH_z(\mathbf{r}) \right) \mathbf{j}_+(\mathbf{r}) + (-aH_x(\mathbf{r}) + i aH_y(\mathbf{r})) \mathbf{j}_-(\mathbf{r}) &= 0 \\ \left( \nabla^2 + \frac{2mE}{\hbar^2} - 4\text{prb}(\mathbf{r}) + aH_z(\mathbf{r}) \right) \mathbf{j}_-(\mathbf{r}) + (-aH_x(\mathbf{r}) - i aH_y(\mathbf{r})) \mathbf{j}_+(\mathbf{r}) &= 0 \end{aligned} \quad (\text{IV.120})$$

Le potentiel est périodique de période  $d$ . De la même manière que dans le cas non magnétique nous chercherons des solutions de la forme :

$$\begin{aligned} \mathbf{j}_+(x, z) &= \sum_n \mathbf{j}_n^+(z) e^{i a_n x} \\ \mathbf{j}_-(x, z) &= \sum_n \mathbf{j}_n^-(z) e^{i a_n x} \end{aligned} \quad (\text{IV.122})$$

où

$$\mathbf{a}_n = \mathbf{a}_n^\pm = \mathbf{a}_0^\pm + n \frac{2\mathbf{p}}{d} \quad (\text{IV.124})$$

avec  $\mathbf{a}_0^\pm$  défini par :

$$\mathbf{a}_0^\pm = k_{0//}^\pm = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} E \pm \frac{2m g \mathbf{m}_h}{\hbar^2} H_{0//}} \quad (\text{IV.126})$$

Les signes + et - correspondent respectivement à des neutrons incidents “up ” et “down ”.

Pour simplifier l'écriture des équations nous introduisons :

$$\begin{aligned} c^{a+} &= \frac{2mE}{\hbar^2} - 4\text{prb}(x) - aH_z(x) \\ c^{a-} &= -aH_x(x) + i aH_y(x) \\ c^{b+} &= -aH_x(x) - i aH_y(x) \\ c^{b-} &= \frac{2mE}{\hbar^2} - 4\text{prb}(x) + aH_z(x) \end{aligned} \quad (\text{IV.128})$$

Ces quatre coefficients  $c$  sont des fonctions périodiques de période  $d$ . Nous les développons en séries de Fourier :

$$c(x) = \sum_n c_n e^{i n \frac{2\mathbf{p}}{d} x} \quad (\text{IV.130})$$

Nous introduisons les développements de  $\mathbf{j}^+$ ,  $\mathbf{j}^-$  et des  $c$  dans les équations couplées (IV.120) et on projette ces équations sur la base des  $e^{i a_n x}$ . On obtient le système suivant :

$$\begin{aligned} \frac{d^2 \mathbf{j}_n^+}{dz^2} - \mathbf{a}_n^2 \mathbf{j}_n^+ + \sum_m c_{n-m}^{a+} \mathbf{j}_m^+ + \sum_m c_{n-m}^{a-} \mathbf{j}_m^- &= 0 \\ \frac{d^2 \mathbf{j}_n^-}{dz^2} - \mathbf{a}_n^2 \mathbf{j}_n^- + \sum_m c_{n-m}^{b+} \mathbf{j}_m^+ + \sum_m c_{n-m}^{b-} \mathbf{j}_m^- &= 0 \end{aligned} \quad (\text{IV.132})$$

Nous définissons le vecteur :

$$\Phi = \begin{pmatrix} \mathbf{j}_n^+(z) \\ \mathbf{j}_n^-(z) \end{pmatrix} \quad (\text{IV.134})$$

Nous définissons la matrice V :

$$V = \begin{pmatrix} [\mathbf{a}_n^2 \mathbf{d}_{n,m} - c_{n-m}^{a+}] & [-c_{n-m}^{a-}] \\ [-c_{n-m}^{b+}] & [\mathbf{a}_n^2 \mathbf{d}_{n,m} - c_{n-m}^{b-}] \end{pmatrix} \quad (\text{IV.136})$$

On cherche les solutions du système (IV.132) sous la forme :

$$\begin{aligned} \mathbf{j}_n^+(z) &= [\mathbf{j}_n^+] e^{ibz} \\ \mathbf{j}_n^-(z) &= [\mathbf{j}_n^-] e^{ibz} \end{aligned} \quad (\text{IV.138})$$

Le système d'équation (IV.132) se réécrit alors sous la forme matricielle élégante :

$$-\mathbf{b}^2 \Phi = V \cdot \Phi \quad (\text{IV.140})$$

N.B.: la matrice V est hermitique.

Après résolution de cette équation aux valeurs propres nous obtenons un jeu de valeurs propres  $\{\mathbf{b}_i\}$  et de vecteurs propres associés  $\{\mathbf{A}_i\}$  (les vecteurs  $\mathbf{A}_i$  se décomposent en deux sous-parties ( $\mathbf{A}_i^+$  et  $\mathbf{A}_i^-$ )) :

$$\mathbf{A}_i = \begin{pmatrix} \mathbf{A}_i^+ \\ \mathbf{A}_i^- \end{pmatrix} \quad (\text{IV.142})$$

Les deux spineurs s'écrivent :

$$\begin{aligned} \mathbf{j}^+ &= \sum_n u_n \mathbf{A}_n^+ [e^{ia_{-N}x} \quad \dots \quad e^{ia_{+N}x} \quad e^{ia_{-N}x} \quad \dots \quad e^{ia_{+N}x}] e^{+i b_n z} \\ &+ \sum_n d_n \mathbf{A}_n^+ [e^{ia_{-N}x} \quad \dots \quad e^{ia_{+N}x} \quad e^{ia_{-N}x} \quad \dots \quad e^{ia_{+N}x}] e^{+i b_n z} \end{aligned} \quad (\text{IV.144})$$

$$\begin{aligned} \mathbf{j}^- &= \sum_n u_n \mathbf{A}_n^- [e^{ia_{-N}x} \quad \dots \quad e^{ia_{+N}x} \quad e^{ia_{-N}x} \quad \dots \quad e^{ia_{+N}x}] e^{+i b_n z} \\ &+ \sum_n d_n \mathbf{A}_n^- [e^{ia_{-N}x} \quad \dots \quad e^{ia_{+N}x} \quad e^{ia_{-N}x} \quad \dots \quad e^{ia_{+N}x}] e^{+i b_n z} \end{aligned} \quad (\text{IV.146})$$

que l'on peut mettre sous la forme :

$$\begin{aligned} \mathbf{j}^+ &= \sum_{i=-N}^N e^{ia_i x} \left( \sum_{n=1}^{2N+1} u_n e^{+i b_n z} [\mathbf{A}_n^+]_i + d_n e^{-i b_n z} [\mathbf{A}_n^+]_i \right) \\ \mathbf{j}^- &= \sum_{i=-N}^N e^{ia_i x} \left( \sum_{n=1}^{2N+1} u_n e^{+i b_n z} [\mathbf{A}_n^-]_i + d_n e^{-i b_n z} [\mathbf{A}_n^-]_i \right) \end{aligned} \quad (\text{IV.148})$$

Soit à déterminer les vecteurs  $u_n$  et  $d_n$ . Ces deux vecteurs sont de longueur  $2N+1$ . Pour déterminer ces vecteurs il faut utiliser la continuité de  $\mathbf{j}^+$ ,  $\mathbf{j}^-$ ,  $\nabla \mathbf{j}^+$  et  $\nabla \mathbf{j}^-$  aux interfaces.

Soit  $\mathbf{A}$  la matrice des vecteurs propres; soit B une matrice diagonale contenant les valeurs propres  $\mathbf{b}_i$ . On définit la matrice  $\mathbf{W}$  telle que :

$$\mathbf{W} = \begin{bmatrix} \mathbf{A} & \mathbf{A} \\ \mathbf{A} \cdot \mathbf{B} & -\mathbf{A} \cdot \mathbf{B} \end{bmatrix} \quad (\text{IV.150})$$

A l'interface  $j:j+1$ , la continuité doit être vérifiée quel que soit  $x$ . Après projection sur les  $e^{jax}$ , les conditions de continuité s'écrivent :

$$\mathbf{W}^j \cdot \begin{bmatrix} \mathbf{u}^j \\ \mathbf{d}^j \end{bmatrix} = \mathbf{W}^{j+1} \cdot \begin{bmatrix} \mathbf{u}^{j+1} \\ \mathbf{d}^{j+1} \end{bmatrix} \quad (\text{IV.152})$$

A partir de ce point nous pouvons appliquer l'algorithme S-matrix de la même manière que dans le cas non magnétique.

c) *Problèmes de convergence et troncature du système.*

Dans le développement formel précédent, la résolution complète du problème suppose des développements pour  $n$  variant de  $-\infty$  à  $+\infty$ . Lors de l'implémentation numérique il est évidemment nécessaire de tronquer le système à un ordre  $N$ . Dans le cas de la diffraction de neutrons, les modes diffractés sont peu intenses et les résultats numériques convergent pour des ordres de développement peu élevés (typiquement  $N=10$ ) . De ce fait les temps de calcul ne sont pas prohibitifs.

## **C. Techniques de lithographie de réseaux.**

### *1. Principe de la technique.*

Je vais décrire la technique de lithographie optique que j'ai utilisée pour réaliser des gravures sur des substrats et sur des supermiroirs de neutrons.

#### *Préparation des substrats.*

Les substrats sont nettoyés de toute contamination organique par un nettoyage aux ultrasons dans différents bains de solvants. On leur fait subir une déshydratation en les chauffant à 120° pendant 15 minutes afin de faire disparaître toute trace d'humidité adsorbée en surface.

#### *Dépôt de la résine photosensible.*

Le dépôt de la résine est effectué par "spin coating". La résine utilisée est de type Hoechst modèle AZ5206 ou Shipley 1400. Le "spin coating" est réalisé à des vitesses situées entre 2000 et 3000 tours/minutes. Cela permet de déposer des épaisseurs de résine entre 600 nm et 2 µm. La résine est ensuite chauffée à 80° pendant une dizaine de minutes afin de faire disparaître toute trace de solvant. Cela a pour effet de la densifier. Les températures de recuit ne sont pas trop élevées afin de ne pas réduire la sensibilité de la résine. Par ailleurs ce léger recuit améliore l'adhésion de la résine sur le substrat.

#### *Insolation de la résine.*

L'échantillon est ensuite insolé pendant quelques dizaines de secondes à des longueurs d'onde U.V. entre 300 et 350 nm. Le motif que l'on souhaite transposer est dessiné sur un masque en chrome déposé sur quartz. La taille des masques est de 50x50 mm. Celui-ci est plaqué mécaniquement sur l'échantillon et l'insolation se fait à travers le masque.

#### *Développement de la résine.*

Le développeur utilisé est de type AZ351. Le développement dure une dizaine de secondes. Il est suivi d'un rinçage et d'un deuxième recuit (120° pendant 30 minutes) qui va augmenter la stabilité de l'image et de l'adhésion. Le recuit augmente aussi la résistance à la gravure par plasma et à la gravure chimique.

#### *Gravure des réseaux.*

En fonction du matériau que l'on souhaite graver, plusieurs techniques de gravure peuvent être envisagées : gravure chimique, gravure ionique ou gravure ionique réactive (RIE). Le choix de la technique dépend à la fois des matériaux que l'on souhaite graver et des résolutions que l'on souhaite obtenir. La gravure chimique est simple et rapide mais ne permet pas d'atteindre des résolutions submicroniques. La gravure ionique réactive n'est adaptée qu'à certains matériaux. La gravure ionique sèche est adaptée à presque tous les matériaux mais est plus lente et non sélective.

Les couches de nickel peuvent être gravées chimiquement dans une solution de  $\text{FeCl}_3$ . Les supermiroirs de neutrons ont été gravés par gravure ionique à l'argon. Cette technique consiste à bombarder l'échantillon par un jet d'atomes d'argon et à enlever mécaniquement les parties de l'échantillon non "protégées" par un motif de résine. Les vitesses de gravures sont typiquement de l'ordre de 20 à 50 nm par minute pour les métaux usuels sous un flux de 1mA par  $\text{cm}^2$ . Ainsi dans le cas de multicouches Ni/Ti, le temps de gravure est d'environ 30 minutes pour graver une épaisseur d'environ 600 nm.

#### Nettoyage des échantillons.

Les échantillons sont ensuite nettoyés pour enlever toute trace de résine résiduelle (Remover 1165 par ex.). Les résines peuvent être fortement durcies par la gravure ionique et le nettoyage peut exiger des solvants puissants (du type N-méthyle pyrrolidinone, NMP)

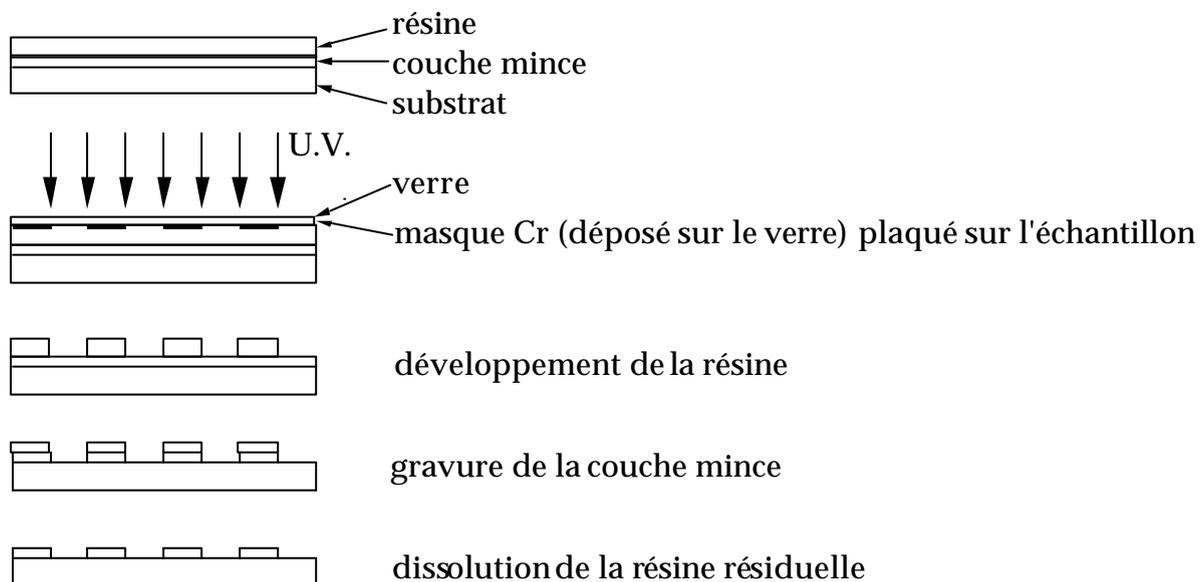


Figure 1 : résumé du processus de gravure par lithographie optique.

Par ces techniques de lithographie optique U.V., la meilleure résolution que l'on peut atteindre est de  $0.5 \mu\text{m}$  (dans des conditions standard de travail). Les résolutions maximales atteintes aujourd'hui dans l'industrie du semi-conducteur sont de l'ordre de  $0.2 \mu\text{m}$ .

## 2. Résultats expérimentaux.

J'ai effectué des gravures sur différents types de couches minces et de substrats (nickel, verre, titane) ainsi que sur des supermiroirs  $2q_c$  et  $3q_c$  fabriqués au PSI dans le groupe de P. Böni. Un des problèmes expérimental est l'homogénéité de l'épaisseur de résine déposée par spin coating. Cependant on peut considérer que

l'on obtient une épaisseur de résine variant seulement de 20% entre les différentes parties de l'échantillon. Un autre problème expérimental est lié à l'homogénéité de l'insolation aux U.V. En effet, des effets d'interférences dus aux motifs des lignes peuvent créer une modulation spatiale de l'intensité des rayons U.V. lors de l'insolation. L'insolation de la résine n'est alors pas totalement homogène et conduit lors du développement à des effets de franges de résine d'épaisseur variable sur la surface de l'échantillon (Figure 2). Par ailleurs, un problème particulier à notre dispositif expérimental de gravure ionique est que la forme faisceau d'ions est un cercle dont le diamètre est environ 1 cm et dont l'homogénéité se dégrade au delà. Cela limite le procédé de gravure à des échantillons dont la taille maximale est de 1 cm<sup>2</sup>. Dans le cas d'échantillons plus grands, la vitesse de gravure ne sera pas homogène sur tout l'échantillon.

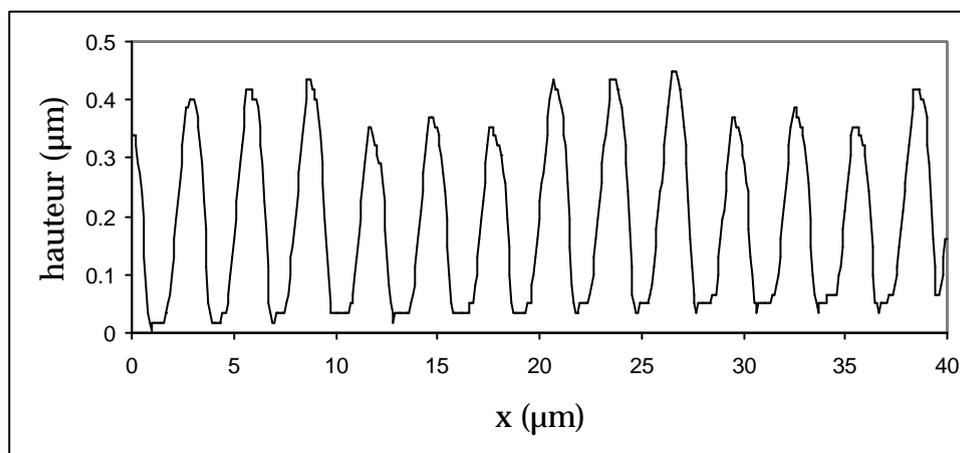


Figure 2 : modulation long distance de la hauteur des motifs de résine due aux interférences lumineuses créées par le masque.

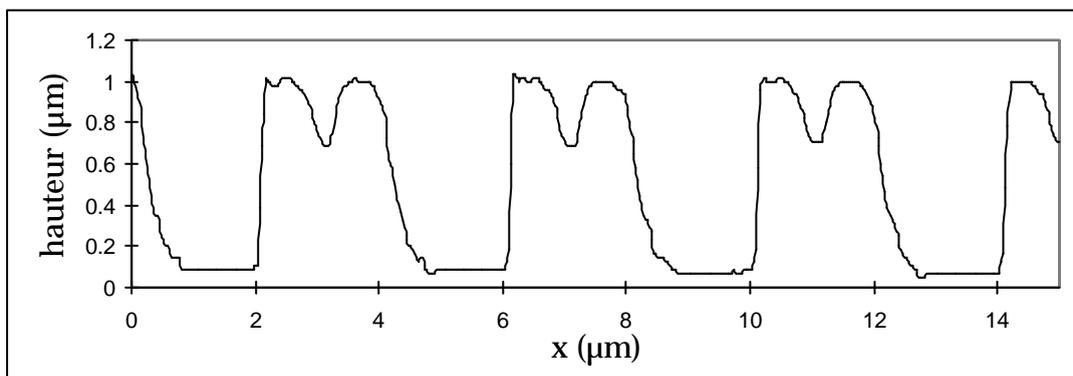


Figure 3 : conséquence de la diffraction lumineuse à travers le masque dès que l'on approche des résolutions micrométriques. Les franges de diffraction font que les milieux de lignes sont aussi insolés.

Les Figure 4 et Figure 6 présentent des images mesurées par microscopie à force atomique avant et après la gravure ionique. A partir de motifs de résine de 0.8  $\mu\text{m}$  d'épaisseur il est possible de transférer des motifs de 0.5  $\mu\text{m}$  d'épaisseur dans la couche mince tout en gardant une forme de ligne satisfaisante même si en général les flancs des lignes gravées sont moins abrupts que ceux des motifs de résine.

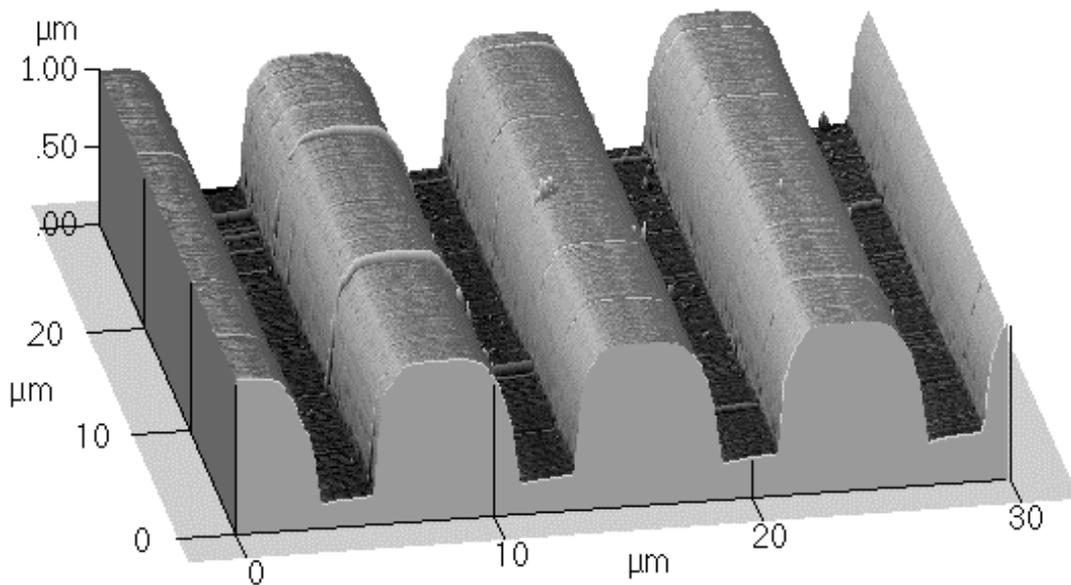


Figure 4 : motif de lignes juste après développement de la résine.

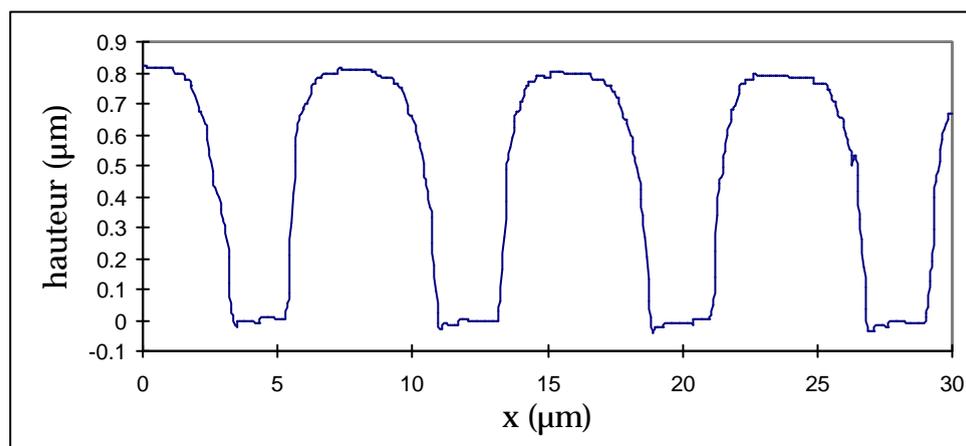


Figure 5 : profil des lignes de résine présentées sur la Figure 4.

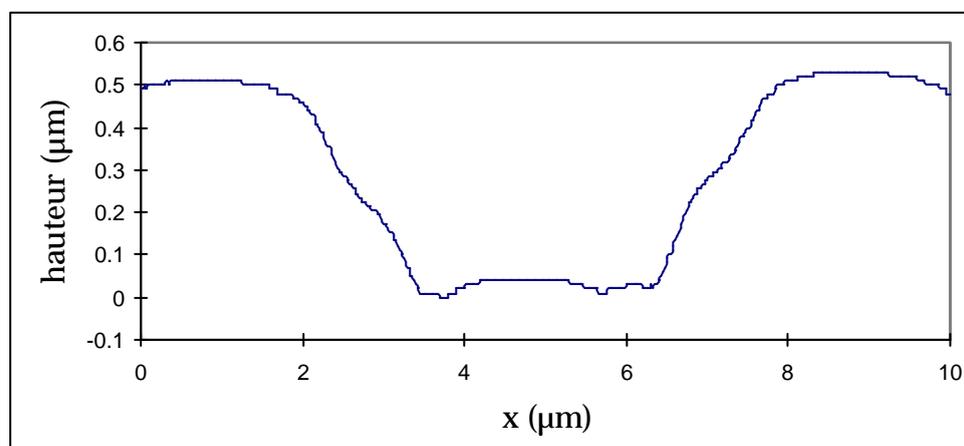


Figure 6 : profil des lignes après 45 min de gravure ionique. L'épaisseur estimée de gravure est de 600 nm. Après cette opération de gravure, les flancs des lignes sont moins abrupts que ceux du motif de départ en résine.

Dans certains cas de gravures ioniques très longues, des phénomènes de surgravure peuvent apparaître (voir Figure 7 et Figure 8) . Aux pieds des lignes apparaissent alors des tranchées et la forme des lignes peut être très altérée par rapport au profil rectangulaire espéré.

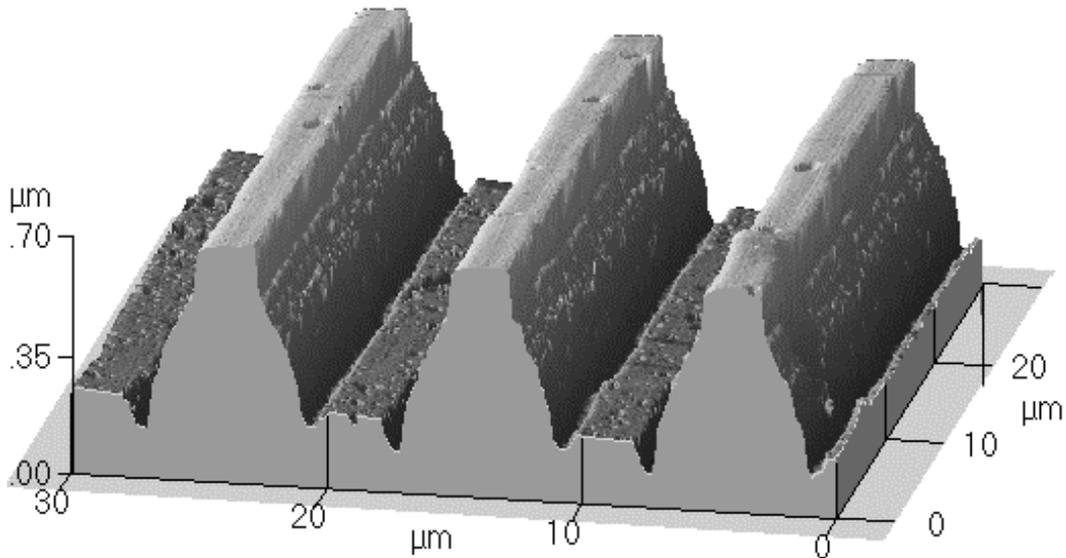


Figure 7 : dans certains cas, le phénomène de surgravure au pied des lignes peut être très important. La figure montre un échantillon ayant subi une gravure de 1 heure.

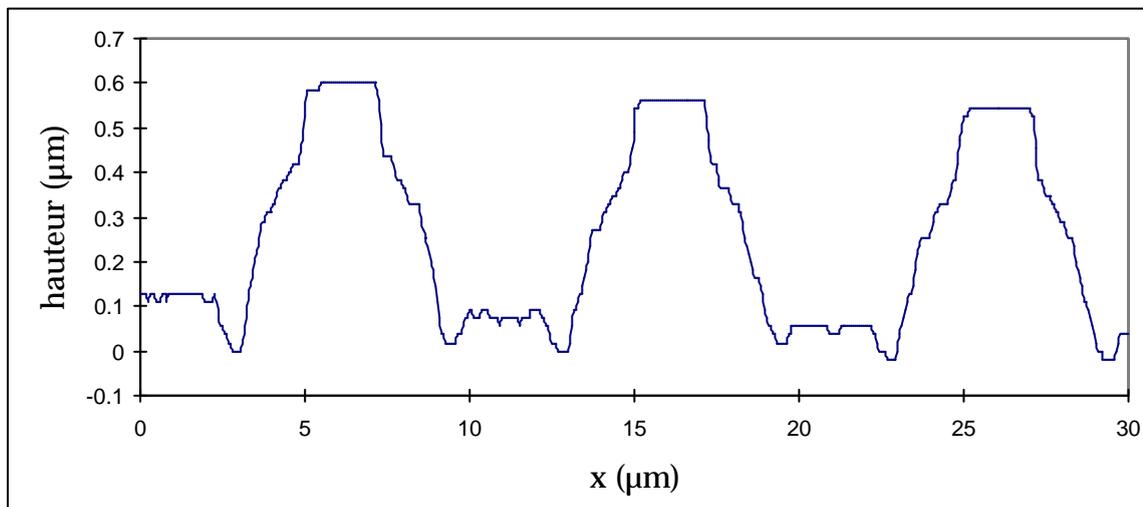


Figure 8 : profil de l'échantillon gravé pendant 1 heure.

Les réseaux de lignes sur lesquels des mesures expérimentales de diffusion hors spéculaire ont été réalisées (voir partie suivante) ont été fabriqués en utilisant différentes techniques de gravure. J'ai utilisé la gravure ionique réactive et la gravure chimique pour les systèmes de couches simples. La gravure ionique sèche a été utilisée pour la gravure de supermiroirs à neutrons en structure multicouches. La périodicité des motifs gravés varie de 2 à 10 µm.

## D. Utilisation de réflectomètres en diffusion hors spéculaire.

Dans ce paragraphe nous allons décrire les différentes techniques de mesures hors spéculaire en réflectivité de neutrons.

### 1. Géométrie de diffusion hors spéculaire.

En diffusion hors spéculaire, le vecteur de diffusion  $\mathbf{q}$  n'est plus aligné le long de l'axe (Oz), une composante  $q_x$  apparaît. La Figure 1 définit la géométrie de diffusion.

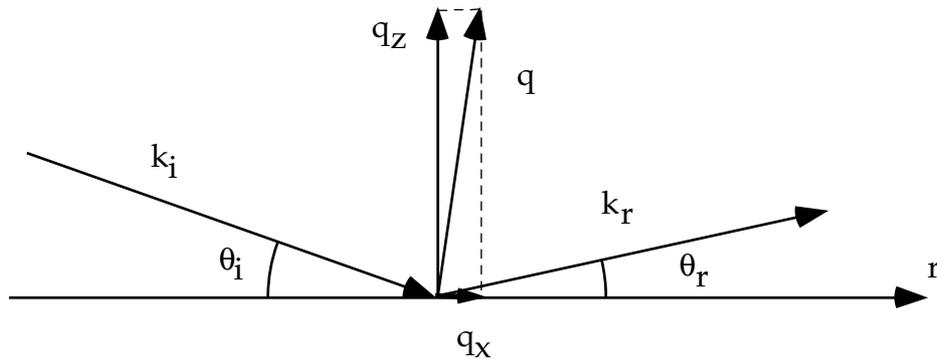


Figure 1 : géométrie de diffusion non spéculaire. Le vecteur de diffusion  $\mathbf{q}$  possède une composante  $q_x$ .

Les composantes du vecteur de diffusion  $\mathbf{q}$  sont données par :

$$\begin{aligned} q_z &= \frac{4\pi}{\lambda} \sin\left(\frac{\theta_i + \theta_r}{2}\right) \cos\left(\frac{\theta_i - \theta_r}{2}\right) \\ q_x &= \frac{4\pi}{\lambda} \sin\left(\frac{\theta_i + \theta_r}{2}\right) \sin\left(\frac{\theta_i - \theta_r}{2}\right) \end{aligned} \quad (\text{IV.79})$$

### 2. Condition de diffraction.

Dans le cas de la réflexion spéculaire :

$$\theta_r = \theta_i, \quad (\text{IV.81})$$

et le vecteur de diffusion est donné par :

$$q_z = \frac{4\pi}{\lambda} \sin(\theta_i). \quad (\text{IV.83})$$

Considérons le cas de la diffusion hors spéculaire induite par un motif périodique de période  $d$  dans le plan de l'échantillon. La composante  $q_x$  du vecteur de diffusion est donnée par :

$$q_x = -m \frac{2\pi}{d} \quad (\text{IV.85})$$

où  $m$  est l'indice du mode de diffraction.

N.B. : les modes de diffraction pour lesquels  $\theta_r < \theta_i$  sont indicés par des entiers négatifs ; les modes de diffraction pour lesquels  $\theta_r > \theta_i$  sont indicés par des entiers positifs.

Les équations (IV.79) et (IV.83) donnent immédiatement la relation entre la longueur d'onde du neutron incident et les directions de diffraction :

(les angles  $\theta_i$  et  $\theta_r$  sont petits et donc on peut développer les  $\sin$  et  $\cos$  au 1<sup>er</sup> ordre)

$$\pm m\lambda = \frac{d}{2} (\theta_i^2 - \theta_r^2) \quad (\text{IV.87})$$

La Figure 2 montre la variation de la direction de diffraction des pics d'ordre 1 par rapport à la direction spéculaire, en fonction de la périodicité du réseau et pour différentes conditions d'angle d'incidence.

Les courbes montrent que si l'on veut observer des pics de diffraction proches du pic spéculaire ( $\theta_r - \theta_i < 0.4^\circ$ ) afin d'obtenir des intensités de diffraction relativement importantes, il faut travailler sur des réseaux de grande périodicité ( $d > 10 \mu\text{m}$ ). Les pics de diffraction apparaissent dans des directions très éloignées de la diffraction spéculaire ( $\theta_r - \theta_i > 1^\circ$ ) pour des périodicités inférieures à  $4 \mu\text{m}$ . Leurs intensités seront très faibles.

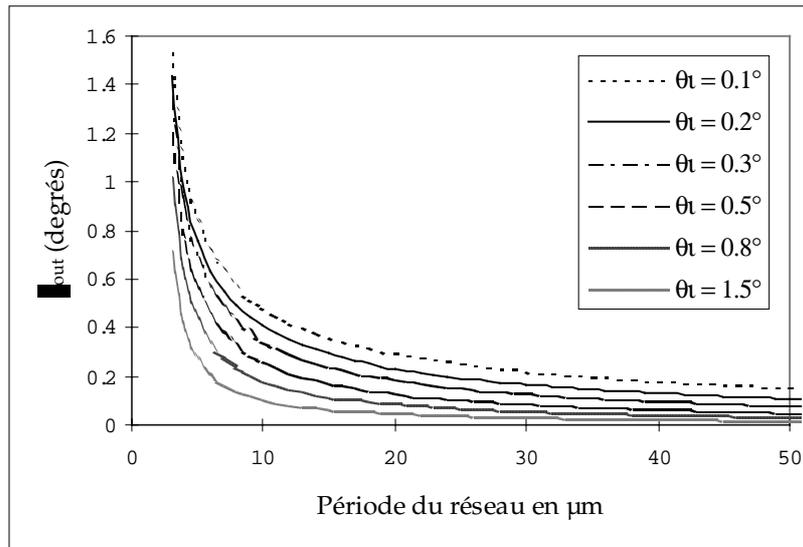


Figure 2 : angle de diffraction ( $\theta_r - \theta_i$ ) par rapport à la direction spéculaire en fonction de la périodicité du réseau pour différentes conditions d'angle d'incidence.

### 3. Augmentation de la période effective d'un réseau.

Il est possible d'ajuster la période effective du réseau en l'inclinant par rapport à la direction du plan d'incidence. Cela permet d'ajuster la direction du pic de diffraction et de le rapprocher du pic de diffusion spéculaire afin d'augmenter les intensités diffractées. Cette technique est utile étant donnés les flux relativement modestes disponibles en neutrons. La Figure 3 illustre cette technique d'augmentation de la période effective.

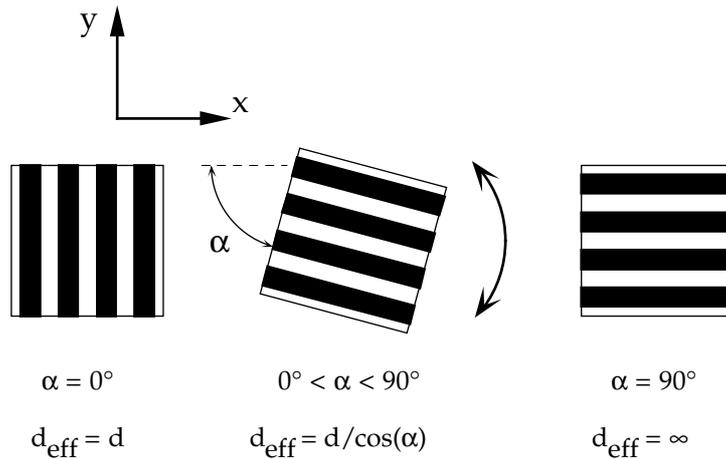


Figure 3 : augmentation de la période effective par rotation du réseau par rapport à la direction du faisceau incident (le plan d'incidence du faisceau est  $(xOz)$ ).  $d$  est la période du réseau,  $\alpha$  est l'angle de rotation et  $d_{\text{eff}}$  est la période effective.

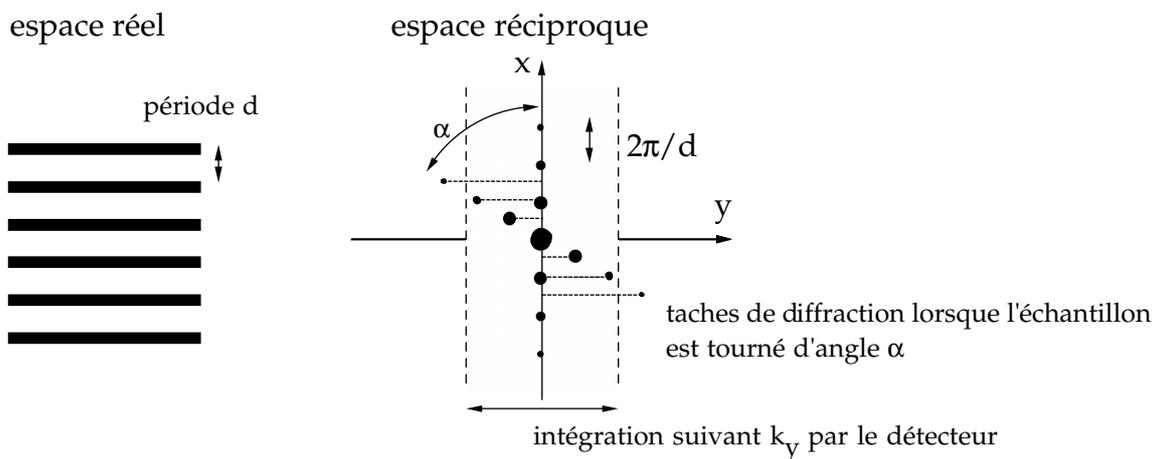


Figure 4 : figure de diffraction d'un réseau de lignes tourné d'un angle  $\alpha$  (voir Figure 3).

Le système de détection du spectromètre est tel qu'il n'y a pas de collimation suivant la direction  $(Oy)$  (direction perpendiculaire au plan d'incidence). Pour une position  $k_x$  dans l'espace réciproque, le flux est intégré suivant la direction  $k_y$ . La hauteur du système de détection est de 50 mm. Il est situé à une distance de 1500 mm. Cela correspond à un angle de  $1^\circ$ . La longueur d'onde de PADA est de 0.4 nm ( $k_0 = 15.7 \text{ nm}^{-1}$ ) donc cet angle correspond à une intégration sur  $k_y$  entre  $+0.27$  et  $-0.27 \text{ nm}^{-1}$ . C'est un paramètre important dans le cas où l'on pivote l'échantillon pour augmenter sa période effective (voir Figure 4 et Figure 5). En effet il ne faut pas que les pics de diffraction « sortent » de la zone d'intégration en  $k_y$ . Cependant cette limite correspond à des périodicités inférieures à 23 nm. En pratique, il est extrêmement difficile de produire des nanostructures présentant des périodicités aussi petites et donc une rotation de l'échantillon ne pose en général pas de problème pratique.

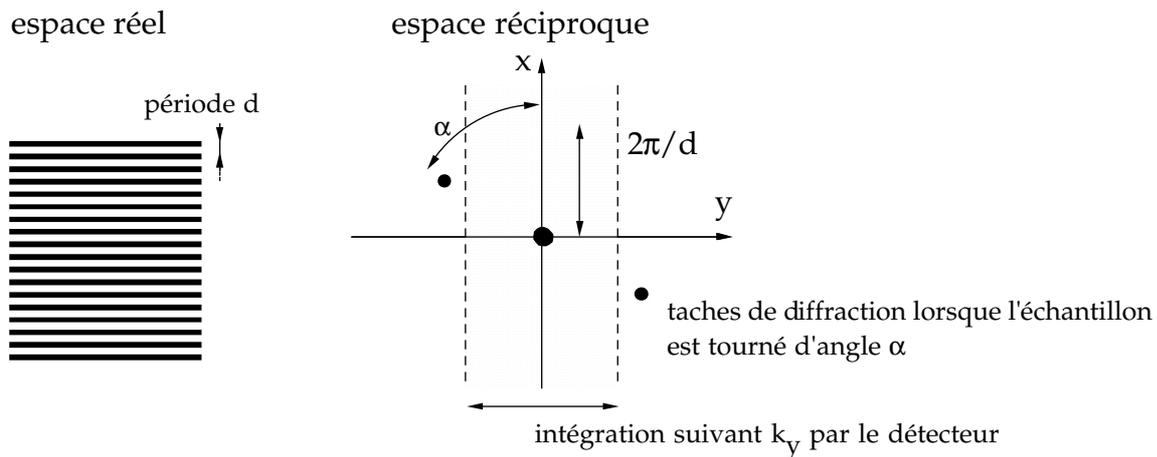


Figure 5 : dans le cas d'un réseau de périodicité trop faible, la rotation de l'échantillon peut faire sortir les tâches de diffraction de la zone d'intégration du détecteur.

Cependant, il est nécessaire d'être prudent dans le cas de réseaux de plots. En effet, supposons que l'on fasse des mesures sur un réseau rectangulaire de plots dont les périodes dans les deux directions principales sont  $d_1$  et  $d_2$ . Lorsque l'on tourne le réseau de plots par rapport au plan de diffraction  $(k_x, k_y)$ , la figure de diffraction que l'on obtient après intégration sur  $k_y$  n'est pas reliée de manière triviale à la figure de diffraction mesurée par rapport aux axes principaux du réseau. Cela est illustré sur la Figure 6. On constate que la figure de diffraction intégrée sur  $k_y$  n'est pas périodique et l'attribution des pics n'est pas immédiate. Cependant expérimentalement les intensités sont souvent si faibles qu'il est difficile d'observer plus de un ou deux pics de diffraction. L'attribution est alors assez rapide.

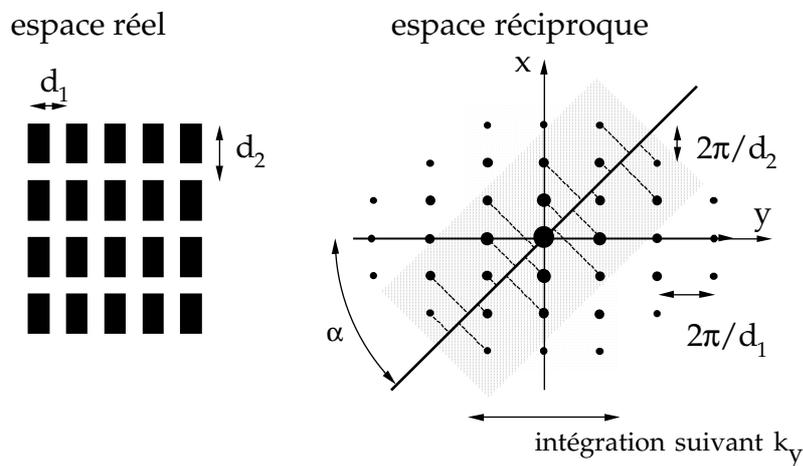


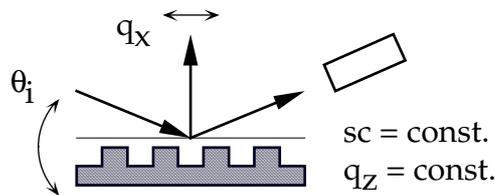
Figure 6 : cas de la diffraction sur un réseau de plots dont les directions principales sont tournées par rapport au plan d'incidence du faisceau de neutrons. Pour ne pas surcharger la figure, ce sont les axes du réseau réciproque qui ont été pivotés et non la figure de diffraction de l'échantillon.

#### 4. Les différents modes de mesure sur un spectromètre deux axes.

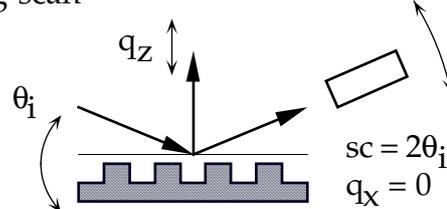
Sur un spectromètre deux axes, il est possible de se déplacer dans le plan  $(q_x, q_z)$  de l'espace réciproque de l'échantillon. Les directions de scan privilégiées sont bien sûr les directions  $q_z$  et  $q_x$ . La Figure 7 décrit les différents modes de scan possibles.

Un scan  $\theta/2\theta$  est un scan suivant la direction  $q_z$ . C'est le type de mesure qui est utilisé dans les mesures classiques de réflectivité spéculaire. La mesure de l'intensité du signal de réflectivité en fonction de  $q_z$  (ou de  $\theta$ ) permet de sonder la structure de l'échantillon suivant l'axe (Oz) et de déterminer sa structure chimique et magnétique suivant (Oz) comme cela a été décrit ci-avant.

a) Rocking curve



b) Bragg scan



c) Scan détecteur.

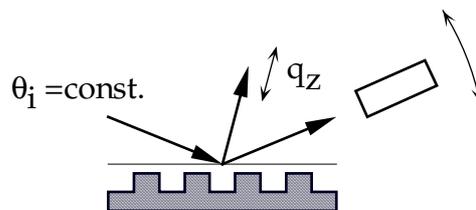


Figure 7 : les différents modes de mesure possibles sur un spectromètre deux axes. (a) rocking curve : l'angle  $\theta$  est balayé,  $2\theta$  est fixe ; (b) scan  $\theta/2\theta$  classique ; (c) scan détecteur : seul l'angle  $2\theta$  est balayé. (adapté de (Tolan 1993))

La deuxième direction de scan dans l'espace réciproque est la direction  $q_x$ . Ce type de balayage est obtenu par une rotation de type « rocking curve » (Figure 7a) : la position du faisceau incident est maintenue constante par rapport au détecteur et l'échantillon seul subit une rotation. Ce type de mesure donne des renseignements sur la structure planaire de la couche et est donc le type de mesure privilégié lors d'études de diffusion non spéculaire et de structures lithographiées. Mécaniquement, on peut envisager un autre type de scan qui consiste en une rotation du détecteur. Cependant ce type de scan suit une trajectoire non triviale dans l'espace réciproque et ne donne

pas de manière directe des informations physiques. Il est en général limité à des fins de réglages. La Figure 8 illustre les trajectoires dans l'espace réciproque pour les trois modes de mesure présentés sur la Figure 7. On notera que dans une mesure de type rocking curve, la courbure de la trajectoire est imperceptible (dans le domaine de  $q_x$  exploitable).

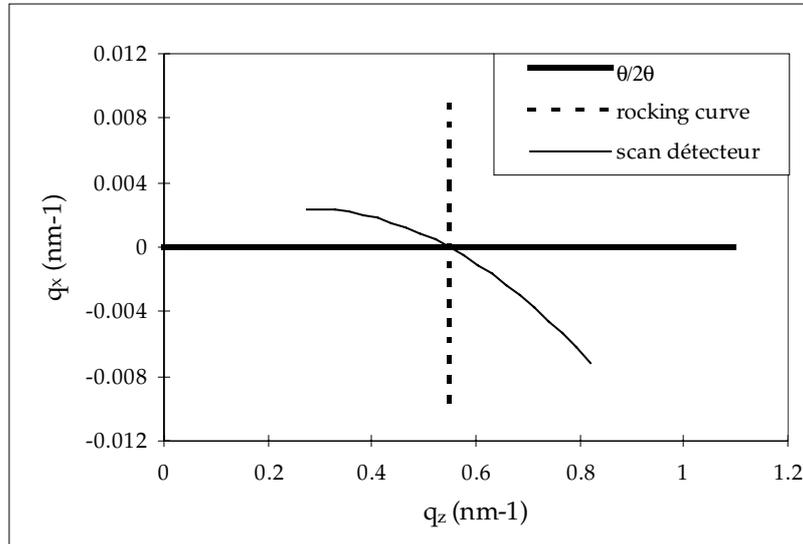


Figure 8 : trajectoires dans l'espace réciproque ( $q_z$ ,  $q_x$ ) pour différents modes de mesure : scan  $\theta/2\theta$  jusqu'à  $2^\circ$ , rocking curve autour de  $1^\circ$  (de  $-1^\circ$  à  $+1^\circ$ ) et scan détecteur de  $0^\circ$  à  $2^\circ$  (incidence  $1^\circ$ ).

## 5. Les différents modes de mesure sur un spectromètre en temps de vol.

Sur un spectromètre en temps de vol, le scan spéculaire classique  $2\theta/\theta$  est remplacé par une mesure à angles d'incidence et de réflexion fixes et égaux. La longueur d'onde des neutrons varie (typiquement dans la gamme 0.3 à 3 nm) et permet de balayer l'espace réciproque suivant  $q_z$ .

Lors d'une mesure de type rocking curve (détecteur fixe, angle  $\theta$  de l'échantillon variable), les trajectoires dans l'espace réciproque sont très différentes des trajectoires obtenues sur un spectromètre 2 axes. La Figure 9a montre les trajectoires parcourues dans une mesure de type rocking curve. Le plan ( $q_z, q_x$ ) est parcouru par des trajectoires formant une figure en éventail. Chaque trajectoire est constituée des mesures obtenues pour des neutrons de longueur d'onde variant de 0.3 nm à 2.5 nm. Dans une mesure de type scan détecteur (Figure 9b) les trajectoires deviennent asymétriques par rapport à  $q_x = 0$ . Sur un spectromètre en temps de vol, il n'est pas possible de suivre directement une trajectoire à  $q_z$  constant, il faut la reconstruire numériquement.

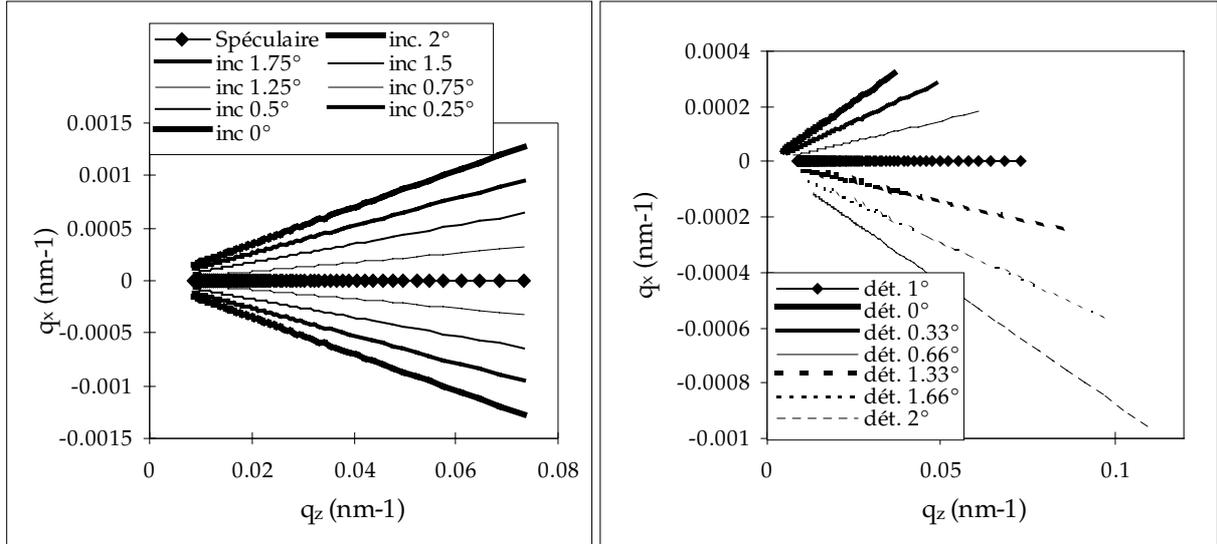


Figure 9 : trajectoires dans l'espace réciproque sur un spectromètre en temps de vol en fonction de la longueur d'onde (de 0.3 nm à 2.5 nm). A gauche, rocking curves autour de 1°. A droite, scan détecteur à incidence fixe de 1°.

## 6. Fonction de résolution du spectromètre EROS.

La forme de la fonction de résolution d'un spectromètre en temps de vol est :

$$\left(\frac{\Delta q}{q}\right)^2 = \left(\frac{\Delta \vartheta}{\vartheta}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \lambda}{\lambda}\right)^2 \quad (\text{IV.89})$$

A la différence du spectromètre à longueur d'onde fixe PADA, il est possible d'ajuster la résolution en longueur d'onde sur le spectromètre en temps de vol EROS. La résolution angulaire  $\theta$  peut être ajustée entre  $7 \times 10^{-3}$  à  $7 \times 10^{-2}$  degrés. La résolution en longueur d'onde  $\lambda$  peut être ajustée entre 0.015 nm et 0.15 nm. Le hacheur simple disque du spectromètre EROS produisant des paquets de neutrons de largeur temporelle fixe, la résolution n'est pas constante sur tout le domaine  $q_z$ . Aux grandes longueurs d'onde, la résolution est dominée par la résolution angulaire tandis qu'aux courtes longueurs d'onde la résolution est dominée par la résolution en longueur d'onde. La Figure 10 montre la résolution en  $q_z$  pour des conditions typiques ( $\Delta\theta = 0.02^\circ$  et  $\Delta\lambda = 0.02$  nm) en fonction de la longueur d'onde et de l'angle d'incidence.

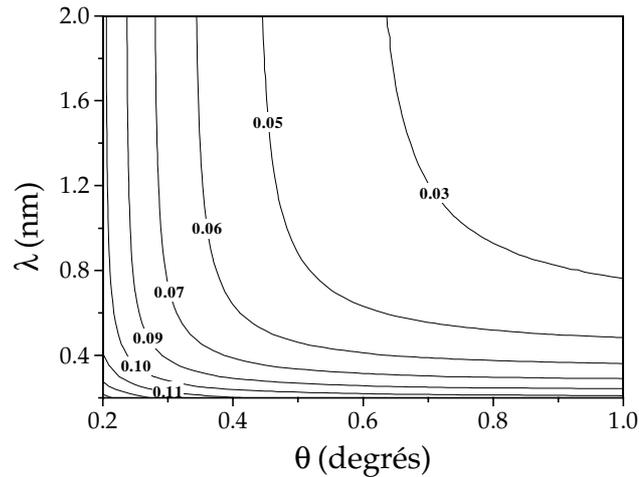


Figure 10 : résolution  $\Delta q_z/q_z$  du spectromètre en temps de vol EROS en fonction de l'angle d'incidence et de la longueur d'onde (pour  $\Delta\theta = 0.02^\circ$  et  $\Delta\lambda = 0.02$  nm).

## E. Diffusion hors spéculaire sur des structures lithographiées.

Nous allons présenter des résultats de diffusion hors spéculaire obtenus sur différents types de réseaux lithographiés. Nous discuterons les effets de périodicité, d'épaisseur et de composition du réseau sur la diffraction hors spéculaire. Nous montrerons par ailleurs que le formalisme développé dans le paragraphe B permet de rendre compte quantitativement des résultats expérimentaux.

### 1. Influence des différents paramètres d'un réseau sur les modes de diffraction.

Afin de mieux sentir qualitativement quelle est l'influence des différents paramètres physiques d'un réseau (périodicité, épaisseur de la couche gravée, largeur des motifs gravés par rapport à la périodicité), nous avons réalisé un certain nombre de simulations dans des situations variées.

Les courbes de la Figure 11 comparent les intensités des modes de diffraction +1 en fonction de la périodicité du réseau. Les simulations correspondent au cas d'un réseau de lignes de nickel déposées sur un substrat de silicium (l'épaisseur des lignes est de 40 nm, la largeur des lignes est la moitié de la période du réseau). Le calcul correspond à une mesure de rocking curve autour de  $0.75^\circ$ . On peut observer sur la courbe correspondant à la périodicité de 10  $\mu\text{m}$  qu'il y a un grand pic autour de  $q_z = 0.15$   $\text{nm}^{-1}$ . Nous attribuons ce pic à une résonance apparaissant pour les conditions d'incidence correspondant à  $q_z = 0.15$   $\text{nm}^{-1}$ . Au delà de ce pic, on observe des oscillations caractéristiques de l'épaisseur de la couche de nickel du réseau. Pour des périodicités plus faibles, les courbes sont décalées vers la gauche et les oscillations sont plus rapides. Ceci est un effet géométrique dû à la contraction de l'échelle en  $q_z$

pour ces périodicités plus faibles. Une autre conséquence de certaines contraintes géométriques est que le pic de « résonance » n'est plus accessible expérimentalement.

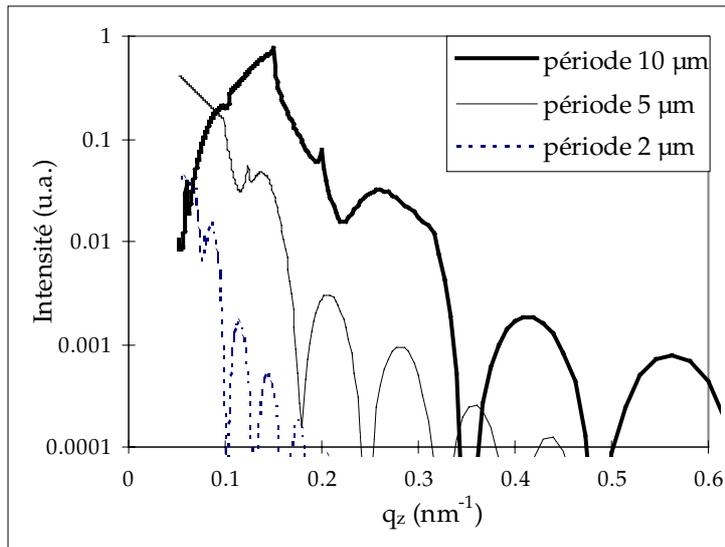


Figure 11 : comparaison des intensités des modes de diffraction +1 en fonction de la périodicité du réseau. Simulations dans le cas d'un réseau de lignes de nickel déposées sur un substrat de silicium (l'épaisseur des lignes est de 40 nm, la largeur des lignes est la moitié de la périodicité du réseau). Cas d'une mesure de rocking curve autour de  $0.75^\circ$ .

Nous comparons ensuite l'effet de l'épaisseur du réseau sur les modes de diffraction (voir Figure 12). L'épaisseur des lignes du réseau influe essentiellement sur la périodicité des oscillations, de la même manière que dans la diffusion spéculaire. Les effets apparaissant autour du pic de « résonance » n'ont pas d'explication simple.

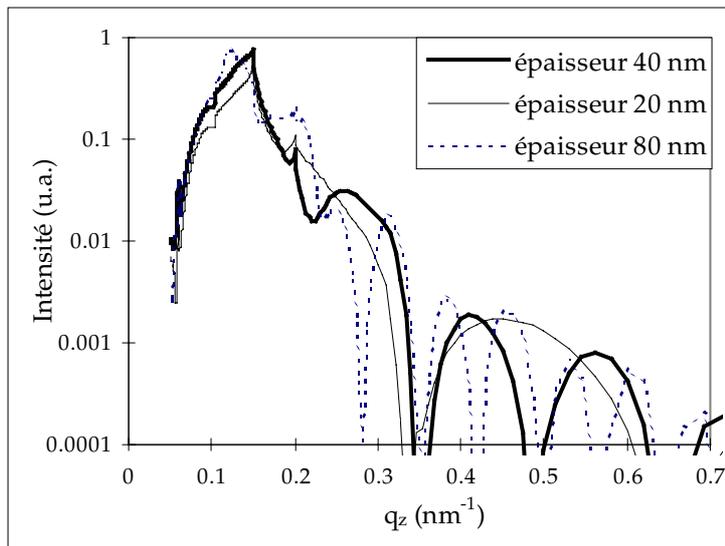


Figure 12 : comparaison des intensités des modes de diffraction +1 en fonction de l'épaisseur du réseau. Simulations dans le cas d'un réseau de lignes de nickel déposées sur un substrat de silicium (la périodicité du réseau est de  $10\ \mu\text{m}$ , la largeur des lignes est de  $5\ \mu\text{m}$ ). Cas d'une mesure de rocking curve autour de  $0.75^\circ$ .

Des modifications très importantes apparaissent lorsque, pour une périodicité donnée, on varie la largeur des lignes du réseau. Ces phénomènes sont illustrés sur la

Figure 13 pour un réseau de périodicité  $10 \mu\text{m}$ . Dans le cas de lignes fines ( $2.5 \mu\text{m}$ ) la structure du mode de diffraction est la plus simple. Il existe une zone de diffraction efficace en-dessous de  $q_z = 0.15 \text{ nm}^{-1}$  qui est suivie d'une série d'oscillations correspondant à l'épaisseur du réseau. Dans le cas de lignes de  $5 \mu\text{m}$  de large, des pics supplémentaires apparaissent (autour de  $q_z = 0.1 \text{ nm}^{-1}$  et de  $q_z = 0.2 \text{ nm}^{-1}$ ). Ce deuxième pic « gomme » la première oscillation. Le cas des lignes de  $7.5 \mu\text{m}$  est plus complexe. On observe trois pics (autour de  $q_z = 0.05 \text{ nm}^{-1}$ , de  $0.15 \text{ nm}^{-1}$  de  $q_z = 0.23 \text{ nm}^{-1}$ ). Les deux premières oscillations sont fortement perturbées par ces pics, on ne retrouve une variation comparable aux autres courbes qu'à partir de la troisième oscillation. On peut aussi remarquer que l'intensité diffractée est plus faible. Cela peut s'expliquer par le fait qu'on se rapproche d'une couche de nickel presque continue.

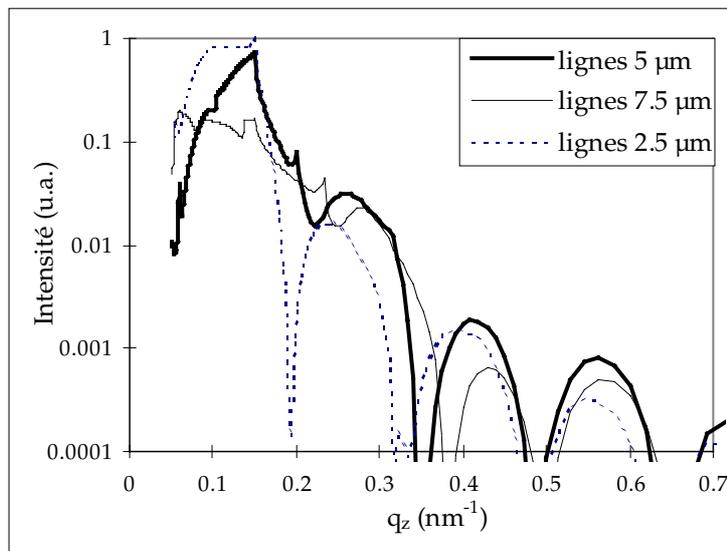


Figure 13 : comparaison des intensités des modes de diffraction +1 en fonction de la largeur des lignes du réseau. Simulations dans le cas d'un réseau de lignes de nickel déposées sur un substrat de silicium (la périodicité du réseau est de  $10 \mu\text{m}$ , l'épaisseur des lignes est de  $40 \text{ nm}$ ). Cas d'une mesure de rocking curve autour de  $0.75^\circ$ .

## 2. Diffusion sur des réseaux lithographiés. Comparaison entre mesures expérimentales et simulations numériques.

Nous allons présenter des mesures de diffraction hors spéculaire sur différents types de réseaux lithographiés et les comparer avec des simulations numériques basées sur le formalisme développé dans le paragraphe B. Nous discuterons par ailleurs les effets des différents paramètres des réseaux (périodicité, épaisseur, composition) sur la forme des courbes de diffraction hors spéculaire.

Nous rappelons les modes de diffraction indicés « + » (resp. « - ») correspondent aux modes de diffraction tels que  $\theta_r - \theta_i > 0$  (resp.  $\theta_r - \theta_i < 0$ ) (voir Figure 14).

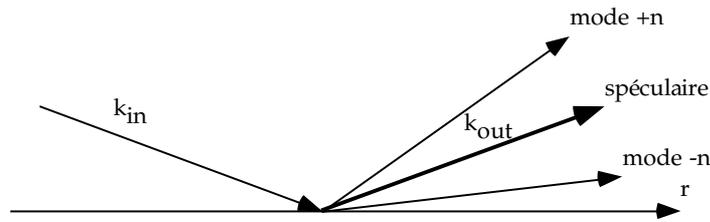


Figure 14 : géométrie des modes de réflexion spéculaires et hors spéculaires.

a) Diffusion sur un substrat de verre gravé ; cas d'un réseau peu profond.

Un substrat de verre a été gravé par gravure ionique réactive (RIE) au SF<sub>6</sub>. La périodicité du motif est de 10 μm. La largeur des lignes est de 7 μm avec un profil légèrement trapézoïdal et leur hauteur moyenne est de 25 nm (voir Figure 15). La Figure 16 montre la diffusion non spéculaire de l'échantillon dans le plan ( $q_x, q_z$ ) pour deux conditions expérimentales différentes (rocking curves autour de 0.75° et 1.2°).

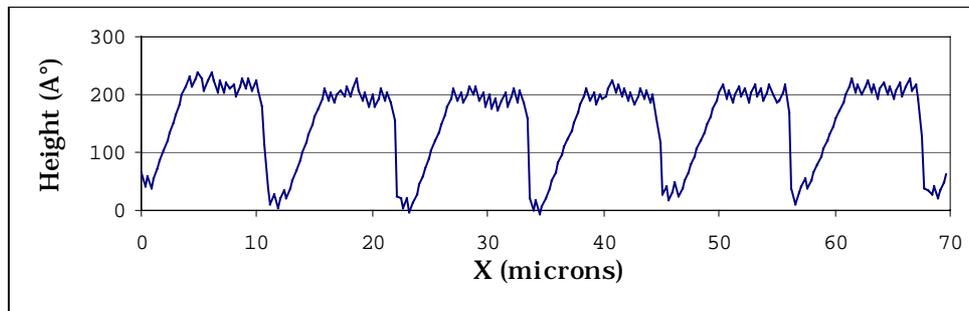


Figure 15 : profil d'un réseau de lignes de verre gravées par RIE. La périodicité est de 10 μm, la largeur des lignes est d'environ 7 μm.

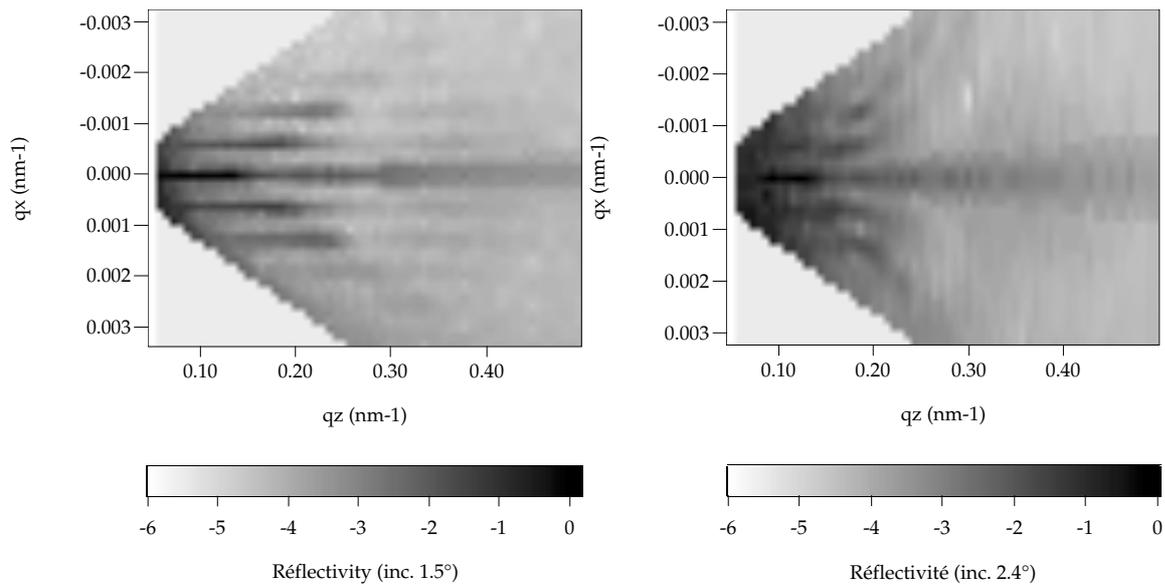


Figure 16 : réflectivités dans le plan ( $q_x, q_z$ ) d'un réseau de lignes de verre pour deux angles d'incidence différents (1.5° et 2.4°).

Les caractéristiques de la Figure 16 sont les suivantes. Le plan  $(q_x, q_z)$  présente deux zones triangulaires « grisées » (pour les petits  $q_z$  et les grands  $q_x$ ). Ces zones représentent les parties de l'espace réciproque inaccessibles pour raisons géométriques (voir Figure 9a). Dans la zone mesurable on observe une série de lignes pour lesquelles où l'intensité est non négligeable. La première, située autour de l'axe  $q_x = 0$ , représente la diffusion spéculaire sur l'échantillon. Une coupe suivant  $q_x = 0$  donne la courbe de réflectivité spéculaire de l'échantillon. On observe par ailleurs deux ou trois autres lignes de part et d'autre de  $q_x = 0$  qui représentent les pics de diffusion non spéculaire. Ces zones suivent les lignes  $q_x = m \times 0.0006 \text{ nm}^{-1}$  qui correspondent à une période de  $6 \mu\text{m}$  ( $2\pi/10\mu\text{m} = 0.00063 \text{ nm}^{-1}$ ).

On peut tracer les réflectivités correspondant aux différents ordres de diffraction +1, 0 et -1 d'après les coupes à  $q_x$  constant ( $q_x = -0.0006 \text{ nm}^{-1}$ ,  $q_x = 0$  et  $q_x = +0.0006 \text{ nm}^{-1}$ ). Ces coupes sont tracées sur la Figure 17 pour des mesures de rocking curves autour de trois angles différents ( $0.4^\circ$ ,  $0.75^\circ$  et  $1.2^\circ$ ). Pour augmenter la lisibilité de la figure, les intensités des modes +1 (resp. -1) ont été divisées par 100 (resp. 10000). En fait, dans certaines zones, l'intensité diffractée dans les modes +1 ou -1 peut être aussi importante que l'intensité du pic spéculaire

En traits pleins sont tracées des simulations numériques. Le jeu de paramètres (lignes de largeur  $7 \mu\text{m}$ , périodicité  $10 \mu\text{m}$  et épaisseur  $27 \text{ nm}$ ) donne le meilleur accord pour les trois courbes expérimentales. Ce jeu de paramètres est en très bon accord avec la mesure du profil par AFM.

Les ajustements numériques appellent des commentaires. Dans le cas de la réflexion spéculaire, les courbes expérimentales suivent l'enveloppe supérieure du calcul théorique. Le calcul reproduit bien la bosse apparaissant autour des positions de type  $A_2$ . Celle-ci est reliée à l'oscillation correspondant à l'épaisseur du réseau gravé. La simulation prédit un creux marqué après le plateau de réflectivité totale. Pour un angle d'incidence particulier, il apparaît des pics de résonance (voir pics B1 et B2) dans les modes de diffraction. Une conséquence directe est que la diffusion spéculaire est réduite. En pratique cependant, deux problèmes se posent : L'épaisseur du réseau est fluctuante, ce qui élargit la « résonance », d'autre part la résolution expérimentale est mauvaise (pour compenser les faibles flux disponibles).

Pour les rocking curves autour de  $0.75^\circ$  et  $1.2^\circ$ , les intensités des modes +1 sont bien reproduites ainsi que les pics  $C_1$  et l'oscillation  $C_2$ . Les oscillations de type  $B_3$  et  $C_2$  correspondent à l'épaisseur du réseau gravé. Dans le cas de la rocking curve autour de  $0.4^\circ$ , la mesure du mode +1 a été interrompue (partie  $q_z < 0.2$  manquante) mais le calcul théorique reproduit tout de même la diminution d'un facteur 10 de l'intensité diffractée pour  $q_z < 0.25 \text{ nm}^{-1}$ .

Les intensités des modes -1 sont en général surestimées (facteur 1.5 à 2). Le calcul théorique suit cependant bien la forme des courbes expérimentales et reproduit les détails : en particulier les pics de « résonance » de type B1 et B2

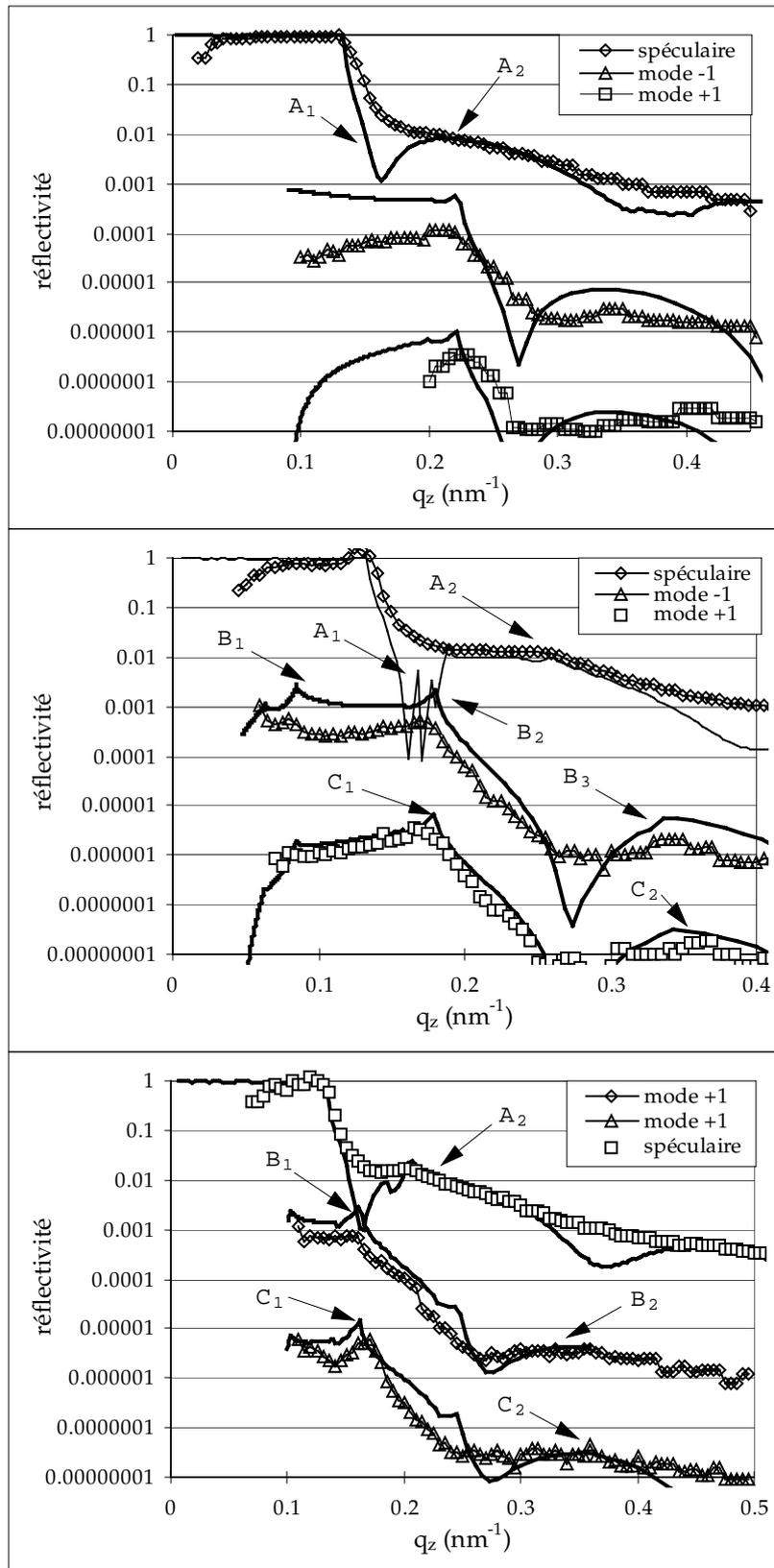


Figure 17 : réflectivités des modes +1 et -1 en fonction de  $q_z$  pour différentes conditions expérimentales : rocking curves autour de (a)  $0.4^\circ$ , (b)  $0.75^\circ$  et (c)  $1.2^\circ$ . Les ajustements numériques sont tracés en traits plein. Les intensités des modes -1 (resp. +1) ont été divisées par un facteur 100 (resp. 10000).

b) Diffusion sur un réseau de lignes de nickel.

La Figure 18 montre un réseau de lignes de nickel de période  $10\ \mu\text{m}$  déposées sur un substrat de verre. La couche de nickel a été déposée par pulvérisation cathodique et a une épaisseur moyenne de  $87\ \text{nm}$ . Le réseau a été gravé chimiquement dans une solution de  $\text{FeCl}_3$ . La gravure chimique ne permet pas d'obtenir des résolutions excellentes. Sur cet échantillon il y a eu une légère surgravure qui a réduit la largeur des lignes à  $4\ \mu\text{m}$ . On peut cependant encore voir des marques résiduelles de la largeur de  $5\ \mu\text{m}$  (voir image de gauche de la Figure 18) ; sur la coupe, cela se traduit par la présence de très fins pics autour des lignes. Je n'en tiendrai pas compte dans les calculs. De la même manière on ne tiendra pas compte des irrégularités des lignes. Le réseau sera modélisé comme un réseau de lignes en créneaux rectangulaires de largeur  $4\ \mu\text{m}$  et de période  $10\ \mu\text{m}$ .

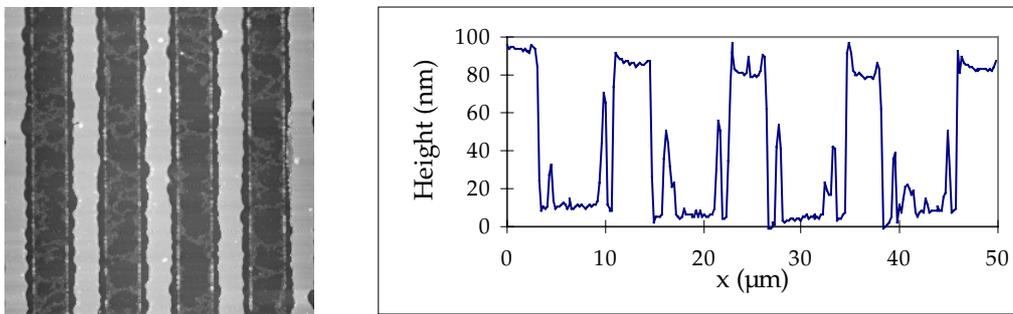


Figure 18 : lignes de nickel gravées chimiquement : image AFM et profil correspondant. La périodicité est de  $10\ \mu\text{m}$  et la largeur des lignes est de  $4\ \mu\text{m}$ .

La Figure 19 montre le tracé des réflectivités de l'échantillon dans le plan  $(q_x, q_z)$ . La mesure présentée a été obtenue pour une incidence de  $1.5^\circ$ . Nous observons des modes de diffraction jusqu'à l'ordre 3 (et des traces de l'ordre 4).

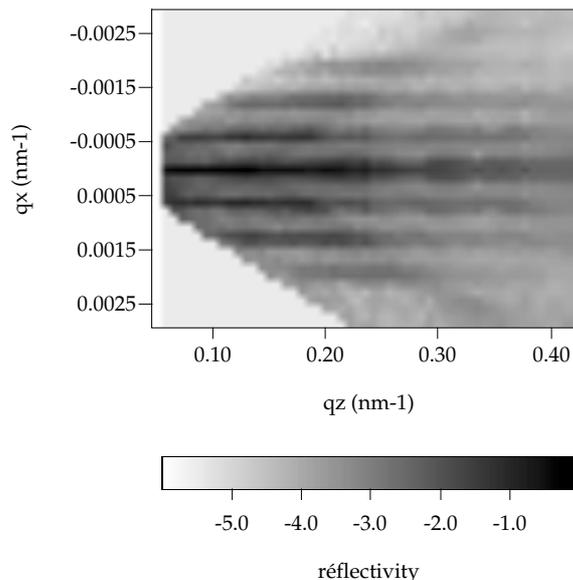


Figure 19 : intensités diffusées par un réseau de lignes de nickel dans le plan  $(q_x, q_z)$  (mesure effectuée sous une incidence de  $1.5^\circ$ ).

Pour rendre les intensités des modes de diffraction plus lisibles, la Figure 20 montre des coupes à  $q_x$  constant suivant les modes de diffraction +1 et -1. Pour la lisibilité de la figure, les intensités des modes -1 (resp. +1) ont été divisées par un facteur 100 (resp. 10000). On remarque que pour une gamme de  $q_z$  de 0 à  $0.2 \text{ nm}^{-1}$  les efficacités de diffraction sont de l'ordre de 10%. Au delà de  $q_z = 0.25 \text{ nm}^{-1}$  elles deviennent inférieures à 1%. Par ailleurs des simulations numériques utilisant les paramètres mesurés par AFM sont tracés en traits gras. Dans le cas du mode +1, nous obtenons un accord satisfaisant malgré un petit décalage en  $q_z$ . Cependant lors de la mesure, la résolution n'était pas suffisante pour pouvoir résoudre correctement les oscillations dues à l'épaisseur de la couche de nickel mais il est tout de même possible de les deviner. Dans le cas du mode -1, le calcul produit une courbe qui suit assez bien les variations de la courbe mesurée mais surestime les intensités d'un facteur 5 environ.

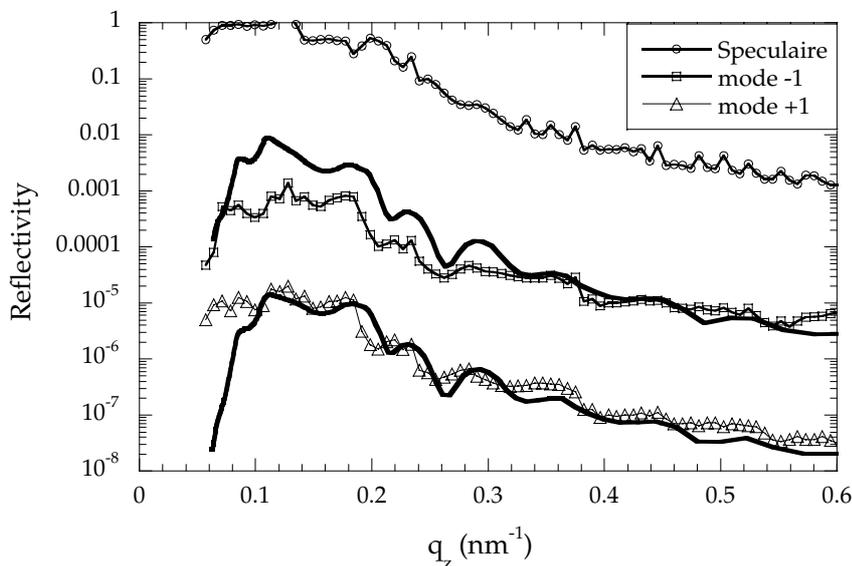


Figure 20 : intensités des modes diffractés +1 et -1 (triangles et carrés) en fonction de  $q_z$ . Simulations numériques en traits gras. Pour la lisibilité de la figure, les intensités des modes -1 (resp. +1) ont été divisées par un facteur 100 (resp. 10000).

### c) Mesures sur silicium gravé : réseau profond.

La Figure 21 montre le profil d'un réseau de lignes gravées dans un substrat de silicium avec une périodicité de  $6 \mu\text{m}$  et des motifs de  $600 \text{ nm}$  de profondeur. La synthèse des intensités diffusée est présentée sur la Figure 22 dans le système d'axes  $(q_x, q_z)$ . Ces mesures ont été obtenues par rocking curve autour de  $0.6^\circ$ .

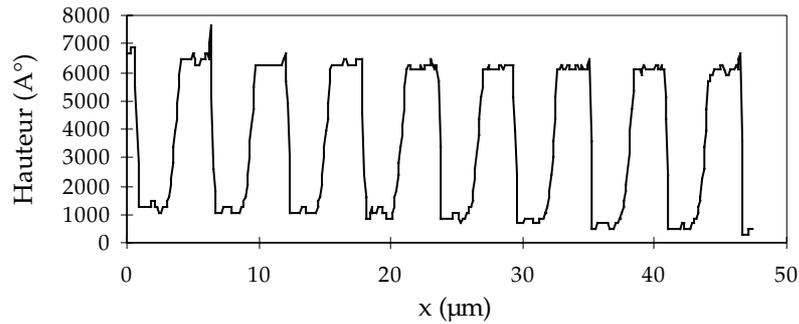


Figure 21 : profil d'un réseau de lignes gravées dans un substrat de silicium (mesure AFM).

On peut tracer les réflectivités correspondant aux différents ordres de diffraction +1, 0 et -1 d'après les coupes à  $q_x$  constant ( $q_x = -0.001 \text{ nm}^{-1}$ ,  $q_x = 0$  et  $q_x = +0.001 \text{ nm}^{-1}$ ) sur la Figure 22. Cela est représenté sur la Figure 23. On remarque que dans certaines zones, l'intensité diffractée dans les modes +1 ou -1 peut être aussi importante que l'intensité du pic spéculaire (N.B. : les intensités des modes +1 (resp. -1) ont été divisées par 10 (resp. 100) pour augmenter la lisibilité de la figure).

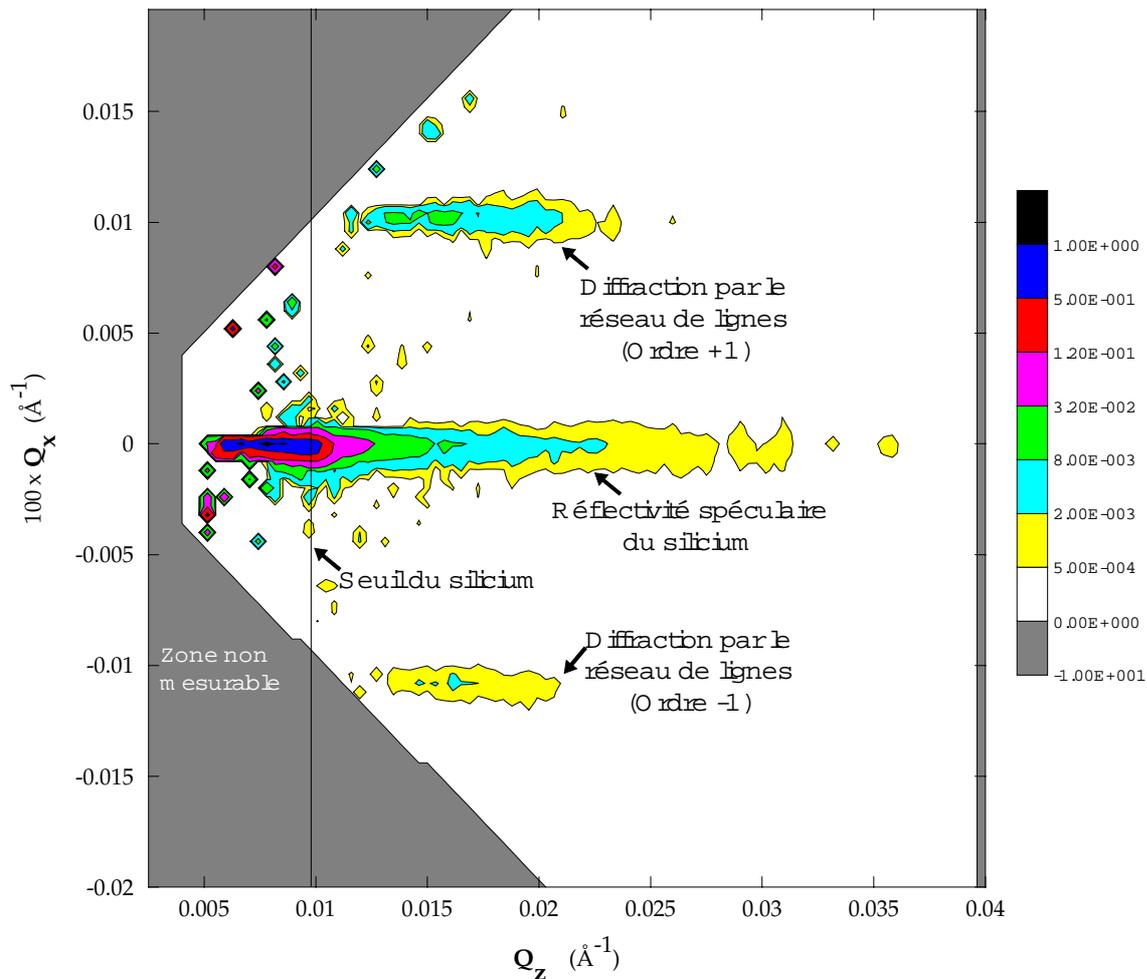


Figure 22 : intensité non spéculaire diffusée par un réseau gravé dans un substrat de silicium.

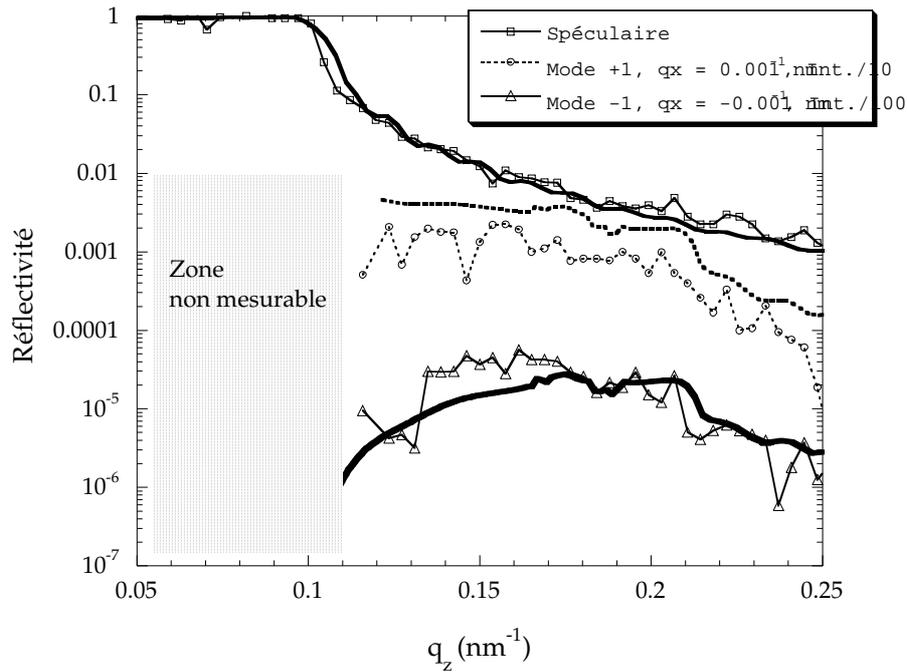


Figure 23 : coupes des intensités de la Figure 22 à  $q_x$  constant pour les trois valeurs ( $q_x=0$ ,  $q_x=0.001 \text{ nm}^{-1}$  et  $q_x = -0.001 \text{ nm}^{-1}$ .) Les intensités des modes +1 et -1 ont été divisées respectivement par des facteurs 10 et 100 pour la lisibilité de la figure. En traits gras, simulations numériques.

Une simulation numérique du réseau gravé sur silicium utilisant les paramètres déterminés par AFM est présentée sur la Figure 23 (trait gras). On retrouve le plateau du silicium à  $q_z = 0.1 \text{ nm}^{-1}$ . La courbe de réflectivité spéculaire est bien reproduite. La forme ainsi que l'intensité calculée du mode +1 sont satisfaisants. Dans le cas du mode -1, le calcul ne reproduit que la forme de ce mode de diffraction mais surestime l'intensité d'un facteur 3 à 4. La décroissance de l'intensité au-delà de  $q_z = 0.21 \text{ nm}^{-1}$  apparaît bien dans le calcul.

#### d) Conclusion

La comparaison des mesures expérimentales et des simulations numériques montre que nous obtenons un accord quantitatif assez satisfaisant en utilisant le formalisme développé dans le paragraphe B. Il est possible de relativement bien reproduire la forme et l'intensité des modes de diffraction (à l'exception d'une légère surestimation systématique des intensités des modes +1).

### 3. Augmentation des efficacités de diffraction.

Nous nous sommes intéressés aux possibilités d'augmentation des efficacités de diffraction. Nous proposons deux approches :

- utilisation de matériaux d'indices élevés (typiquement Ni).

- couverture de titane (d'indice négatif) afin d'augmenter le contraste entre le milieu d'incidence et le réseau lui-même.

Par ailleurs, nous avons essayé d'augmenter la gamme en  $q_z$  dans laquelle les efficacités de diffraction sont importantes. Pour cela, nous avons étudié la diffusion sur un supermiroir à neutrons gravé.

a) *Effet d'une couverture de nickel.*

Le réseau de lignes de verre présenté ci-avant (§ 7.c.) a été recouvert d'une couche de nickel de 20 nm déposée par pulvérisation cathodique. La Figure 24 montre le nouveau profil obtenu. Il n'y a pas eu élargissement des lignes ni diminution de la profondeur des lignes. La seule petite différence est une forme plus arrondie des creux entre les lignes. Les mesures de diffusion hors spéculaire sont présentées sur la Figure 25.

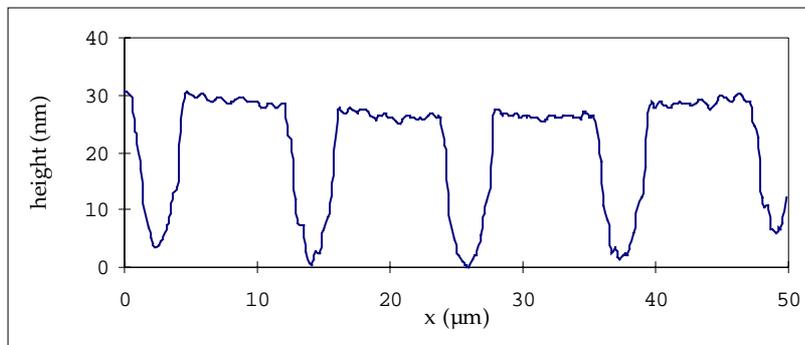


Figure 24 : profil des lignes d'un échantillon de verre gravé recouvert d'une couche de 20 nm de nickel. (La courbure apparente est un artefact de la mesure AFM).

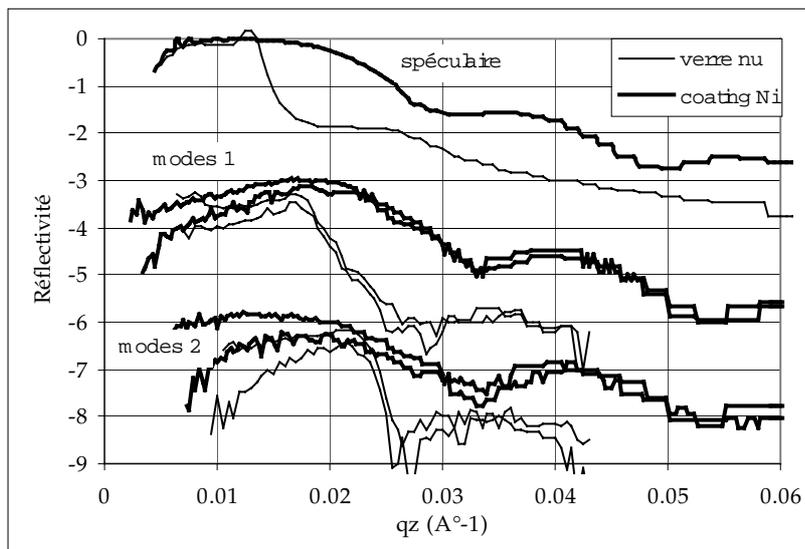


Figure 25 : intensité des modes de diffraction +1 et -1 du réseau de verre nu (trait fin) et après couverture par une couche de 20 nm de nickel (trait gras). (rocking curve autour de  $1.5^\circ$ ).

Deux points sont à noter : les intensités diffractées ont été multipliées par un facteur 2 à 3 pour les modes +1 et -1, dans la zone de  $q_z < 0.17 \text{ nm}^{-1}$ . Au delà le facteur de gain est d'environ 10. De plus la zone d'efficacité de diffraction a été étendue en  $q_z$ , passant d'environ  $0.2 \text{ nm}^{-1}$  pour le verre nu à  $0.3 \text{ nm}^{-1}$  pour le verre recouvert de nickel. Nous attribuons l'augmentation des intensités à l'augmentation du contraste des indices. Le contraste d'indice air/nickel est près de deux fois plus important que le contraste air/verre. L'allongement de l'intervalle de  $q_z$  où les efficacités de diffraction sont importantes a la même origine.

b) *Effet d'une couverture de titane.*

Une autre possibilité d'augmentation du contraste d'indice consiste à diminuer l'indice du milieu d'incidence. Cela est possible en neutrons car certains matériaux possèdent des indices négatifs. Nous avons étudié l'effet d'une épaisse couche de titane ( $b = -3.44 \text{ fm}$ ) recouvrant un réseau de lignes gravées dans un substrat de verre.

Un substrat de verre a été gravé par RIE pendant 25 minutes en un réseau de périodicité  $10 \mu\text{m}$ . La hauteur moyenne des motifs obtenus est de  $250 \text{ nm}$ . Ce réseau a ensuite été recouvert par une épaisse couche de titane de  $300 \text{ nm}$ .

Les mesures de diffusion sont qualitativement similaires aux résultats obtenus sur l'échantillon de verre : les formes des courbes sont très similaires. On peut observer des modes de diffraction jusqu'à l'ordre 4 ou 5. Mais le point remarquable est que les intensités diffusées sont très importantes. La Figure 26 résume les courbes de diffraction des modes -1 pour les trois conditions expérimentales : rocking curve autour de  $0.4^\circ$ ,  $0.75^\circ$  et  $1.2^\circ$ . On note que les intensités diffractées peuvent être très importantes, jusqu'à 30% dans le cas de la rocking curve autour de  $1.2^\circ$ . On note que plus les intensités de diffraction sont grandes, plus le domaine en  $q_z$  pour lequel les intensités diffractées sont supérieures à quelques pourcents est étroit. Cela provient d'une « redistribution » de l'intensité diffractée sur une plus grande gamme de  $q_z$  lorsque les conditions de mesure sont modifiées.

*N.B.* : les intensités ont été normalisées par rapport à l'intensité du plateau de réflectivité totale fixée à 1.

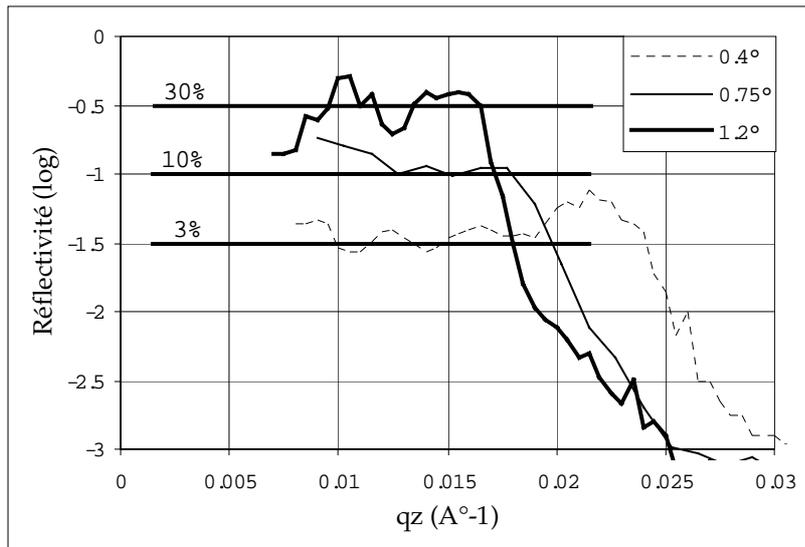


Figure 26 : intensité des modes de diffraction -1 d'un réseau de lignes de verre recouvertes de Ti, pour différents angles de rocking curve (autour de  $0.4^\circ$ ,  $0.75^\circ$  et  $1.2^\circ$ ). Les intensités ont été normalisées par rapport à l'intensité du plateau de réflectivité totale fixée à 1.

c) Diffraction sur un supermiroir gravé.

Nous avons souhaité vérifier si l'utilisation d'un matériau présentant un indice « apparent » particulièrement grand permettait d'élargir la zone en  $q_z$  ou les intensités de diffraction sont supérieures à quelques pourcents. Les supermiroirs à neutrons (structures artificielles en multicouches Ni/Ti) présentent des indices apparents de l'ordre de  $2$  à  $3 \times b_{\text{nickel}}$  : leur plateau de réflexion totale est très étendu. Nous avons donc étudié la diffusion sur différents types de supermiroirs gravés en réseaux périodiques

Dans le cas particulier de l'échantillon présenté il s'agit d'un miroir  $2\theta_c$ . Les caractéristiques du motif gravé sont une périodicité de  $2 \mu\text{m}$  avec des lignes de largeur  $1 \mu\text{m}$ . La profondeur moyenne des motifs est de  $600 \text{ nm}$ . La gravure a été réalisée par gravure ionique sèche à l'argon.

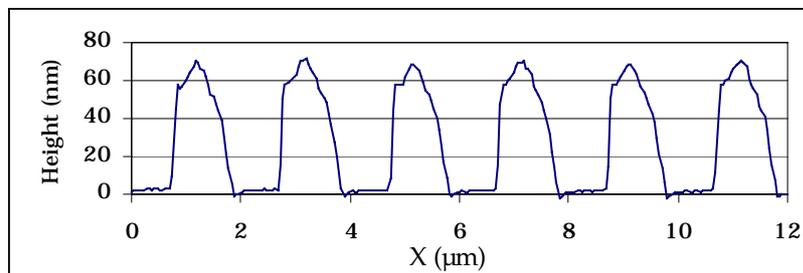


Figure 27 : profil de lignes d'un miroir  $2\theta_c$  gravé par RIE dans un supermiroir  $2\theta_c$ . La périodicité est de  $2 \mu\text{m}$ , la largeur des lignes est de  $1 \mu\text{m}$ .

La Figure 28 montre les intensités obtenues dans le plan  $(q_x, q_z)$ . La périodicité de ce réseau étant plus petite, les pics de diffraction sont renvoyés à des valeurs de  $q_x$  plus

importantes (autour de  $0.003 \text{ nm}^{-1}$ ). Cela a pour influence de diminuer l'intensité de ces pics de diffraction par rapport au pic spéculaire. On observe tout de même que sur la gamme  $q_z = 0.3-0.65 \text{ nm}^{-1}$ , l'efficacité ramenée à l'intensité totale incidente sur le réseau atteint 2-3% (voir Figure 29). Une simulation numérique utilisant les paramètres de la Figure 27 a été tracée en traits pleins sur la Figure 29. L'intensité du mode +1 est bien reproduite. Cependant le calcul théorique ne fait pas apparaître de pic autour de  $q_z = 0.35 \text{ nm}^{-1}$ .

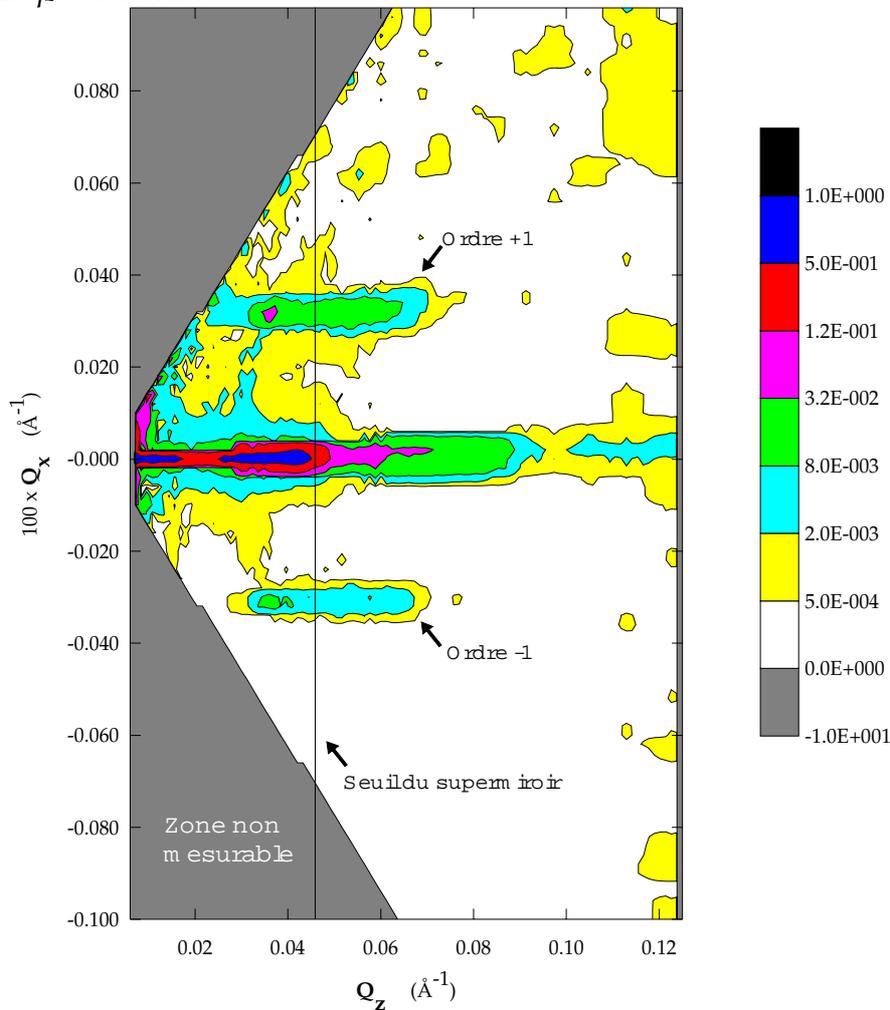


Figure 28 : intensités diffractées par un réseau de lignes de période  $2 \mu\text{m}$  gravée dans un supermirroir  $2 \theta$ .

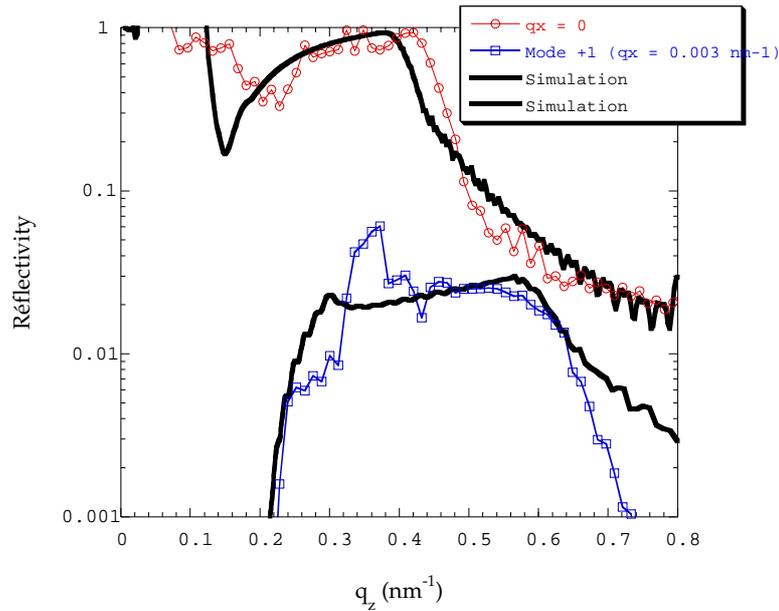


Figure 29 : réflectivité des ordres de diffraction 0 et +1 sur un supermiroir  $2\theta_c$  gravé. Simulation en trait gras.

Il faut par ailleurs remarquer que l'intensité spéculaire est fortement perturbée par la gravure. Un creux très important apparaît dans le plateau de réflectivité totale autour de  $q_z = 0.2$  nm<sup>-1</sup>. Le calcul théorique reproduit bien un creux dans le plateau de réflectivité totale. Cependant on remarquera que la courbe calculée est décalée en  $q_z$  et ne reproduit pas bien le vecteur d'onde de coupure du plateau de réflectivité totale (en  $q_z = 0.42$  nm<sup>-1</sup>). En conclusion on retiendra qu'il est possible d'obtenir des efficacités de diffraction importantes sur une gamme de largeur  $0.3$  nm<sup>-1</sup> en  $q_z$ , c'est-à-dire une gamme plus large que ce que l'on peut obtenir avec des matériaux simples. Les efficacités plus modestes par rapports à certains résultats présentés ci-avant s'expliquent par la plus faible période du réseau ( $2$   $\mu$ m au lieu de  $10$   $\mu$ m).

La Figure 30 montre une coupe à  $q_z$  constant égal à  $0.0054$  nm<sup>-1</sup>. On notera que l'élargissement des pics de diffraction est très faible. Cela est important dans le cas d'une utilisation en instrumentation neutronique.

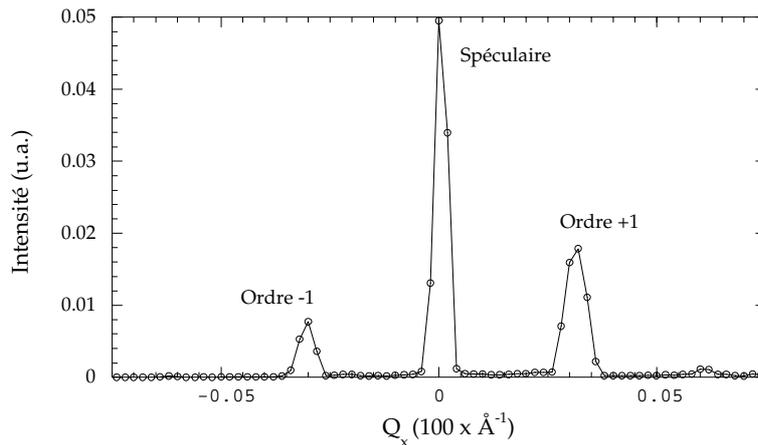


Figure 30 : intensités diffractées en fonction de  $q_x$  (pour une position  $q_z = 0.0054 \text{ nm}^{-1}$ .) On peut observer un léger élargissement des pics de diffraction par rapport au pic spéculaire.

#### 4. Conclusion.

Nous avons présenté un certain nombre de mesures sur des systèmes lithographiés variés (variation de matériau, d'épaisseur, de périodicité). Nous avons pu vérifier que le formalisme dynamique développé au paragraphe B permet de décrire de manière relativement satisfaisante les intensités diffractées par ces réseaux. Les calculs s'appliquent à des réseaux très profonds et de très grande périodicité par rapport à la longueur d'onde des neutrons incidents. Nous notons tout de même que les calculs des intensités modes -1 semblent surestimer systématiquement les intensités effectivement mesurées. Nous n'avons pas d'explication à ce problème.

Par ailleurs sur le plan expérimental, nous avons montré que l'utilisation de matériaux donnant de grands contrastes d'indices entre le milieu d'incidence et le réseau permet de fabriquer des réseaux de diffraction présentant des efficacités de diffraction importantes (jusqu'à 30%). Nous avons par ailleurs vérifié qu'il est possible d'étendre la gamme en  $q_z$  pour laquelle les intensités diffractées sont importantes en utilisant des matériaux multicouches qui possèdent des indices apparents artificiellement grands.

### F. Etude par diffusion hors spéculaire de neutrons du comportement magnétique de nanostructures lithographiées.

Nous nous sommes intéressés au comportement magnétique de réseaux de nanostructures magnétiques. Les structures réalisées couvrent les tailles entre 100 nm et 10  $\mu\text{m}$ . Leur comportement magnétique a été étudié par C. Miramond au Service de Physique de l'Etat Condensé du Centre d'Etudes de Saclay (Miramond, 1997).

S'ils sont suffisamment proches, les différents nanoéléments sont couplés magnétiquement entre eux par couplage magnétique dipolaire. En théorie, la configuration magnétique énergétiquement la plus favorable est un couplage antiferromagnétique. La Figure 1 illustre l'ordre magnétique dans le cas de quelques structures simples.

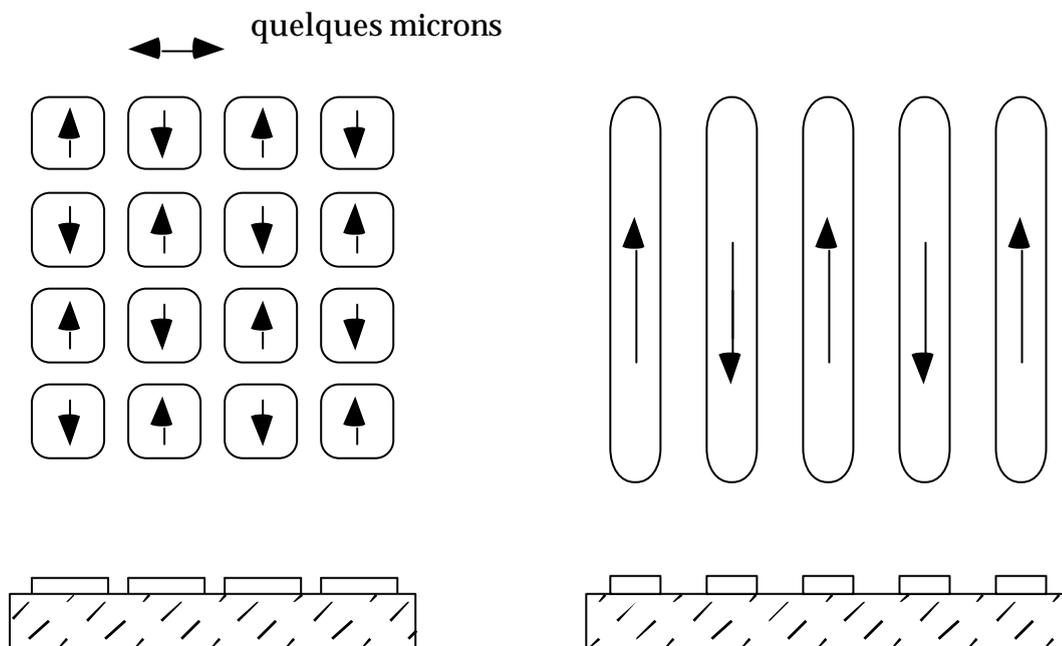


Figure 1 : exemples de configurations magnétiques possibles dans des nanostructures de matériaux magnétiques. Les différents nanoéléments sont couplés magnétiquement entre eux par couplage dipolaire. La configuration magnétique énergétiquement la plus favorable est un couplage antiferromagnétique.

Cependant, en pratique les nanostructures magnétiques ne deviennent monodomaines que pour des tailles inférieures à environ 100 nm dans le cas d'alliages nickel-fer. Ces tailles varient en fonction du matériau, de l'épaisseur de la nanostructure ou du fait que l'aimantation est planaire ou perpendiculaire. Au-delà de ces tailles des structures en domaines commencent à apparaître (voir Figure 2). Les illustrations de la Figure 1 ne peuvent représenter la réalité que dans le cas de motifs à aimantation perpendiculaire ou bien dans le cas de motifs très petits (quelques 100 nm) dans le cas d'une aimantation planaire.

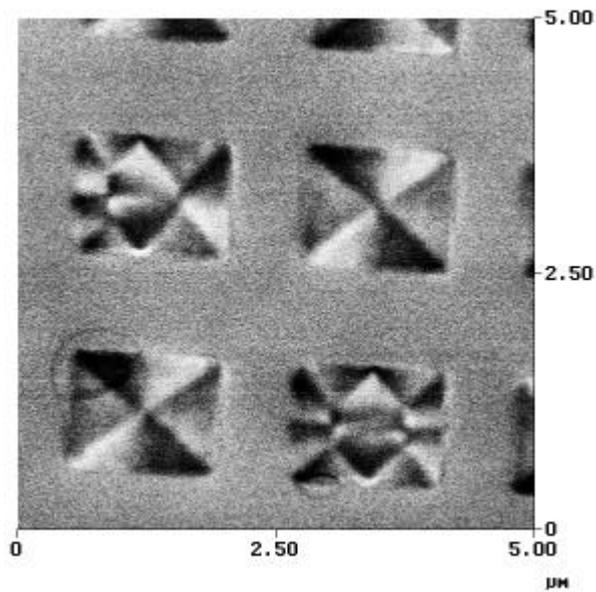


Figure 2 : configuration magnétique interne de plots de permalloy observée par microscope à force magnétique (Warin, CEA/Saclay).

Si on suppose que l'on a effectivement un tel réseau de lignes couplées antiferromagnétiquement comme représenté sur la Figure 1, la diffraction sur un tel réseau doit faire apparaître des pics de diffraction aux positions correspondant à la périodicité des motifs. De plus, les neutrons étant sensibles au contraste magnétique, des pics satellites supplémentaires de superpériodicité doivent apparaître aux positions correspondant à une périodicité double de la périodicité structurale du réseau. Dans le paragraphe suivant, nous allons essayer d'illustrer ces points.

### 1. Diffraction sur des réseaux de lignes lithographiées.

Nous présentons des mesures sur des réseaux de lignes d'alliage nickel-fer (Ni 88%/Fe 12%) déposées sur verre. La surface gravée des échantillons est de 1 cm<sup>2</sup>. Les largeurs typiques des lignes sont de 1 à quelques microns et l'espacement est du même ordre. L'épaisseur des lignes est de 640 nm. Dans le cas de lignes fines très rapprochées, ce réseau magnétique s'ordonne de manière antiferromagnétique par couplage dipolaire entre les lignes comme décrit précédemment. Nos études de diffusion non spéculaire en neutrons ont été limitées à l'étude de réseaux fabriqués par lithographie optique car ceux-ci peuvent couvrir des surfaces de l'ordre du centimètre carré et sont donc exploitables en diffusion de neutrons. En revanche il n'est pas possible d'étudier des structures dont la périodicité est inférieure à 1 µm environ et ceci pour deux raisons :

- ces structures sont réalisées par lithographie X ou par lithographie électronique et les surfaces d'échantillon sont très limitées (1 mm<sup>2</sup> dans le cas de la lithographie X et 100x100 µm<sup>2</sup> dans le cas de la lithographie électronique).

- la périodicité de ces structures est telle qu'il est nécessaire de faire des mesures à grand vecteur de diffusion  $q$ . Ceci entraîne des limitations liées au flux de neutrons disponible.<sup>1</sup>

Les échantillons de lignes magnétiques présentés ci-après ont été fabriqués par C. Miramond du SPEC.

La Figure 3 montre le début d'une courbe de réflectivité sur un échantillon de lignes de permalloy déposées sur un substrat de silicium (périodicité  $7 \mu\text{m}$  ; largeur des lignes  $5 \mu\text{m}$ ). On peut constater que cet échantillon présente deux plateaux de réflectivité. La première coupure a lieu autour de  $0.2^\circ$ , ce qui correspond à l'angle critique du silicium. La deuxième coupure a lieu autour de  $0.4^\circ$ , ce qui correspond à l'angle critique du nickel. Si on normalise le plateau de réflectivité totale à 1, on constate que l'intensité du deuxième plateau de réflectivité correspond à 0.4 environ. Cette valeur est loin de la valeur de 70% qui correspondrait au rapport des surfaces des lignes sur la surface du substrat. Numériquement, il n'est pas possible de rendre compte de l'apparition de ces deux plateaux, une telle structure apparaît seulement pour des taux de recouvrement faibles (environ 30%). On en déduit donc que le code numérique ne permet pas de simuler de manière très satisfaisante un système où les lignes ont été inclinées pour ajuster la période effective.

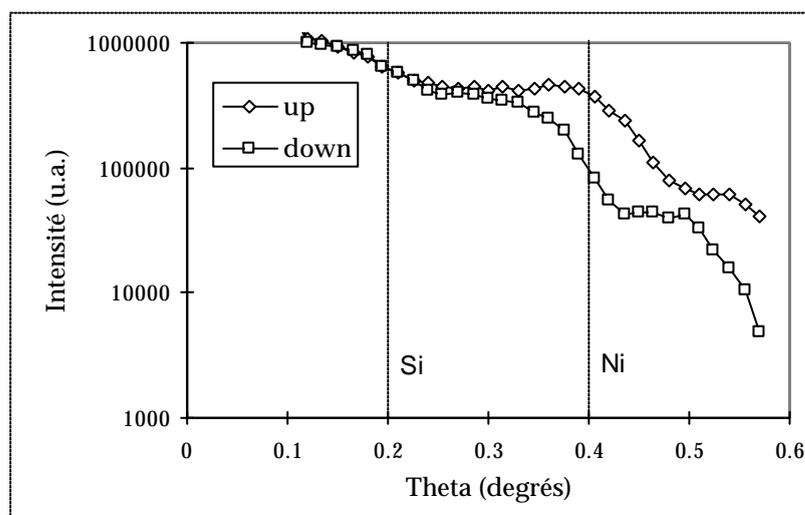


Figure 3 : réflectivité d'un réseau de lignes de NiFe de période  $7 \mu\text{m}$  et de largeur  $5 \mu\text{m}$ .

Sur la Figure 4 adaptée de (Miramond, 1997), on constate que le champ coercitif de lignes magnétiques dépend beaucoup de leur largeur. Pour des lignes de  $5 \mu\text{m}$  de large, le champ coercitif est de 14 G. Dans le cas de lignes de  $1 \mu\text{m}$ , le champ coercitif augmente à une valeur de 60 G.

*N.B.* : dans le cas de nanostructures, le champ coercitif est a priori ambigu car il existe un champ coercitif lié à la structure magnétique interne des lignes et un

<sup>1</sup> Cependant l'année prochaine, une modification du spectromètre PADA permettra d'accéder à ce type de mesures. En effet, il sera possible de collimater le faisceau sur des surfaces de l'ordre de  $1 \text{mm}^2$  et nous espérons une augmentation du flux d'un facteur 20 environ.

champ « coercitif » lié à la forme et au couplage entre structures. On définit le champ coercitif comme le point où l'aimantation est nulle.

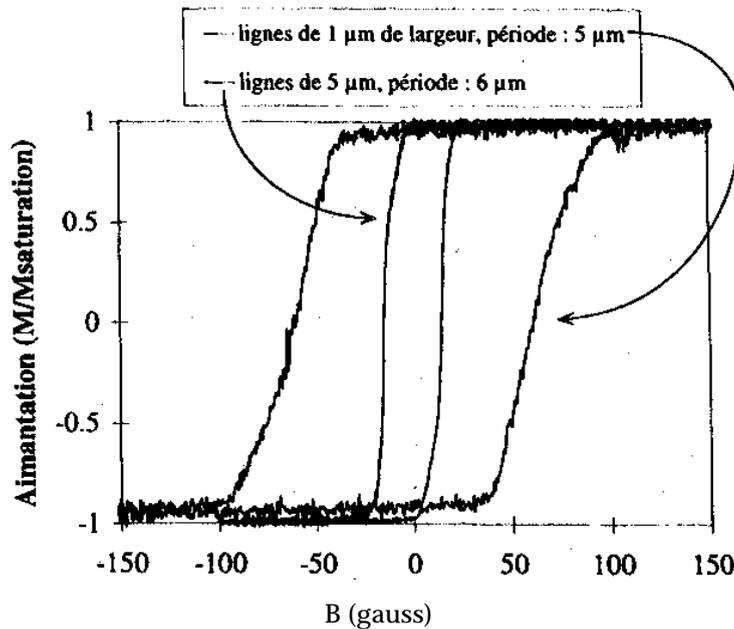


Figure 4 : courbes d'aimantation sur deux réseaux de lignes d'alliage nickel-fer (épaisseur des motifs 640 nm). Premier réseau, période 6 µm, lignes de largeur 5 µm ; deuxième réseau, période 5 µm, lignes de largeur 1 µm. Le champ magnétique est appliqué dans le sens des lignes (adapté de Miramond 1997)

La Figure 5 montre une mesure de diffusion non spéculaire sur un réseau de lignes de permalloy (périodicité de 6 µm, largeur des lignes de 5 µm). Lors de la mesure, l'échantillon était incliné de 30° ce qui donne une période effective vue par les neutrons de 12 µm. La Figure 5 montre une rocking curve autour de l'angle d'incidence 0.4° pour deux états magnétiques différents. Les courbes sont tracées en échelle logarithmique pour rendre la mesure plus lisible. En effet, les intensités diffractées ne représentent environ que 1% du signal spéculaire. La diffraction par un motif de périodicité 12 µm correspond à une position  $q_x = 0.52 \mu\text{m}^{-1}$ . On constate que cette valeur est en très bon accord avec les positions des premiers pics satellites de la Figure 5.

Sur la Figure 5a, un champ de 35 G est appliqué. Ce champ est suffisant pour saturer magnétiquement ces lignes de 5 µm (voir Figure 4). On observe un grand signal magnétique sur le pic spéculaire (ce qui correspond à la différence d'indice « classique »  $b_{+M}$  et  $b_{-M}$ ). Au contraire, les intensités « up-up » et « down-down » se superposent parfaitement sur les pics satellites (correspondant à la périodicité du réseau). Cela est très surprenant si l'on exclut une simple coïncidence.

Le champ magnétique appliqué sur l'échantillon a ensuite été varié de  $+H_{\text{sat}}$  à -5 G, afin de se placer dans un état où les lignes sont partiellement démagnétisées. L'« inversion » des courbes (+ +) et (- -) sur la Figure 5b est simplement due au fait que le champ appliqué sur l'échantillon est négatif. Sous le champ de -5 G, on observe plusieurs différences qualitatives. Dans le pic spéculaire, la différence d'intensité entre « up-up » et « down-down » est plus faible ; cela est simplement dû au fait que l'aimantation « globale » du système est plus faible sous -5 G que sous 35

G. Par ailleurs, aux positions intermédiaires  $q_x = \pm 0.25 \mu\text{m}^{-1}$ , il y a eu un changement notable. Dans le cas saturé (Figure 5 gauche), on observe une différence entre les signaux « up-up » et « down-down ». Au contraire, dans le cas partiellement démagnétisé, les courbes se superposent parfaitement à ces positions.

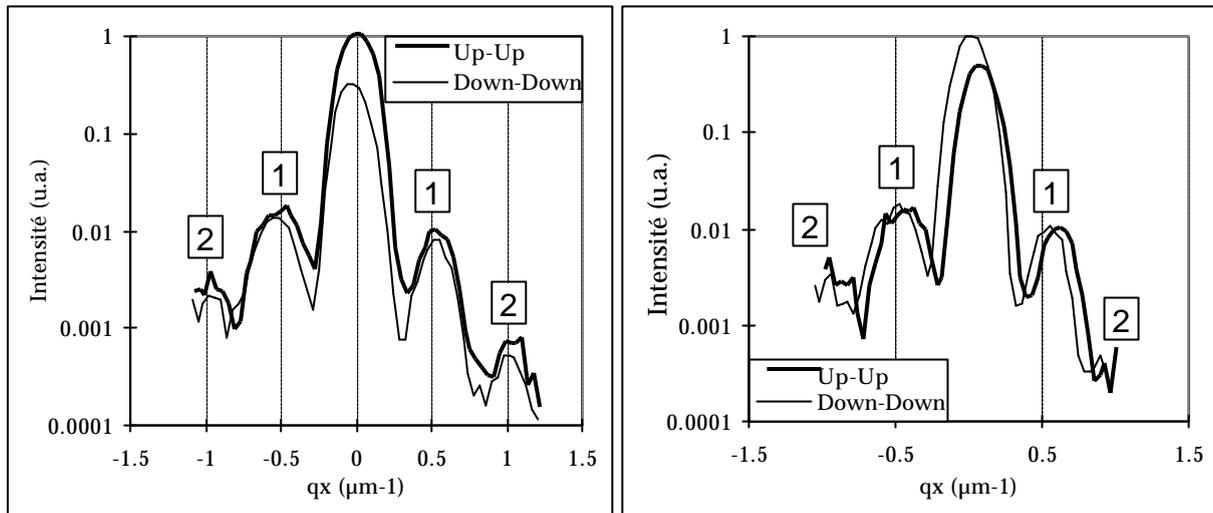


Figure 5 : rocking curve autour de  $0.4^\circ$  sur un réseau de période  $6 \mu\text{m}$  (lignes de  $5 \mu\text{m}$  de large). A gauche sous un champ de  $35 \text{G}$  ; à droite sous un champ de  $-5 \text{G}$ . Noter l'inversion up-up et down-down. Les pics de diffraction sont indexés.

La Figure 6 montre une mesure exactement identique à la mesure précédente à la seule différence qu'il s'agit de la rocking curve autour de  $0.6^\circ$ . On observe des changements qualitatifs très importants. La position des pics satellites principaux est maintenant autour de  $q_x = 1 \mu\text{m}^{-1}$ . Il existe cependant toujours un signal autour de la position  $0.5 \mu\text{m}^{-1}$ .

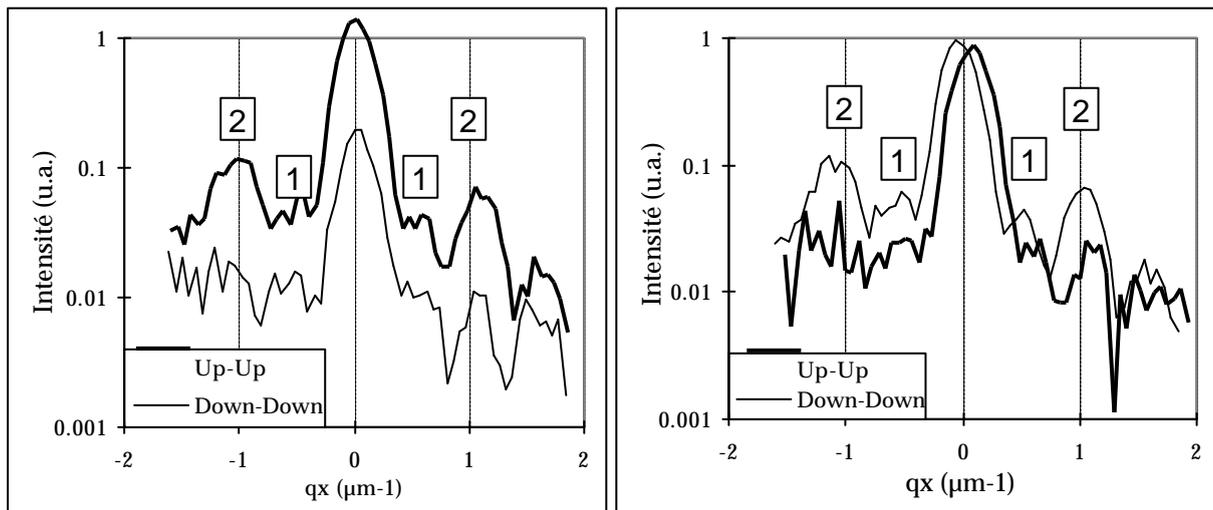


Figure 6 : rocking curve autour de  $0.6^\circ$  sur un réseau de période  $6 \mu\text{m}$  (lignes de  $5 \mu\text{m}$  de large). A gauche sous un champ de  $35 \text{G}$  ; à droite sous un champ de  $-5 \text{G}$ . Les pics de diffraction sont indexés. Noter l'inversion up-up et down-down.

Pour vérifier qu'il est effectivement possible d'obtenir des pics de diffraction d'ordre 2 d'intensité supérieure à l'intensité des pics d'ordre 1, nous avons calculé numériquement les intensités diffractées sur un réseau de lignes de NiFe de période 6  $\mu\text{m}$ . Nous avons supposé que le profil du réseau de lignes est rectangulaire. (lignes de largeur 5  $\mu\text{m}$  et de hauteur 650 nm). L'intensité des modes de diffraction 0, 1 et 2 est tracé en fonction de l'angle de diffusion  $2\theta$  (dans le cas d'une polarisation « up ») sur la Figure 7.

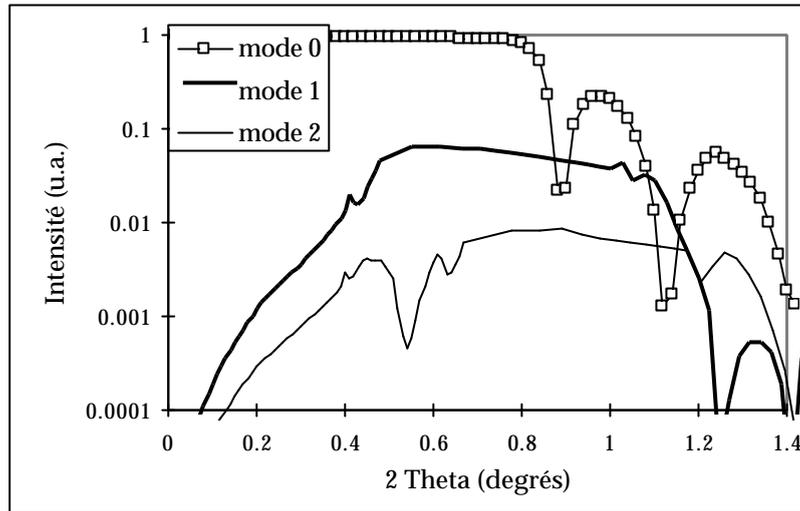


Figure 7 : simulation des intensités des modes diffractés en fonction de l'angle de mesure  $2\theta$  pour un réseau de périodicité 6  $\mu\text{m}$  (lignes de NiFe de largeur 5  $\mu\text{m}$  et de hauteur 650 nm) (Cas d'une polarisation « up »).

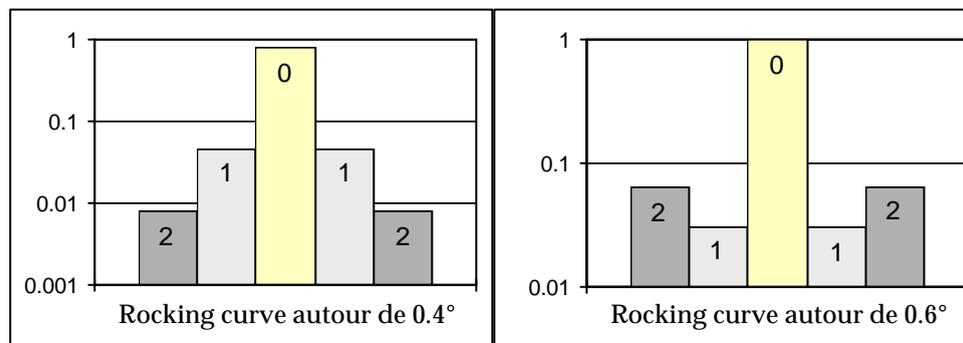


Figure 8 : intensités relatives des modes 0, 1 et 2 pour des rocking curves autour de  $0.4^\circ$  et de  $0.6^\circ$  déduites des calculs de la Figure 7. Ces résultats se comparent qualitativement avec les mesures des Figure 5a et Figure 6a.

La Figure 8 résume les intensités relatives des différents modes 0, 1 et 2 pour les deux rocking curves autour de  $0.4^\circ$  et de  $0.6^\circ$ . Dans le cas de la rocking curve autour de  $0.4^\circ$ , on surestime les intensités des modes diffusés (voir Figure 5a). Dans le cas de la rocking curve autour de  $0.6^\circ$ , on observe bien un signal du mode +2 supérieur à celui du mode 1. De plus les intensités sont bien reproduites quantitativement (voir Figure 6a). Evidemment, le calcul numérique ne permet pas de rendre compte de la forme des pics.

Nous avons ensuite étudié la diffusion un réseau de lignes de périodicité 5  $\mu\text{m}$  mais dont la largeur des lignes est réduite à 1  $\mu\text{m}$ . On se rapproche du cas de lignes

monodomaines. La Figure 9 montre une mesure de rocking curve autour de  $0.5^\circ$  sur ce réseau de lignes.

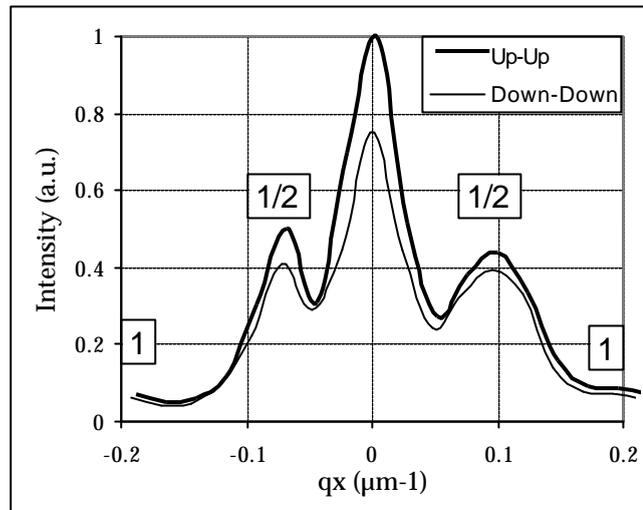


Figure 9 : rocking curve autour de  $0.5^\circ$  sur un réseau de lignes de périodicité  $5 \mu\text{m}$  (lignes de largeur  $1 \mu\text{m}$ ), sous un champ magnétique de  $40 \text{ G}$ . L'échantillon était incliné de  $80^\circ$  par rapport au plan d'incidence lors de la mesure.

L'orientation de l'échantillon (inclinaison  $\alpha$  de  $80^\circ$ ) est telle que la période structurale vue par les neutrons est de  $29 \mu\text{m}$ . Or les premiers pics satellites sont à une position située autour de  $0.1 \mu\text{m}^{-1}$ , ce qui correspond en fait une période de  $63 \mu\text{m}$ , double de la période structurale. Les pics satellites principaux sont donc des pics de superstructure d'ordre  $\frac{1}{2}$ , correspondant à un ordre antiferromagnétique entre les lignes du réseau.

Nous en déduisons que le retournement de l'aimantation dans ce réseau de lignes de  $1 \mu\text{m}$  a lieu par renversement de l'aimantation de certaines lignes qui se couplent antiferromagnétiquement aux lignes voisines. Au champ coercitif, le réseau se trouve dans un état où les lignes sont couplées antiferromagnétiquement entre elles.

## 2. Diffraction de surface sur un réseau de domaines magnétiques ordonnés.

Il a été montré récemment par C. Fermon et A. Marty qu'il est aussi possible d'envisager des mesures non spéculaires magnétiques sur des structures magnétiques « autoorganisées ». Les couches magnétiques de  $\text{Fe}_{50}\text{Pd}_{50}$  sont des systèmes structures à aimantation perpendiculaire. Les domaines magnétiques dans ces systèmes peuvent s'organiser en lignes de  $50 \text{ nm}$  de largeur environ. Un faible champ magnétique permet d'orienter ces domaines dans une direction privilégiée. La Figure 11 montre une image MFM de ces domaines orientés qui créent un réseau de lignes magnétiques dans une couche mince continue. Un réseau périodique magnétique de périodicité  $100 \text{ nm}$  est ainsi créé sans avoir recours aux techniques de lithographie.

Il est possible de réaliser des mesures de diffusion aux petits angles sur ces structures en lignes magnétiques. Une telle mesure a été réalisée sur le spectromètre de diffusion aux petits angles PAPOL du LLB par C. Fermon et A. Marty (voir géométrie sur la Figure 10). Dans l'expérience, les lignes sont alignées le long du plan d'incidence. La géométrie de diffraction est une géométrie de diffraction de surface. Le vecteur de diffusion possède deux composante : une composante « spéculaire »  $q_z$  dans le plan d'incidence et une composante « hors spéculaire »  $q_y$  perpendiculaire au plan d'incidence. L'aimantation des lignes est perpendiculaire à la composante  $q_y$ , ce qui permet de mesurer l'aimantation perpendiculaire dans ces couches de  $\text{Fe}_{50}\text{Pd}_{50}$ .

Un exemple de diffraction est présenté sur la Figure 13. On peut observer un spot spéculaire principal et deux spots hors spéculaires d'intensité plus faible ( $10^{-3}$ ). Les positions de ces pics reflètent la périodicité des domaines magnétiques. Cependant, le maximum d'intensité de ces pics est obtenu dans la direction correspondant à l'angle critique de la couche quel que soit l'angle d'incidence. Le maximum d'intensité des pics hors spéculaires est obtenu lorsque l'angle d'incidence est égal à  $q_c$ . Ces pics ont un comportement similaires à des pics de Yoneda (Yoneda, 1963 ; Guentert, 1965 ; Nigam, 1965).

Afin de décrire ces observations, j'ai, dans une première approche, utilisé l'approximation DWBA présentée en IV.A. Le système de départ « non perturbé » est la couche plane de  $\text{Fe}_{50}\text{Pd}_{50}$  ; la perturbation est la structure magnétique créée par les domaines magnétiques. Dans ce cas, la section de diffusion est donnée par (Sinha, 1988) :

$$\left(\frac{dS}{d\Omega}\right)_{diff} = (L_x L_y) \frac{|k_0^2(1-n^2)|^2}{16p^2} |T(\mathbf{k}_1)|^2 |T(\mathbf{k}_2)|^2 S(\mathbf{q}_t) \quad (\text{IV.2})$$

avec

$$S(\mathbf{q}_t) = \frac{\exp\left(-\left[(q_z^t)^2 + (q_z^{t*})^2\right] s^2 / 2\right)}{|q_z^t|^2} \iint_S dXdY \left(\exp\left(|q_z^t|^2 C(X, Y)\right) - 1\right) \exp\left(i(q_x X + q_y Y)\right)$$

où  $C(X, Y)$  est la fonction de corrélation de la rugosité magnétique,  $\mathbf{q}$  est le vecteur de diffusion  $\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$  et  $\mathbf{q}_t$  est le vecteur de diffusion dans la couche. Des maxima dans la diffusion hors spéculaire sont obtenus lorsque les vecteurs  $\mathbf{k}_1$  or  $\mathbf{k}_2$  font un angle proche de  $q_c$  car pour ces positions, les coefficients de Fresnel  $\mathbf{T}$  sont maximaux.

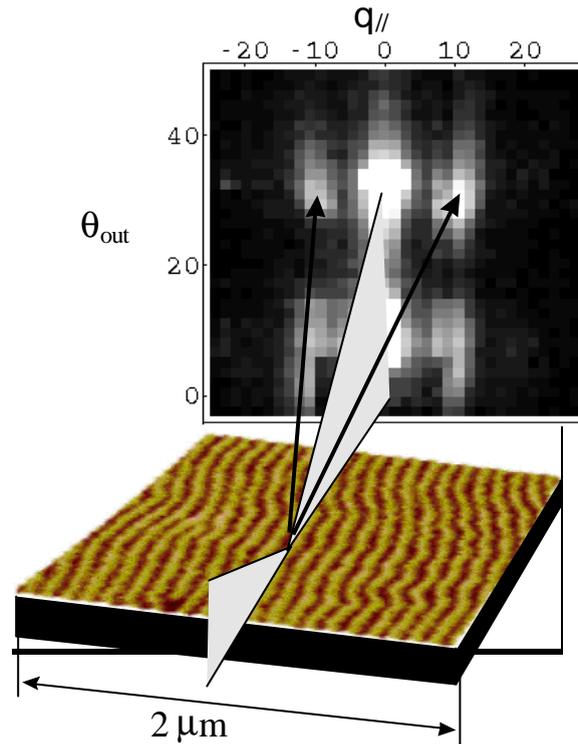


Figure 10 : image MFM d'une couche mince magnétique Fe/Pd présentant des domaines magnétiques orientés. Au-dessus, plan 2D des intensités diffractées par le réseau de lignes (mesure réalisée sur le spectromètre PAPOL du LLB). Illustration fournie par C. Fermon CEA/Saclay et A. Marty CEA/Grenoble.

Dans le cas de lignes magnétiques, on définit la fonction de corrélation des lignes magnétiques par :

$$C(X, Y) = \frac{1}{S_0} \iint_{S_0} M(x, y) M(x + X, y + Y) dx dy \quad (\text{IV.4})$$

La fonction de corrélation est une fonction en dents de scie si on suppose des interfaces raides entre les domaines. La Figure 11 montre une image MFM et la fonction de corrélation correspondante. Comparé à l'image dans l'espace réel la fonction de corrélation présente des différences. La périodicité suivant (Oy) est la même que la périodicité des lignes mais les détails sont plus réguliers et les lignes sont plus droites.

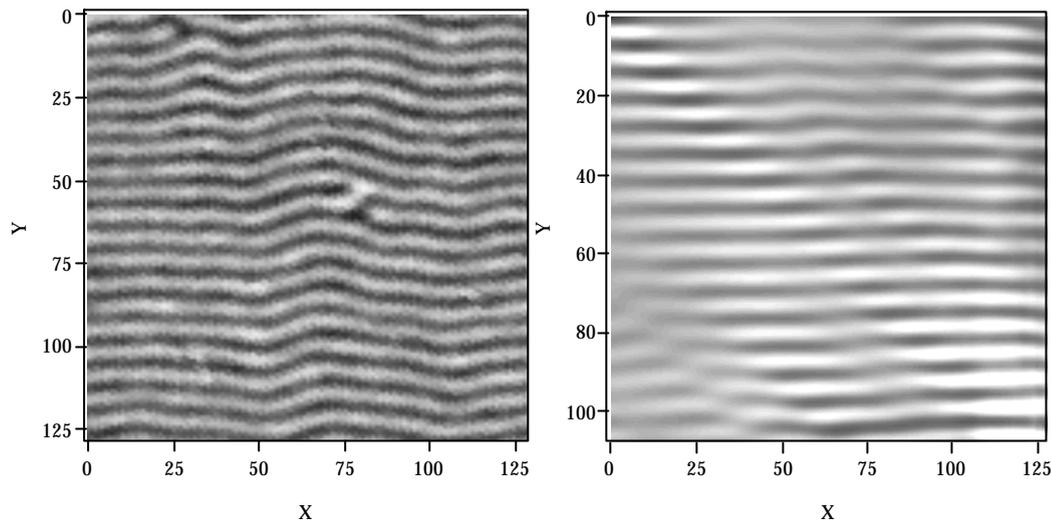


Figure 11 : image MFM à gauche (taille  $2 \times 2 \mu\text{m}$ ), fonction de « corrélation magnétique » correspondante à droite.

Si  $q_z^t$  est petit,  $S(\mathbf{q}_t)$  se réduit à la transformée de Fourier de la fonction de corrélation magnétique :

$$S(q_t) = \iint_S dXdY C(X, Y) \exp(i(q_x X + q_y Y))$$

Le signal hors-spéculaire mesure la transformée de Fourier de la fonction de corrélation magnétique. La Figure 12 montre la transformée de Fourier de la fonction de corrélation expérimentale ainsi que les deux coupes suivant les lignes  $q_x = 0$  et  $q_y = 0$ . On peut remarquer que les deux pics de diffraction correspondent à la périodicité des lignes (100 nm) aux positions ( $q_x = 0$ ,  $q_y = 0.62 \text{ nm}^{-1}$ ). Cependant la forme de ces pics est légèrement asymétrique car les lignes magnétiques ne sont pas parfaitement alignées suivant (Ox). Il y a par ailleurs un signal hors spéculaire assez important suivant  $q_x = 0$  ainsi que suivant  $q_y = 0$ . Les pics apparaissant sur la figure n'ont rien à voir avec les pics de Yoneda, ils reflètent seulement la structure de la fonction de corrélation.

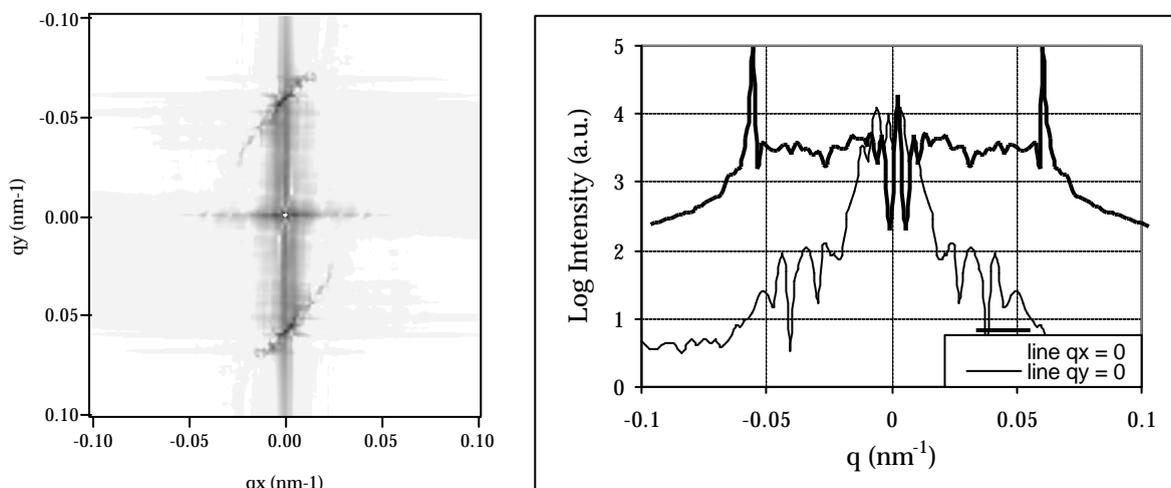


Figure 12 : à gauche, transformée de Fourier de la fonction de corrélation magnétique et à droite, deux coupes suivant les lignes  $q_x = 0$  et  $q_y = 0$ .

La Figure 13 montre le signal hors-spéculaire calculé pour deux angles d'incidence différents, l'angle critique  $q_c = 0.5^\circ$  et  $q = 0.7^\circ$ . Les positions des pics restent inchangés quel que soit l'angle d'incidence. Le maximum d'intensité est obtenu lorsque l'angle d'incidence est égal à l'angle critique  $q_c$ .

L'approche DWBA n'est cependant pas bien appropriée pour notre problème car la rugosité s'étend sur toute l'épaisseur de la couche magnétique de telle sorte que la couche plane n'est pas un bon état de base et est très loin des vrais états propres du système.

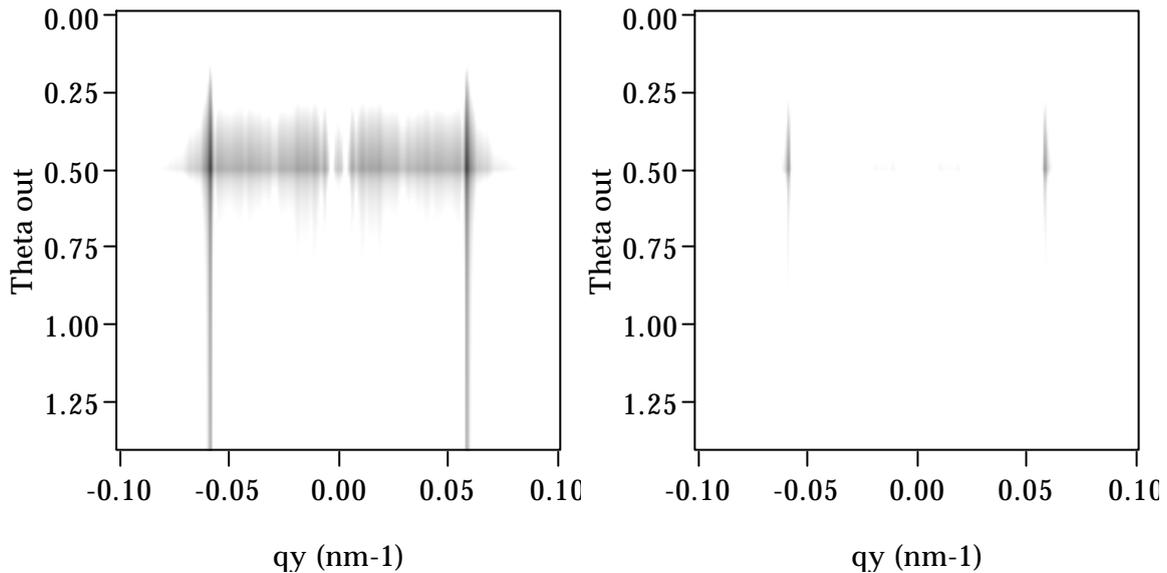


Figure 13 : signal hors spéculaire calculé pour deux angles d'incidences différents (a)  $\theta = \theta_c = 0.5^\circ$  et (b)  $\theta = 0.7^\circ$ . La position des maxima ne bouge pas mais leur intensité décroît lorsque l'angle d'incidence s'éloigne de de l'angle critique  $q_c$ .

### 3. Conclusion.

Nous avons montré qu'il est possible de déterminer par diffusion hors spéculaire l'ordre magnétique dans des réseaux de lignes magnétiques lithographiées. De plus une expérience de diffraction de surface a montré qu'il était possible d'être sensible à des aimantations perpendiculaires.

Les mesures de diffusion hors spéculaire magnétiques en sont encore à leur balbutiements. Cependant des progrès rapides peuvent être espérés lorsque des intensités plus importantes seront disponibles. Il sera alors possible d'effectuer des mesures précises sur des systèmes et dans des conditions variés afin de pouvoir comprendre tous les effets entrant en jeu dans ce type de diffraction.

## **G. Utilisation de supermiroirs gravés pour l'analyse en énergie d'un faisceau de neutrons.**

Les systèmes de réseaux gravés sont devenus depuis quelques années des éléments d'optiques très utilisés dans le domaine du rayonnement X (monochromateurs en particulier). Mais c'est toujours un domaine de recherche très actif et en constant progrès (Tolan, 1995). Le domaine de l'instrumentation neutronique a pour le moment vu très peu d'utilisations de ces structures artificielles. Une réalisation notable est cependant l'utilisation de réseaux gravés pour l'interférométrie neutronique (Ioffe, 1991 ; Mikerov, 1991 ; Maaza, 1985 ; Schellhorn, 1997).

Nous proposons d'utiliser des réseaux gravés pour l'analyse en énergie de faisceaux blancs de neutrons. Ce type de dispositif aurait une application directe sur les spectromètres de réflectométrie en temps de vol et permettrait des gains très importants en temps d'expérience.

### *1. Principe du système d'analyse par réseau gravé.*

Un grand nombre de réflectomètres utilisent le principe du temps de vol. Le faisceau de neutrons incident est soit « naturellement » pulsé parce que produit par une source à spallation, soit mécaniquement haché en paquets par un « chopper ». Un tel pulse de neutrons est envoyé sur l'échantillon à mesurer, puis le paquet de neutrons polychromatiques s'« allonge » à cause de la différence d'énergie cinétique des neutrons en fonction de leur longueur d'onde. L'énergie des neutrons est mesurée par le temps de vol des neutrons du hacheur au détecteur. Le système que nous proposons permet de s'affranchir de l'étape de mise en paquets des neutrons. L'échantillon est éclairé par un faisceau polychromatique (couvrant toute la gamme de longueur d'onde utile du guide). Après réflexion sur l'échantillon, ces neutrons sont « diffractés » par le réseau gravé. La direction de diffraction est une fonction de la longueur d'onde. En utilisant un multidétecteur on peut ainsi instantanément mesurer toute la courbe de réflectivité (voir Figure 14). Le gain en flux apporté par ce dispositif est donné par le rapport entre le nombre de neutrons gagnés par le fait qu'on utilise un faisceau blanc incident sur l'échantillon et l'efficacité du grating. Sur le spectromètre EROS, le rapport du temps de fermeture sur le temps d'ouverture du chopper est de 200. Donc pour des efficacités de diffraction du grating aussi faibles que 5%, le dispositif permet tout de même de gagner un facteur 10 (théorique) en temps d'expérience.

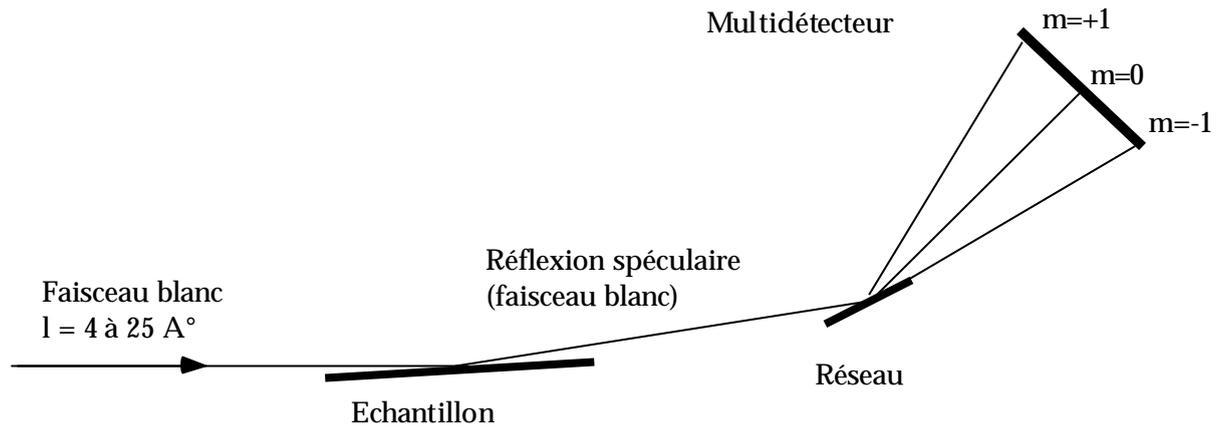


Figure 14 : utilisation d'un réseau de diffraction pour réaliser une analyse en énergie du faisceau de neutrons dans une expérience de réflectivité de neutrons sur un spectromètre en temps de vol.

## 2. Problèmes de résolution et optimisation du dispositif.

On recherche un dispositif qui présente des efficacités de diffraction les plus grandes possibles et permette de travailler sur la gamme de longueur d'onde (0.3-2.5 nm). Ceci est un problème de fabrication lié à la structure du super-réseau et à la qualité de lithographie.

Par ailleurs on souhaite que la variation angulaire de la direction de diffraction en fonction de la longueur d'onde soit aussi grande que possible. Cette relation est uniquement soumise à des conditions géométriques : les seuls paramètres « variables » sont la périodicité du réseau et l'angle d'incidence du faisceau à analyser sur le réseau. On peut tracer les directions de diffraction en fonction de la longueur d'onde pour différentes périodicités du grating et différents angles d'incidence (voir Figure 15)

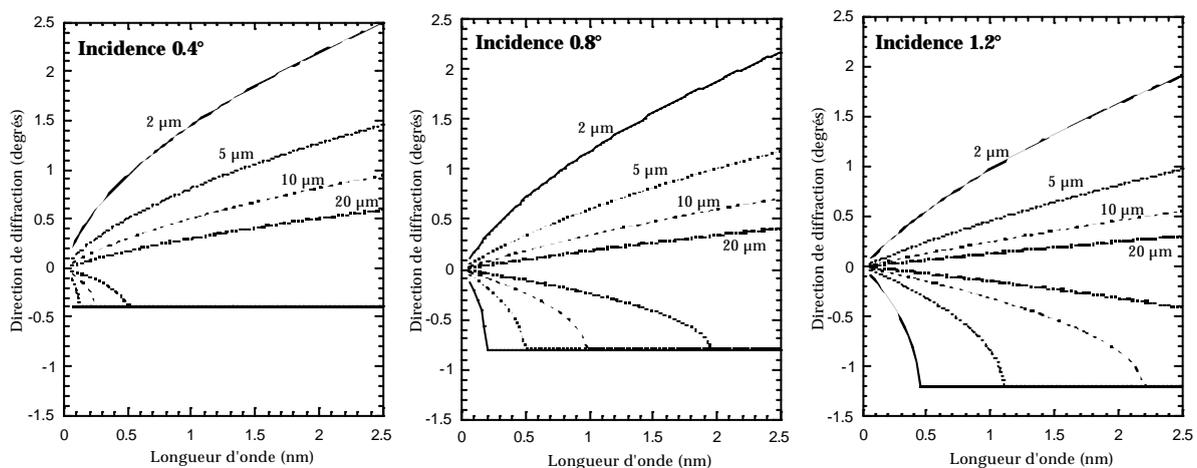


Figure 15 : directions de diffraction des modes +1 et -1 par rapport à la direction spéculaire en fonction de la longueur d'onde pour différentes périodicité de réseau (2, 5, 10 et 20  $\mu\text{m}$ ) et différents angles d'incidence (0.4°, 0.8° et 1.2°).

Nous pouvons faire plusieurs commentaires sur les résultats de la Figure 15. La première remarque évidente est qu'au-delà d'une certaine longueur d'onde, la diffraction des modes -1 est limitée par l'angle d'incidence. Par ailleurs, les variations de la direction de diffraction avec la longueur d'onde sont d'autant plus importantes que la périodicité est petite. Nous observons aussi que la dispersion angulaire augmente inversement avec l'angle d'incidence. Cependant l'angle d'incidence n'est pas un paramètre aussi critique que la périodicité du réseau. Les conditions idéales sont donc une périodicité aussi faible que possible et un angle d'incidence aussi petit que possible.

Bien sûr ces conditions doivent satisfaire à certaines contraintes techniques. Les gravures submicroniques sont difficiles à réaliser sur de grandes surfaces ; l'angle d'incidence doit être assez important pour limiter la dimension du dispositif à des tailles raisonnables. Par ailleurs, les efficacités de diffraction diminuent quand la périodicité du réseau diminue. Il faut donc trouver un compromis entre toutes ces contraintes. Un compromis satisfaisant semble obtenu pour un système de périodicité 5  $\mu\text{m}$  et un angle d'incidence de  $0.8^\circ$ . Dans cette configuration, on obtient une dispersion angulaire des directions de diffraction sur  $2^\circ$  environ. Si on suppose une résolution angulaire du faisceau incident de  $0.02^\circ$ , cela signifie que l'on peut potentiellement mesurer une centaine de points expérimentaux simultanément sur la courbe de réflectivité.

Ce dispositif d'analyse en énergie est potentiellement intéressant mais il nécessitera un développement instrumental assez important.

## **H. Conclusion.**

Dans ce chapitre nous avons présenté un formalisme dynamique permettant de calculer la diffusion non spéculaire sur des systèmes périodiques.

Un code de calcul permettant de calculer la réflectivité sur un système de lignes lithographiées a été écrit . Les calculs théoriques sont en bon accord avec les mesures effectuées sur des systèmes lithographiées variés : périodicités de 2 à 20  $\mu\text{m}$ , profondeur de grating de 20 à 80 nm, matériaux variés. Expérimentalement nous avons montré qu'il est relativement aisé de fabriquer des réseaux ayant des efficacités de diffraction supérieures à 10%. Nous avons proposé l'utilisation de tels réseaux pour la fabrication d'un dispositif d'analyse en énergie d'un faisceau blanc et son application à un spectromètre en temps de vol.

Par ailleurs, nous avons développé un formalisme pour calculer *la diffusion non spéculaire dans le cas de structures magnétiques*. Ce formalisme permet d'envisager de traiter deux types de problèmes nouveaux jusqu'à présent inaccessibles : la détermination de structures magnétiques périodiques dans le plan, ayant pour origine soit une autoorganisation des domaines magnétiques en lignes ou bien la création artificielle de motifs magnétiques par lithographie.

C'est un premier pas vers deux domaines importants plus généraux. Le premier est la détermination des vecteurs d'aimantation avec une résolution à la fois en profondeur et latéralement dans le plan de la couche. La deuxième application est le

traitement de « la rugosité magnétique » (en introduisant le spectre des fluctuations de l'aimantation).

***Conclusion  
et  
perspectives***



## ***Conclusion et perspectives***

Dans le domaine de la réflectivité de neutrons polarisés, un des enseignements de ce travail a été de montrer qu'il est possible d'étudier des systèmes magnétiques en couches simples, bicouches ou tricouches et d'obtenir des informations locales précises.

Ce type d'études contraste avec les études plus classiques sur des systèmes de multicouches. En effet dans les mesures de réflectivité sur des superréseaux, on n'obtient qu'une information moyennée sur l'ensemble des couches; cela s'apparente à la diffraction classique qui donne des informations sur l'ordre magnétique à longue distance et est donc une mesure plus « globale ».

L'étude de systèmes simples permet d'obtenir des informations « locales » sur l'aimantation alors que celles-ci serait noyées dans des systèmes de multicouches. Ceci est particulièrement intéressant puisque cela permet de mesurer des effets très difficiles à observer autrement. Nous avons en particulier montré qu'il est possible d'observer des inhomogénéités d'aimantation dans des systèmes de couches simples de nickel soumises à des contraintes de déformation. Nous avons attribué ces effets à l'existence de gradients de constante magnéto-élastique dans l'épaisseur des films minces. Dans des systèmes de bicouches et tricouches magnétiques, à profil de constante magnéto-élastique modulé, la réflectivité de neutrons polarisés nous a permis de vérifier qu'il est possible d'induire des gradients d'aimantation importants par application de contraintes mécaniques.

Dans l'avenir, l'extension du domaine en  $q$  accessible (par l'augmentation du flux) permettra d'obtenir des résolutions supérieures sur les aimantations d'interface. Les études du magnétisme d'interface est un domaine appelé à se développer fortement.

Des progrès importants ont été faits dans la compréhension de la technique de réflectivité en neutrons polarisés avec analyse de polarisation à la fois sur le plan théorique (effets d'énergie Zeeman) et expérimental (problèmes de polarisation des faisceaux). Il est probable que d'autres phénomènes nouveaux seront observés dans un futur proche.

Une confiance suffisante a maintenant été acquise dans la modélisation des expériences de réflectivité et leur simulation numérique. Cela permet de se dispenser de mesurer systématiquement l'ensemble des courbes de réflectivité pour chaque condition de champ et de température. Lorsque le système est bien caractérisé structurellement et magnétiquement, il est possible d'obtenir des informations magnétiques précises résolues en profondeur, grâce à quelques points expérimentaux bien choisis dans l'espace réciproque. Cela permet de réduire

considérablement les temps d'expérience et ainsi de réaliser des mesures en variant des paramètres extérieurs tels que le champ magnétique ou la température.

Nous avons démontré cette technique sur une structure magnétique en bicouche. L'aimantation de chacune des couches a été mesurée individuellement en fonction du champ extérieur appliqué.

Nous avons souligné les parallèles existant entre réflectivité de neutrons polarisés et techniques de magnéto-optique. Des modèles de calcul magnéto-optique ont montré qu'il est possible de déterminer le vecteur aimantation dans des films minces sans avoir à effectuer une rotation du champ magnétique extérieur appliqué (ce qui en général pose un problème pratique). Cette technique a été validée sur un spectromètre à effet Kerr que j'ai construit.

Par ailleurs nous avons montré qu'il serait possible de déterminer optiquement des profils d'aimantation résolus en profondeur dans ces couches minces.

Les deux techniques sont cousines et complémentaires, les techniques neutroniques ayant l'avantage de la précision, les techniques optiques celui de la simplicité de mise en oeuvre.

Le champ d'utilisation de la réflectivité de neutrons a été étendu au domaine non spéculaire. Il a été possible de rendre compte quantitativement de la diffraction sur des systèmes 2D modèles de réseaux lithographiés. Expérimentalement nous avons montré qu'il est relativement aisé de fabriquer des réseaux ayant des efficacités de diffraction supérieures à 10%. Nous avons proposé une application de ces réseaux de diffraction en optique neutronique pour la fabrication d'un dispositif d'analyse en énergie d'un faisceau blanc.

Les premiers jalons ont été posés dans le domaine de la diffusion hors spéculaire magnétique. Cette nouvelle technique permettra à moyen terme de déterminer quantitativement (en valeur absolue de l'aimantation) des structures magnétiques avec une résolution non seulement en profondeur (réflectivité classique) mais aussi latéralement dans le plan des couches magnétiques (réflectivité hors spéculaire), et de manière plus générale les corrélations magnétiques planaires. On disposera d'une nouvelle technique de magnétométrie en trois dimensions sans rivale directe.

Un formalisme dynamique a été développé et un certain nombre d'expériences préliminaires ont été réalisées.

La diffusion hors spéculaire magnétique de neutrons est un domaine qui est amené à fortement se développer car elle ouvre des horizons encore inexplorés dans le domaine du magnétisme de surface.





# ***Annexes***

## **Annexes**

### **Annexe A:**

*Interaction neutron-couche magnétique infinie.* \_\_\_\_\_ 213

### **Annexe B:**

*Calcul de la réflectivité optique d'un système de couches minces.* \_\_\_\_\_ 215

### **Annexe C:**

*Fonction de transfert d'un ellipsomètre à polariseur tournant.* \_\_\_\_\_ 217

### **Annexe D:**

*Implémentation numérique du calcul dynamique de la diffraction sur un réseau.  
Algorithme S-matrix.* \_\_\_\_\_ 219

### **Annexe E :**

*Analyse d'un faisceau de neutrons par utilisation d'un dispositif de Stern-  
Gerlach : analyse de spin et analyse en énergie.* \_\_\_\_\_ 222

## Annexe A : Interaction neutron-couche magnétique infinie.

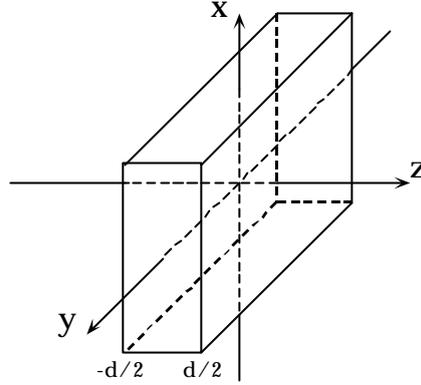


Figure 1 : couche mince magnétique d'épaisseur  $d$  et définition du système d'axes.

On rappelle que lorsque le neutron entre dans une distribution de champ magnétique  $\mathbf{H}(\mathbf{r})$ , il est soumis à un potentiel :

$$V(\mathbf{r}) = -\mathbf{m} \cdot \mathbf{H}(\mathbf{r}) = -g \mu_n s \cdot \mathbf{H}(\mathbf{r}) \quad (\text{Annexe A .2})$$

où  $\mu = g_n \mu_n s$  est le moment magnétique du neutron et où  $g_n = -1.91$ .

Le champ créé au point  $\mathbf{r}$  par un électron non apparié est donné par :

$$\mathbf{H}(\mathbf{r}) = \nabla \times \left( \frac{\mathbf{m}_e \times \mathbf{r}}{r^3} \right) - \frac{e \mathbf{v}_e \times \mathbf{r}}{c r^3} \quad (\text{Annexe A .4})$$

où le premier terme est une contribution de spin et le deuxième terme une contribution orbitale.

Soit  $\mathbf{r}_0$  la position du neutron. Le potentiel d'interaction du neutron avec la couche magnétique est obtenu en intégrant le potentiel (Annexe A .2) sur le volume  $\Omega$  de la couche magnétique :

$$V(\mathbf{r}_0) = -g_n m_h \int_{\Omega} \mathbf{r}(\mathbf{r}) \cdot \left[ \nabla \times \left( \frac{\mu_e \times (\mathbf{r}_0 - \mathbf{r})}{r^3} \right) - \frac{e \mathbf{v}_e \times (\mathbf{r}_0 - \mathbf{r})}{c r^3} \right] d^3 r \quad (\text{Annexe A .6})$$

où  $\mathbf{r}(\mathbf{r})$  est la densité électronique.

Ecrivons la partie de spin du champ électronique sous la forme d'une transformée de Fourier :

$$\nabla \times \left( \frac{\mu_e \times (\mathbf{r}_0 - \mathbf{r})}{r^3} \right) = \int \frac{1}{q^2} [\mathbf{q} \times (\mu_e \times \mathbf{q})] e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_0 - i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r})} d^3 q \quad (\text{Annexe A .8})$$

On peut alors écrire la partie de spin du potentiel sous la forme :

$$\begin{aligned}
V(r_0) &= -g_n \mathbf{m}_r \mathbf{s} \cdot \int \frac{1}{q^2} \int_{\Omega} \mathbf{r}(r) [\mathbf{q} \times (\boldsymbol{\mu}_e \times \mathbf{q})] e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r}_0 - \mathbf{r})} d^3 r d^3 q \\
&= -g_n \mathbf{m}_r \mathbf{s} \cdot \int \frac{1}{q^2} \int_{x=-\infty}^{+\infty} e^{-iq_x r_x} dr_x \int_{y=-\infty}^{+\infty} e^{-iq_y r_y} dr_y \int_{z=-d/2}^{d/2} \mathbf{r}(r) [\mathbf{q} \times (\boldsymbol{\mu}_e \times \mathbf{q})] e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_0} e^{-iq_z r_z} dr_z d^3 q \\
&= -g_n \mathbf{m}_r \mathbf{s} \cdot \int \frac{1}{q_z^2} \int_{z=-d/2}^{d/2} \mathbf{r}(r) [\mathbf{q}_z \times (\boldsymbol{\mu}_e \times \mathbf{q}_z)] e^{i\mathbf{q}_z \cdot \mathbf{r}_0} e^{-iq_z r_z} dr_z dq_z \\
&= -g_n \mathbf{m}_r \mathbf{s} \cdot \boldsymbol{\mu}_{e//} \left[ \mathbf{q} \left( r_{0z} + \frac{d}{2} \right) - \mathbf{q} \left( r_{0z} - \frac{d}{2} \right) \right] \\
&\quad \text{(Annexe A .10)}
\end{aligned}$$

On peut faire le même calcul pour la partie orbitale du champ. On obtient finalement une interaction de la forme :

$$V(r_0) = -g_n \mathbf{m}_r \mathbf{s} \cdot \boldsymbol{\mu}_{e//} \left[ \mathbf{q} \left( r_{0z} + \frac{d}{2} \right) - \mathbf{q} \left( r_{0z} - \frac{d}{2} \right) \right] \quad \text{(Annexe A .12)}$$

Cette forme appelle deux remarques.

La première, attendue, est que l'interaction est nulle en dehors de la couche magnétique. En effet dans le cas d'une couche mince infinie, le champ rayonné en dehors de la couche est nul.

Le deuxième point est que c'est la composante planaire de l'aimantation qui intervient dans l'expression du potentiel. Cela souligne une des limitations de la réflectivité de neutrons polarisés : *on ne peut mesurer que la projection de l'aimantation dans le plan de la couche mince.*

N.B. : on retrouve le résultat classique que la diffusion magnétique d'un neutron est sensible à la composante de l'aimantation perpendiculaire au vecteur de diffusion. Cependant le résultat classique est démontré uniquement dans l'approximation de Born. La démonstration ci-dessus ne fait pas cette hypothèse.

## Annexe B : Calcul de la réflectivité optique d'un système de couches minces.

Nous allons présenter un formalisme utilisant des matrices de taille  $2 \times 2$  pour décrire la réflexion d'ondes électromagnétiques sur un système de couches minces anisotropes. Ce formalisme suit le développement de (Mansuripur, 1990).

Les équations de propagation dans un milieu anisotrope sont :

$$\left[ \left( \frac{\tilde{k}}{k_0} \right)^2 + \tilde{\epsilon} \right] \hat{E}_0^T = 0, \quad (a) \quad (\text{Annexe B .14})$$

$$\tilde{H}_0^T = \left( \frac{\tilde{k}}{k_0} \right) \hat{E}_0^T, \quad (b)$$

Les modes de propagation sont donnés par la condition d'existence de solution pour l'équation (Annexe B .14)a :

$$\left| \left( \frac{\tilde{k}}{k_0} \right)^2 + \tilde{\epsilon} = 0 \right| \quad (\text{Annexe B .16})$$

L'équation (Annexe B .16) possède 4 solutions  $k_1, k_2, k_3$  et  $k_4$ . Les solutions  $k_1$  et  $k_2$  se propagent "vers le bas" ( $k_1$  et  $k_2$  sont dans le demi-plan complexe inférieur), les solutions  $k_3$  et  $k_4$  se propagent vers le haut ( $k_3$  et  $k_4$  sont dans le demi-plan complexe supérieure) (voir illustration sur la Figure 2). Pour chacune de ces solutions, l'équation vectorielle (Annexe B .14)a possède une solution  $\vec{E} = [E_x, E_y, E_z]$ . Pour cette solution, deux des composantes peuvent être exprimées en fonction de la troisième composante. Pour les faisceaux 1 et 3, on résout (Annexe B .14)a en choisissant les composantes  $E_{x1}$  et  $E_{x3}$  comme paramètres ajustables. Pour les faisceaux 2 et 4, on résout (Annexe B .14)a en choisissant les composantes  $E_{y2}$  et  $E_{y4}$  comme paramètres ajustables. Il reste donc à déterminer les 4 composantes  $E_{x1}, E_{x3}, E_{y2}$  et  $E_{y4}$  pour résoudre complètement le problème. Les équations nécessaires seront obtenues par la continuité des composantes tangentielles des champs électrique et magnétique aux interfaces.

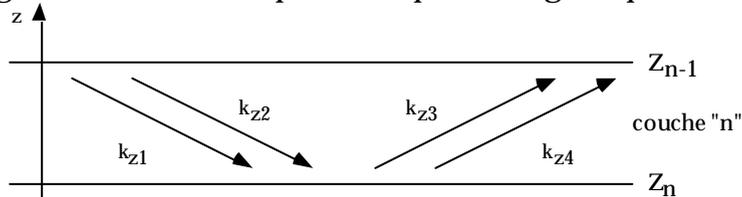


Figure 2 : il existe 4 modes de propagation dans chaque tranche. On désigne par (1) et (2) les modes se propageant vers le bas et par (3) et (4) les modes se propageant vers le haut

On définit la matrice de réflexion  $\mathbf{R}$  sur l'interface  $Z_n$  par :

$$\begin{pmatrix} E_{x3} \\ E_{y4} \end{pmatrix} = R_n \begin{pmatrix} E_{x1} \\ E_{y2} \end{pmatrix} \quad (\text{Annexe B .18})$$

Au-dessus de l'interface  $Z_n$ , le vecteur  $[E_x, E_y]$  peut se mettre sous la forme :

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix}_{Z_n^+} = \begin{pmatrix} 1 & a_2 \\ a_1 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{x1} \\ E_{y2} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 1 & a_4 \\ a_3 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{x3} \\ E_{y4} \end{pmatrix} = A_{12} \begin{pmatrix} E_{x1} \\ E_{y2} \end{pmatrix} + A_{34} \begin{pmatrix} E_{x3} \\ E_{y4} \end{pmatrix} \quad (\text{Annexe B .20})$$

où les coefficients  $a_1, a_2, a_3$  et  $a_4$  sont déterminés par l'équation (Annexe B .14)a.

On peut mettre l'équation précédente sous la forme :

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix}_{Z_n^+} = (A_{12} + A_{34}R_n) \begin{pmatrix} E_{x1} \\ E_{y2} \end{pmatrix}_n \quad (\text{Annexe B .22})$$

Soient  $C$  les matrices de propagation de l'interface  $Z_n$  à l'interface  $Z_{n-1}$ . Au niveau de l'interface  $Z_{n-1}$  (en-dessous), on a la relation :

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix}_{Z_{n-1}^-} = (A_{12}C_{12} + A_{34}C_{34}R_n) \begin{pmatrix} E_{x1} \\ E_{y2} \end{pmatrix}_n \quad (\text{Annexe B .24})$$

La continuité des composantes tangentielles du champ électrique au niveau de l'interface  $Z_n$  donne :

$$(A_{12} + A_{34}R_n)_n \begin{pmatrix} E_{x1} \\ E_{y2} \end{pmatrix}_n = (A_{12}C_{12} + A_{34}C_{34}R_n)_{n+1} \begin{pmatrix} E_{x1} \\ E_{y2} \end{pmatrix}_{n+1} \quad (\text{Annexe B .26})$$

De la même manière, en utilisant l'équation de propagation du champ magnétique (Annexe B .14)b et la continuité des composantes du champ magnétique aux interfaces, on obtient une équation similaire :

$$(B_{12} + B_{34}R_n)_n \begin{pmatrix} E_{x1} \\ E_{y2} \end{pmatrix}_n = (B_{12}C_{12} + B_{34}C_{34}R_n)_{n+1} \begin{pmatrix} E_{x1} \\ E_{y2} \end{pmatrix}_{n+1} \quad (\text{Annexe B .28})$$

où les matrices  $B$  sont définies par :

$$B_{12} = \begin{pmatrix} -k_{z1} a_1 + k_y b_1 & -k_{z2} + k_y b_2 \\ k_{z1} a_1 + k_x b_1 & k_{z2} a_2 + k_x b_2 \end{pmatrix} \quad (\text{Annexe B .30})$$

En éliminant les vecteurs  $[E_x, E_y]$  entre les équations (Annexe B .26) et (Annexe B .28), on obtient une équation de récursion reliant la réflectivité de l'interface  $n$  à la réflectivité de l'interface  $n+1$  :

$$R_n = (F_{n+1}A_{34}^{(n)} - B_{34}^{(n)})^{-1} (B_{12}^{(n)} - F_{n+1}A_{12}^{(n)})$$

avec  $F_{n+1} = (B_{12}C_{12} + B_{34}C_{34}R)_{n+1} \times (A_{12}C_{12} + A_{34}C_{34}R)_{n+1}^{-1}$  (Annexe B .32)

La récursion est initialisée par  $R_{\text{substrat}} = 0$ . Par itération jusqu'à la surface du système de couches minces, on obtient :

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix}_{\text{réfléchi}} = R \begin{pmatrix} E_{x1} \\ E_{y2} \end{pmatrix}_{\text{incident}} \quad (\text{Annexe B .34})$$

## Annexe C : Fonction de transfert d'un ellipsomètre à polariseur tournant.

Nous allons calculer la fonction de transfert d'un ellipsomètre à polariseur tournant (modulation périodique de la polarisation linéaire en fonction du temps). L'analyseur situé après la réflexion sur l'échantillon fait un angle  $A$  avec la direction perpendiculaire au plan d'incidence de la lumière. La Figure 3 montre un schéma de principe de ce dispositif.

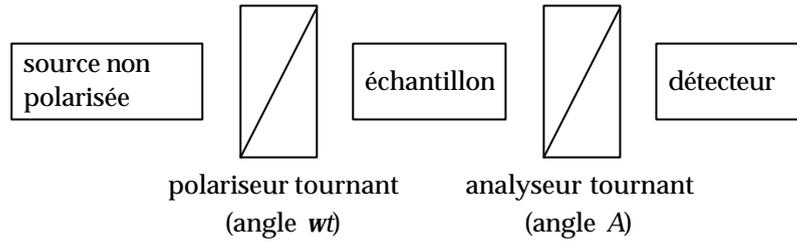


Figure 3 : schéma de principe d'un ellipsomètre à polariseur tournant.

On note  $\mathbf{R}$  la matrice de réflexion de l'échantillon (avec pour composantes  $r_{pp}$ ,  $r_{sp}$ ,  $r_{ps}$ ,  $r_{ss}$ ). Le champ électrique à la sortie de l'analyseur peut être calculé simplement par :

$$E_{out} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos A & \sin A \\ -\sin A & \cos A \end{bmatrix} \mathbf{R} \begin{bmatrix} \cos wt & -\sin wt \\ \sin wt & \cos wt \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} E_{in} \quad (\text{Annexe C .36})$$

L'intensité mesurée sur le photodétecteur est donnée par :

$$I(t) = |E_{out}(t)|^2 \quad (\text{Annexe C .38})$$

Après développement de (Annexe C .36), cette intensité se met sous la forme :

$$I(t) = I_0(1 + \mathbf{a} \cos 2wt + \mathbf{b} \sin 2wt) \quad (\text{Annexe C .40})$$

où les coefficients  $\mathbf{a}$  et  $\mathbf{b}$  sont donnés par :

$$\begin{aligned} \mathbf{a} &= \frac{1}{2} \left( (\cos A r_{pp} + \sin A r_{ps}) (\cos A r_{pp}^* + \sin A r_{ps}^*) - (\cos A r_{sp} + \sin A r_{ss}) (\cos A r_{sp}^* + \sin A r_{ss}^*) \right) \\ \mathbf{b} &= \frac{1}{2} \left( (\cos A r_{pp} + \sin A r_{ps}) (\cos A r_{sp}^* + \sin A r_{ss}^*) + (\cos A r_{sp} + \sin A r_{ss}) (\cos A r_{pp}^* + \sin A r_{ps}^*) \right) \end{aligned} \quad (\text{Annexe C .42})$$

Ces deux coefficients sont les composantes de l'intensité réfléchie en phase et en quadrature de phase par rapport à la modulation en  $wt$  de la polarisation de l'onde incidente. Elles sont mesurées par une simple mesure de lock-in à la fréquence  $w$ .

Les angles ellipsométriques sont donnés par :

$$\begin{aligned}\tan y &= \sqrt{\frac{1+a}{1-a}} \tan A \\ \cos \Delta &= \frac{b}{\sqrt{1-a^2}}\end{aligned}\tag{Annexe C .44}$$

Par ailleurs on définit  $f$  par :

$$\tan f = \frac{b}{a}\tag{Annexe C .46}$$

## Annexe D : Implémentation numérique du calcul dynamique de la diffraction sur un réseau. Algorithme S-matrix.

Une discussion détaillée de l'algorithme S-matrix peut être trouvée dans (L. Li, 1996). Je vais simplement décrire le principe de cet algorithme. On se place dans le cas non magnétique.

Dans la méthode modale décrite au chapitre 4, les fonctions d'onde sont représentées par une superposition de modes propres  $e^{ilz}$ . Pour chaque couche du grating (voir Figure 4), soit  $\{I_m\}$  le spectre de ces valeurs propres. Celui-ci se divise en deux sous-parties  $\{I_m^{up}\}$  et  $\{I_m^{down}\}$  déterminées par la condition  $\text{Re } I_m + \text{Im } I_m \geq 0$ . Ces deux sous-ensembles contiennent le même nombre d'éléments. En pratique ces valeurs propres sont obtenues comme les deux valeurs de la racine carrée des valeurs propres d'une matrice " V ". Le premier groupe correspond aux modes *up* et le deuxième groupe aux modes *down*. On désigne par **u** et **d** les vecteurs contenant les amplitudes des modes *up* et *down* respectivement. Ce sont les amplitudes de ces modes qui nous cherchons à déterminer.

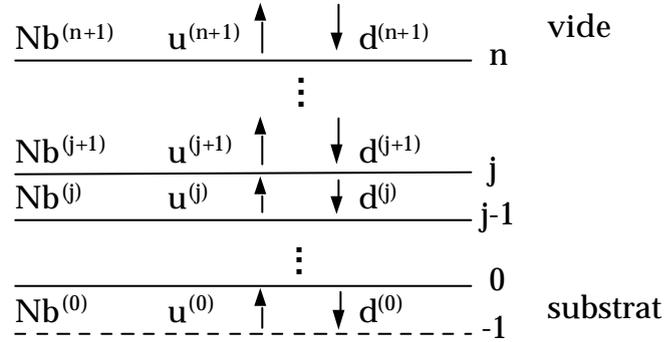


Figure 4: Notations utilisées pour un système multicouches. " u " désigne les modes se propageant vers le haut, " d " désigne les modes se propageant vers le bas.

Les conditions aux limites aux interfaces donnent des relations de la forme :

$$\mathbf{W}^{(j+1)} \begin{bmatrix} \mathbf{u}^{(j+1)}(z_j + 0) \\ \mathbf{d}^{(j+1)}(z_j + 0) \end{bmatrix} = \mathbf{W}^{(j)} \begin{bmatrix} \mathbf{u}^{(j)}(z_j - 0) \\ \mathbf{d}^{(j)}(z_j - 0) \end{bmatrix} \quad (\text{Annexe D .48})$$

(se reporter au Chapitre 2 pour les notations)

Les valeurs des modes **u** et **d** entre les interfaces *j* et *j+1* sont reliées par une matrice de propagation **L** :

$$\begin{bmatrix} \mathbf{u}^{(j)}(z_j - 0) \\ \mathbf{d}^{(j)}(z_j - 0) \end{bmatrix} = \mathbf{L}^{(j)} \begin{bmatrix} \mathbf{u}^{(j)}(z_{j-1} + 0) \\ \mathbf{d}^{(j)}(z_{j-1} + 0) \end{bmatrix} \quad (\text{Annexe D .50})$$

L'expression de la matrice de propagation est donnée par :

$$\mathbf{L}^{(j)} = \begin{bmatrix} \exp(i I_m^{j,up} h_j) & 0 \\ 0 & \exp(i I_m^{j,down} h_j) \end{bmatrix} \quad (\text{Annexe D .52})$$

où les exponentielles représentent des matrices diagonales.

A partir des deux expressions précédentes on peut écrire la relation de récursion :

$$\begin{bmatrix} \mathbf{u}^{(j+1)}(z_j + 0) \\ \mathbf{d}^{(j+1)}(z_j + 0) \end{bmatrix} = \mathbf{W}^{(j+1)-1} \cdot \mathbf{W}^{(j)} \cdot \mathbf{L}^{(j)} \begin{bmatrix} \mathbf{u}^{(j)}(z_{j-1} + 0) \\ \mathbf{d}^{(j)}(z_{j-1} + 0) \end{bmatrix} \quad (\text{Annexe D .54})$$

On pose :

$$\begin{aligned} \mathbf{t}^{(j)} &= \mathbf{W}^{(j+1)-1} \cdot \mathbf{W}^{(j)} \\ \tilde{\mathbf{t}}^{(j)} &= \mathbf{t}^{(j)} \cdot \mathbf{L}^{(j)} \end{aligned} \quad (\text{Annexe D .56})$$

Dans la suite on simplifiera les notations en posant  $\mathbf{u}^{(j)} \equiv \mathbf{u}^{(j)}(z_{j-1} + 0)$ .

La méthode la plus "naturelle" de résolution du problème consiste à utiliser directement la relation de récursion ci-dessus (algorithme T-matrix). Cependant cette méthode est instable pour de grandes épaisseurs de grating ou lorsque un grand nombre de modes intervient. La raison en est l'apparition d'exponentielles croissantes dans l'algorithme qui introduisent des indéterminations du type  $\infty - \infty = O(1)$ .

On peut contourner ce problème en utilisant l'algorithme S-matrix. Celui-ci relie les modes  $\mathbf{u}$  et  $\mathbf{d}$  entre le milieu  $(j+1)$  et le milieu  $0$  (voir Figure 4) par la relation matricielle suivante :

$$\begin{bmatrix} \mathbf{u}^{(j+1)} \\ \mathbf{d}^{(0)} \end{bmatrix} = \mathbf{S}^{(j)} \begin{bmatrix} \mathbf{u}^{(0)} \\ \mathbf{d}^{(j+1)} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \mathbf{T}_{uu}^{(j)} & \mathbf{R}_{ud}^{(j)} \\ \mathbf{R}_{du}^{(j)} & \mathbf{T}_{dd}^{(j)} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \mathbf{u}^{(0)} \\ \mathbf{d}^{(j+1)} \end{bmatrix} \quad (\text{Annexe D .58})$$

La signification physique des matrices  $\mathbf{T}$  et  $\mathbf{R}$  est claire.  $\mathbf{R}_{ud}$  est la matrice de réflexion qui donne les amplitudes réfléchies  $\mathbf{u}^{(j+1)}$  pour des amplitudes incidentes  $\mathbf{d}^{(j+1)}$  et  $\mathbf{T}_{dd}$  est la matrice de transmission qui donne les amplitudes transmises  $\mathbf{d}^{(0)}$  à travers le système en fonction des ondes incidentes  $\mathbf{d}^{(j+1)}$ .

On définit  $\mathbf{s}^{(j)}$  et  $\tilde{\mathbf{s}}^{(j)}$  par :

$$\begin{bmatrix} \mathbf{u}^{(j+1)}(z_j + 0) \\ \mathbf{d}^{(j)}(z_j - 0) \end{bmatrix} = \mathbf{s}^{(j)} \begin{bmatrix} \mathbf{u}^{(j)}(z_j - 0) \\ \mathbf{d}^{(j+1)}(z_j + 0) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} t_{uu}^{(j)} & r_{ud}^{(j)} \\ r_{du}^{(j)} & t_{dd}^{(j)} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \mathbf{u}^{(j)}(z_j - 0) \\ \mathbf{d}^{(j+1)}(z_j + 0) \end{bmatrix} \quad (\text{Annexe D .60})$$

$$\begin{bmatrix} \mathbf{u}^{(j+1)} \\ \mathbf{d}^{(j)} \end{bmatrix} = \tilde{\mathbf{s}}^{(j)} \begin{bmatrix} \mathbf{u}^{(j)} \\ \mathbf{d}^{(j+1)} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \tilde{t}_{uu}^{(j)} & \tilde{r}_{ud}^{(j)} \\ \tilde{r}_{du}^{(j)} & \tilde{t}_{dd}^{(j)} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \mathbf{u}^{(j)} \\ \mathbf{d}^{(j+1)} \end{bmatrix} \quad (\text{Annexe D .62})$$

Les deux matrices  $\mathbf{s}$  sont reliées par :

$$\tilde{\mathbf{s}}^{(j)} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & e^{-i I_m^{(j),down} h_j} \end{bmatrix} \mathbf{s}^{(j)} \begin{bmatrix} e^{i I_m^{(j),up} h_j} & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (\text{Annexe D .64})$$

La matrice  $\mathbf{s}$  est reliée à la matrice d'interface  $\mathbf{t}$  par :

$$\mathbf{S}^{(j)} = \begin{bmatrix} t_{11}^{(j)} - t_{12}^{(j)} \cdot t_{22}^{(j-1)} \cdot t_{21}^{(j)} & t_{12}^{(j)} \cdot t_{22}^{(j-1)} \\ -t_{22}^{(j-1)} \cdot t_{21}^{(j)} & t_{22}^{(j-1)} \end{bmatrix} \quad (\text{Annexe D .66})$$

On obtient les relations de récursion suivantes :

$$\begin{aligned} T_{uu}^{(j)} &= \tilde{t}_{uu}^{(j)} \left[ \mathbf{1} - \mathbf{R}_{ud}^{(j-1)} \tilde{r}_{du}^{(j)} \right]^{-1} T_{uu}^{(j-1)} \\ R_{ud}^{(j)} &= \tilde{r}_{ud}^{(j)} + \tilde{t}_{uu}^{(j)} R_{ud}^{(j-1)} \left[ \mathbf{1} - \tilde{r}_{du}^{(j)} R_{ud}^{(j-1)} \right]^{-1} \tilde{t}_{dd}^{(j)} \\ R_{du}^{(j)} &= R_{du}^{(j-1)} + T_{dd}^{(j-1)} \tilde{r}_{du}^{(j)} \tilde{t}_{uu}^{(j)} \left[ \mathbf{1} - R_{ud}^{(j-1)} \tilde{r}_{du}^{(j)} \right]^{-1} \tilde{t}_{dd}^{(j)} \\ T_{dd}^{(j)} &= T_{dd}^{(j-1)} \left[ \mathbf{1} - \tilde{r}_{du}^{(j)} R_{ud}^{(j-1)} \right]^{-1} \tilde{t}_{dd}^{(j)} \end{aligned} \quad (\text{Annexe D .68})$$

La récursion est initialisée par :

$$\mathbf{S}^{(-1)} = \begin{bmatrix} \mathbf{1} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{1} \end{bmatrix} \quad (\text{Annexe D .70})$$

Dans le cas particulier de la diffraction d'un faisceau de neutrons sur un réseau, le vecteur  $\mathbf{u}^{(0)} = \mathbf{0}$  (pas de faisceau  $up$  dans le substrat) et le vecteur  $\mathbf{d}^{(n+1)}$  est donné par le faisceau incident. Les solutions au problème sont données par :

$$\begin{aligned} \mathbf{u}^{(n+1)} &= R_{ud}^{(n)} \cdot \mathbf{d}^{(n+1)} \\ \mathbf{d}^{(0)} &= T_{dd}^{(n)} \cdot \mathbf{d}^{(n+1)} \end{aligned} \quad (\text{Annexe D .72})$$

La stabilité de l'algorithme S-matrix provient de la disparition des exponentielles croissantes (voir équation (Annexe D .74)).

Il est par ailleurs possible de modifier légèrement cet algorithme pour diminuer le nombre d'opérations nécessaires lors du calcul (Li, 1996).

## Annexe E : Analyse d'un faisceau de neutrons par utilisation d'un dispositif de Stern-Gerlach : analyse de spin et analyse en énergie.

Nous allons décrire un dispositif Stern-Gerlach permettant d'analyser en énergie un faisceau de neutrons froids. Nous décrirons le principe du dispositif, sa fabrication à partir d'aimants permanents et son application sur un spectromètre en temps de vol.

### Rappel sur le dispositif de Stern-Gerlach.

Considérons un moment magnétique  $\mu$  plongé dans un champ magnétique  $\mathbf{B}$  aligné suivant la direction (Oz). L'énergie potentielle de ce système est de la forme :

$$W = -\vec{\mu} \cdot \mathbf{B} \quad (\text{Annexe E .2})$$

La force à laquelle est soumis ce moment magnétique dérive de l'énergie potentielle  $W$  et est donnée par :

$$\mathbf{F} = -\mathbf{grad} (W) = \mathbf{grad} (\vec{\mu} \cdot \mathbf{B}) \quad (\text{Annexe E .4})$$

Si on suppose que le moment est aligné avec le champ magnétique  $\mathbf{B}$ , il n'y a pas de phénomène de précession et donc on peut considérer que  $\mu$  est constant et égal à  $\mu_z$ . La force à laquelle est soumis le neutron est alors de la forme :

$$\mathbf{F} = \mathbf{grad} (\mu_z \cdot B_z) = \mu_z \mathbf{grad} (B_z) \quad (\text{Annexe E .6})$$

Par ailleurs si on suppose que  $\partial B_z / \partial x = 0$  et  $\partial B_z / \partial y = 0$ , le neutron est soumis à une force parallèle à (Oz) et proportionnelle au gradient du champ magnétique suivant (Oz). Le signe de cette force dépend de l'état de spin du neutron (up ou down).

### Trajectoire du neutron dans un gradient de champ.

Considérons un neutron de longueur d'onde  $\lambda$  se déplaçant dans une zone de gradient de champ  $B'$  constant sur une distance  $L$  (cf. Figure 1)

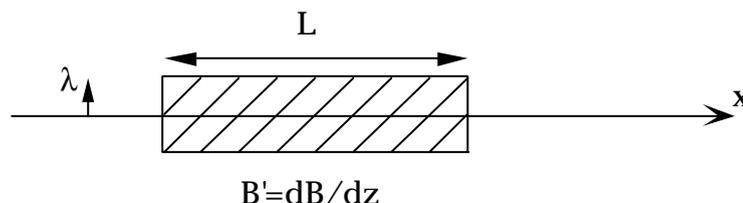


Figure 1 : neutron se propageant suivant (Ox) et traversant zone de gradient de champ  $B'$  de longueur  $L$ .

L'équation de la dynamique donne :

$$m a_z = F = \mu B' \quad (\text{Annexe E .8})$$

La trajectoire du neutron est donc décrite par les équations suivantes :

$$\begin{aligned} a_z &= \frac{\mu B'}{m} \\ v_z &= \frac{\mu B'}{m} t \\ z &= \frac{\mu B'}{m} t^2 \end{aligned} \quad (\text{Annexe E .10})$$

La vitesse du neutron suivant (Ox) est donnée par :

$$v_x = \frac{\hbar k}{m} = \frac{h}{mL} \quad (\text{Annexe E .12})$$

Le temps passé dans le dispositif est donc égal à

$$t = \frac{mL}{h}$$

A la sortie du dispositif, la vitesse et la position du neutron suivant l'axe (Oz) sont donnés par :

$$v_z = \frac{\mu B' L}{h} \quad (\text{Annexe E .14})$$

$$z = \frac{m \mu}{2h^2} B' L^2 \quad (\text{Annexe E .16})$$

Le décalage spatial entre neutrons de différentes longueur d'onde peut être amplifié si on considère un faisceau ayant parcouru une certaine distance après la sortie du gradient de champ. Le paramètre essentiel est alors la déflexion angulaire donnée par  $v_z/v_x$  :

$$a = \frac{v_z}{v_x} = \frac{m \mu}{h^2} B' L \quad (\text{Annexe E .18})$$

Les expressions (Annexe E .16) et (Annexe E .18) appellent les commentaires suivants. La déflexion spatiale et la déflexion angulaire sont proportionnelles à  $L^2$ , ce qui donne une dispersion en  $q_z$  variant en  $1/q_z^2$ . On remarquera que la déflexion spatiale varie suivant le carré de la longueur du dispositif : cela impose de fabriquer un dispositif aussi court que possible afin d'éviter que lors de leur traversée les neutrons ne heurtent les " bords " du dispositif générant le gradient de champ.

Les figures 2 à 5 illustrent numériquement les déflexions angulaires et spatiales que subit un faisceau polychromatique traversant une zone de gradient de champ de 400 mm de long où le gradient de champ magnétique est de 0.3 T/mm.

Illustration numérique dans le cas d'un dispositif de 400 mm de long créant un gradient de 0.3 T/mm.

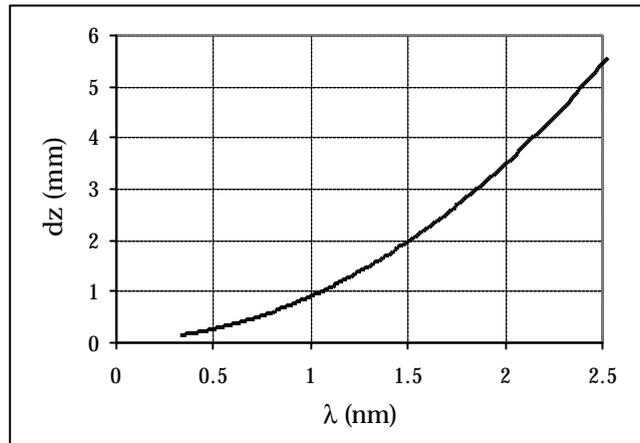


Figure 2 : position du faisceau à la sortie du gradient de champ par rapport à l'axe (Ox) en fonction de la longueur d'onde.

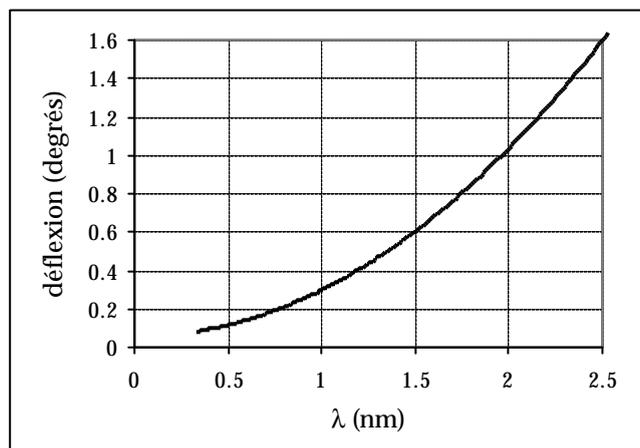


Figure 3 : déflexion angulaire du faisceau à la sortie du gradient de champ en fonction de la longueur d'onde.

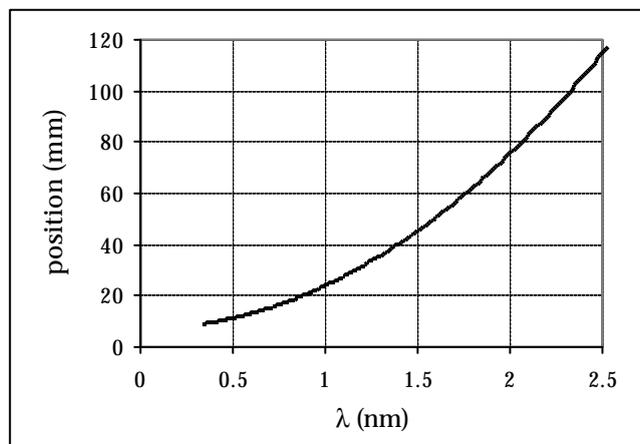


Figure 4 : déflexion spatiale du faisceau à 4 m de la sortie du gradient de champ (correspond à la géométrie du spectromètre en temps de vol Eros).

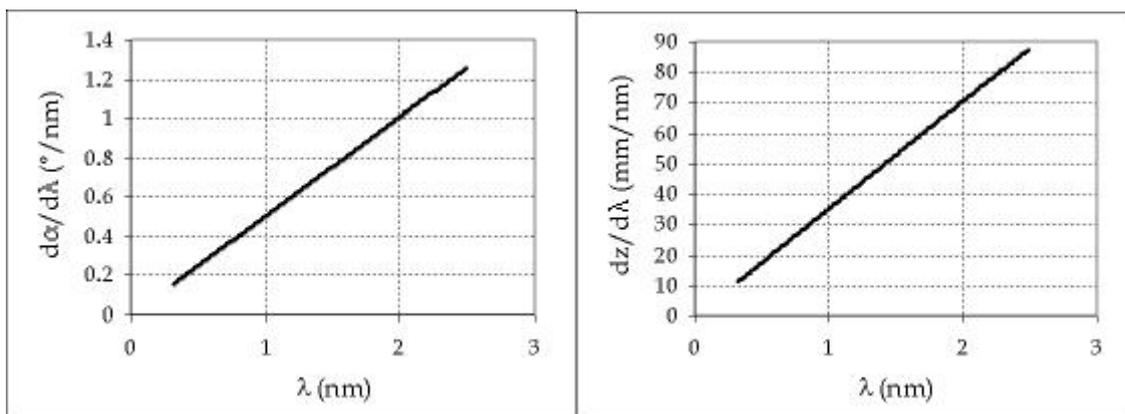


Figure 5 : sensibilité angulaire  $d\alpha/d\lambda$  et spatiale  $dz/d\lambda$  en fonction de la longueur d'onde.

### Création de gradients de champs

Je vais décrire deux géométries permettant de créer des gradients de champ de l'intensité considérée ci-dessus (0.3 T/mm). Nous rappelons que nous cherchons à créer une zone de gradient de champ qui soit adaptée au trajet d'un faisceau de réflectivité de neutrons. Dans les études de magnétisme, la surface des échantillons dépasse rarement plus de 1 cm<sup>2</sup>, c'est pourquoi nous considérons un faisceau de neutrons de la forme d'un pinceau fin et large (0.5 mm x 10 mm) (voir Figure 6). L'objectif est de créer un gradient de champ aussi important que possible perpendiculairement à la largeur du faisceau.

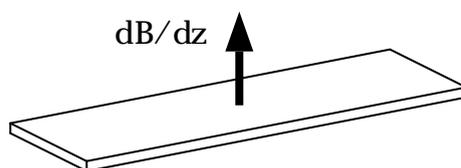


Figure 6 : faisceau de neutrons (pinceau fin) et direction du gradient que l'on cherche à générer.

### Géométrie Stern-Gerlach classique avec entrefers.

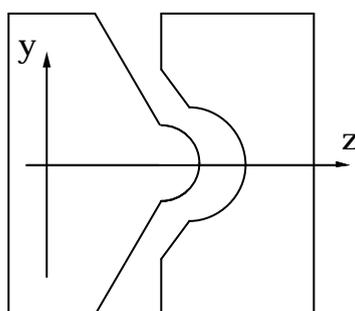


Figure 7 : géométrie d'entrefers permettant d'obtenir des gradients importants dans la zone grisée.

La Figure 7 schématise une géométrie classique permettant d'obtenir des gradients de champs importants (Ramsey, 1956). On obtient un gradient de champ suivant  $z$  dans la zone grisée. Dans le plan ( $y=0$ ) les gradients atteignent  $0.2 \text{ T/mm}$  si l'on utilise des pièces polaires à très forte aimantation à saturation ( $2.2 \text{ T}$ ). Le désavantage est que le gradient décroît assez sensiblement si on s'éloigne du plan ( $y=0$ ), typiquement  $0.1 \text{ T/mm}$  à  $3 \text{ mm}$  (pour une séparation de  $8 \text{ mm}$  suivant ( $Oz$ )). Cette géométrie n'est pas très adaptée à un faisceau de réflectivité de neutrons qui se propagerait suivant ( $Ox$ ).

### Quadripôle basé sur aimants permanents.

Ces dernières années ont vu l'apparition d'aimants permanents NdFeB qui sont des matériaux magnétiques présentant de nombreuses qualités : rémanences élevées (de  $1.2$  à  $1.6 \text{ T}$ ), coercivités importantes ( $>1.2 \text{ T}$ ), prix raisonnables.

Ces aimants permanents permettent la réalisation de sources de champ très compactes par l'utilisation d'une géométrie dite "cylindre de Halbach" (voir Figure 8). Les champs magnétiques générés par ces géométries sont assez intenses (jusqu'à  $1.4 \text{ T}$ ) et très homogènes. Ces dispositifs sont maintenant disponibles commercialement<sup>1</sup>. La géométrie de la Figure 8 peut bien sûr être optimisée (augmentation du nombre de blocs (e.g. 16), ajout de pièces intercalaires mais tous ces cylindres sont construits sur le même canevas de départ.

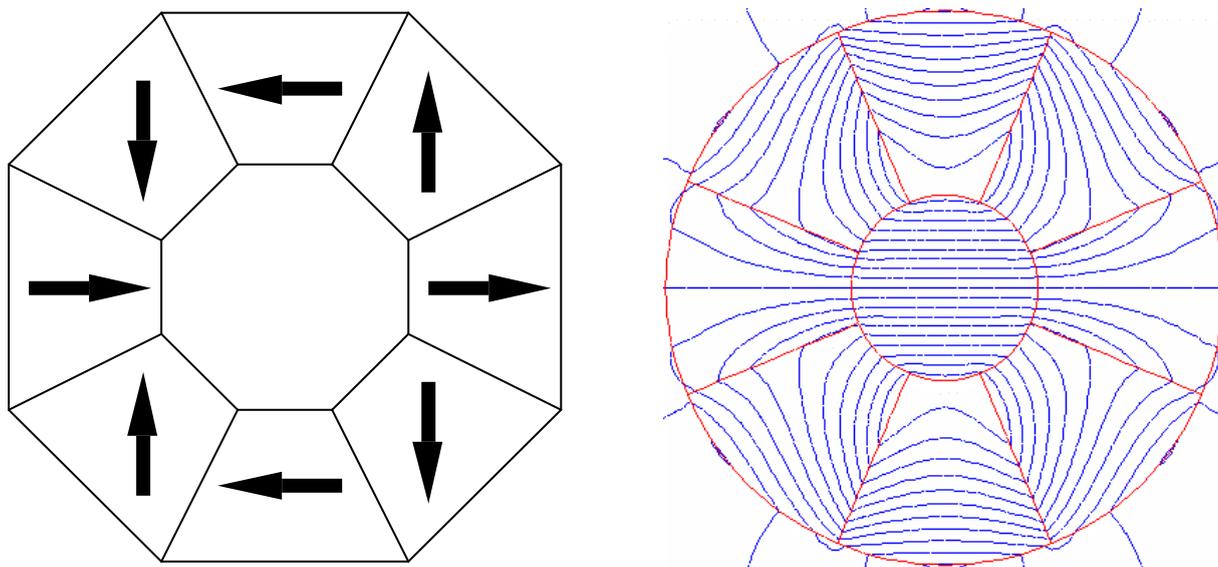


Figure 8 : exemple de cylindre de Halbach à 8 éléments. A gauche, montage des 8 aimants permanents, à droite calcul montrant le flux magnétique généré ( $1.2 \text{ T}$  au centre du cylindre). On notera que le flux est très homogène dans la lumière du cylindre.

Si l'on souhaite construire un quadripôle, on peut utiliser le même type de géométrie à la seule différence que les aimantations de deux blocs adjacents tournent deux fois plus vite que dans le cas d'un Halbach à champ constant. La Figure 9 décrit cette géométrie dans le cas de l'utilisation de 16 blocs.

<sup>1</sup> Fournisseurs Magnetic Solutions par exemple ([www.magnetic-solutions.com](http://www.magnetic-solutions.com))

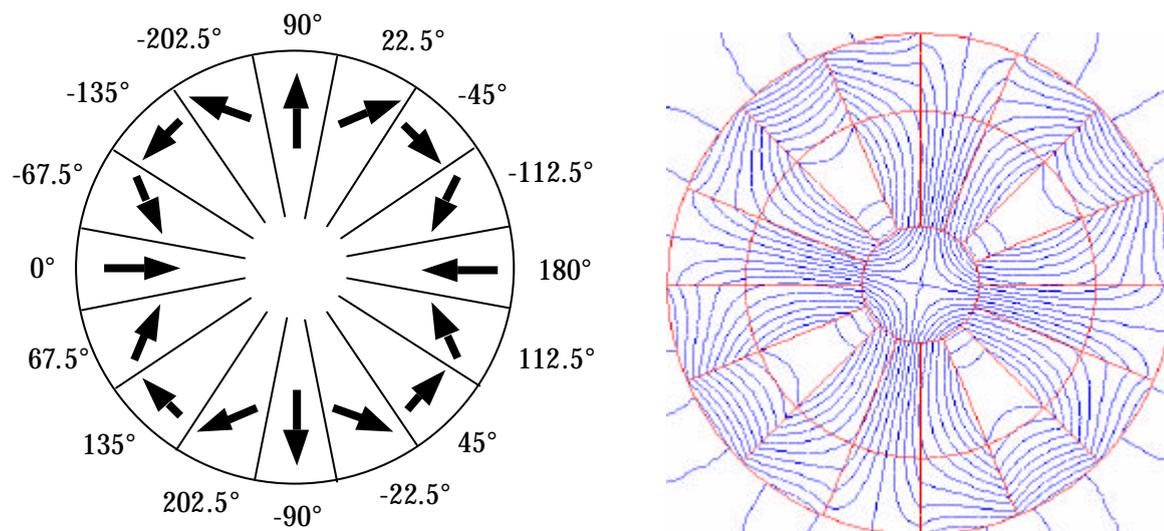


Figure 9 : quadripôle construit à partir de 16 blocs d'aimants permanents. A gauche, assemblage des aimants, à droite, calcul numérique des lignes de champ du flux magnétique généré.

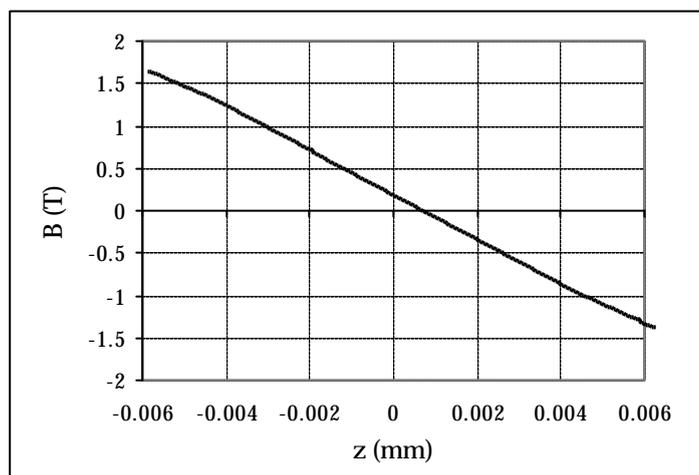


Figure 10 : champ magnétique suivant l'axe ( $Oz$ ) dans l'« entrefer » du cylindre de Halbach de la Figure 9 (cylindre de 56 mm de diamètre en aimants de 1.14 T de rémanence avec une lumière de 12 mm).

Les gradients de champs générés par ce type de cylindres sont constants dans les deux directions principales du quadripôle et la Figure 10 montre que l'on obtient des gradients très homogènes de l'ordre de 0.25 T/mm avec des aimants de rémanence 1.14T. Ce gradient peut aisément être augmenté jusqu'à 0.3 T/mm en utilisant des aimants de meilleure qualité présentant une rémanence de 1.4 T.

On en conclut que ce type de montage serait tout à fait adapté à la fabrication d'un dispositif Stern-Gerlach d'analyse en spin et en énergie pour nos faisceaux de neutrons.

## Analyse de spin

La première application la plus évidente d'un tel quadripôle est celle d'analyseur de spin (conformément à l'idée originelle de Stern et Gerlach). Ce dispositif constitue un analyseur de spin a priori parfait et sans aucune absorption ! De plus il a l'avantage d'être efficace quelle que soit la longueur d'onde du neutron. En soit, cela est très intéressant car actuellement les spectromètres en temps de vol (faisceau polychromatique) ne bénéficient pas encore de systèmes de polarisation et d'analyse aussi efficace qu'en faisceau monochromatique.

Cet avantage justifie à lui seul la construction d'un tel dispositif pour un spectromètre souhaitant proposer des mesures magnétiques avec analyse de polarisation.

### Analyse en énergie sur un spectromètre à temps de vol.

L'autre utilisation d'un tel dispositif en temps qu'analyseur en énergie (Figure 11). En effet nous avons vu que la déflexion angulaire dépend de la longueur d'onde du neutron. Ce dispositif couplé à l'utilisation d'un faisceau blanc incident sur l'échantillon permet a priori d'augmenter le flux incident sur l'échantillon d'un facteur 50 à 100 ! Les contraintes de résolution imposent un pronostic plus prudent d'un facteur 25 à 50 en temps de mesure. Ces gains sont valables pour des mesures magnétiques aussi bien que non magnétiques.

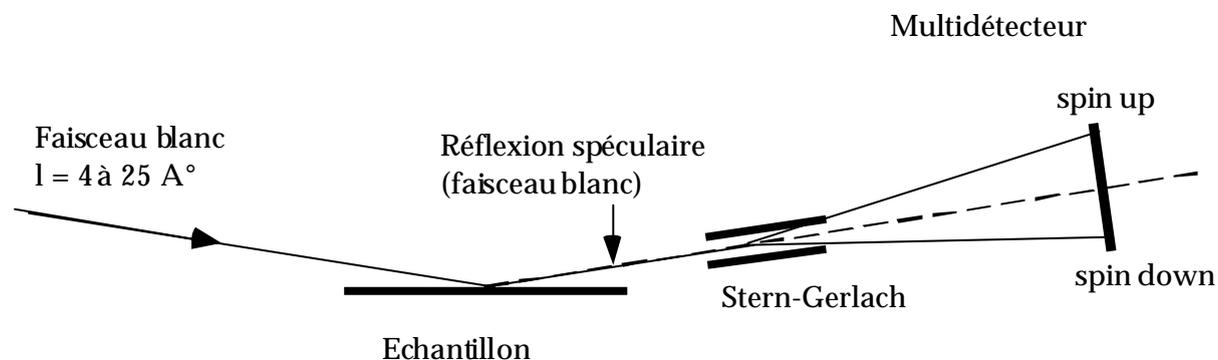


Figure 11 : Principe des mesures de réflectivité utilisant un dispositif de Stern-Gerlach pour réaliser une analyse en énergie d'un faisceau blanc

### Problèmes expérimentaux potentiels.

Expérimentalement les problèmes qui se posent sont cependant nombreux. Les gradients de champ considérés seraient ce qui se fait de mieux dans le domaine des aimants permanents mais un tel montage fabriqué à l'aide d'aimants permanents aurait l'avantage d'être extrêmement compact et totalement statique.

La divergence angulaire du faisceau réfléchi doit être minimale. En effet la sensibilité du dispositif pour les courtes longueurs d'onde (de 0.4 nm à 0.8 nm) est assez faible ( $0.05^\circ/\text{\AA}$ ). Il est donc nécessaire de disposer d'échantillons dont la rocking curve est

très faible (typiquement inférieure à  $0.02^\circ$ ). C'est le cas des surfaces de liquides ou de petits échantillons. Dans le cas contraire il faudrait envisager un travail de déconvolution assez important du signal pour pouvoir remonter à une courbe physique.

### Test préliminaire.

Nous avons réalisé un dispositif préliminaire utilisant simplement des aimants rectangulaires. Le dispositif est décrit sur la Figure 12a. La zone de gradient utile est indiquée par les hachures. On obtient des gradients non négligeables (de l'ordre de 80 mT/mm) mais cependant ces gradients ne sont pas homogènes. Ceci est évidemment dû à la simplicité du dispositif.

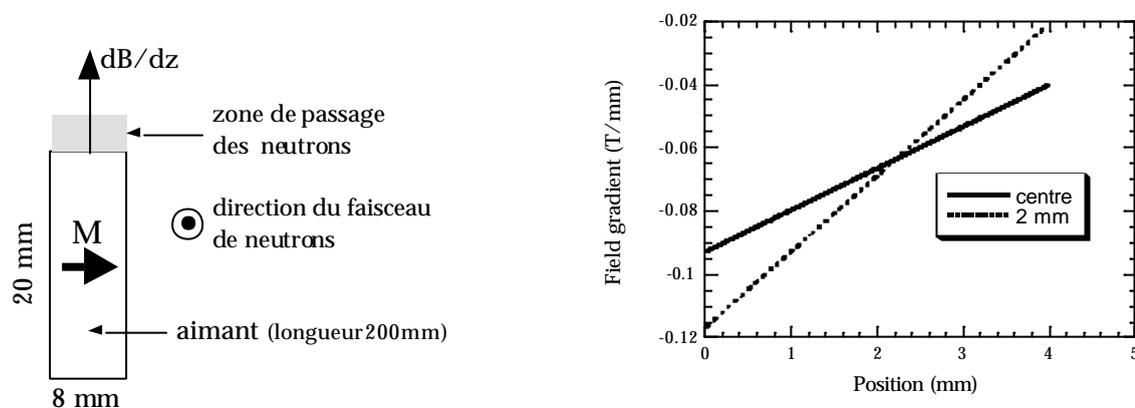


Figure 12 : gradients de champ obtenus grâce à un aimant de 20x8x200 mm. Les courbes montrent les gradients obtenus dans la zone hachurée (figure de gauche) au niveau du centre de l'aimant et à 2 mm de cette position.

La Figure 13 montre les mesures obtenues en faisceau blanc direct et après passage à travers le dispositif. Il est à noter sur la Figure 13a que le faisceau direct est dévié de près de deux millimètres par l'effet de la gravité sur le faisceau (les neutrons lents de grande longueur d'onde sont beaucoup plus sensibles à la gravité que les neutrons plus rapides). Sur la Figure 13b on observe bien la séparation des faisceaux et la déviation est très nette pour les grandes longueurs d'onde. La courbe est asymétrique car la gravité agit toujours. Il n'y a pas de perte de résolution notable malgré les grandes imperfections du dispositif.

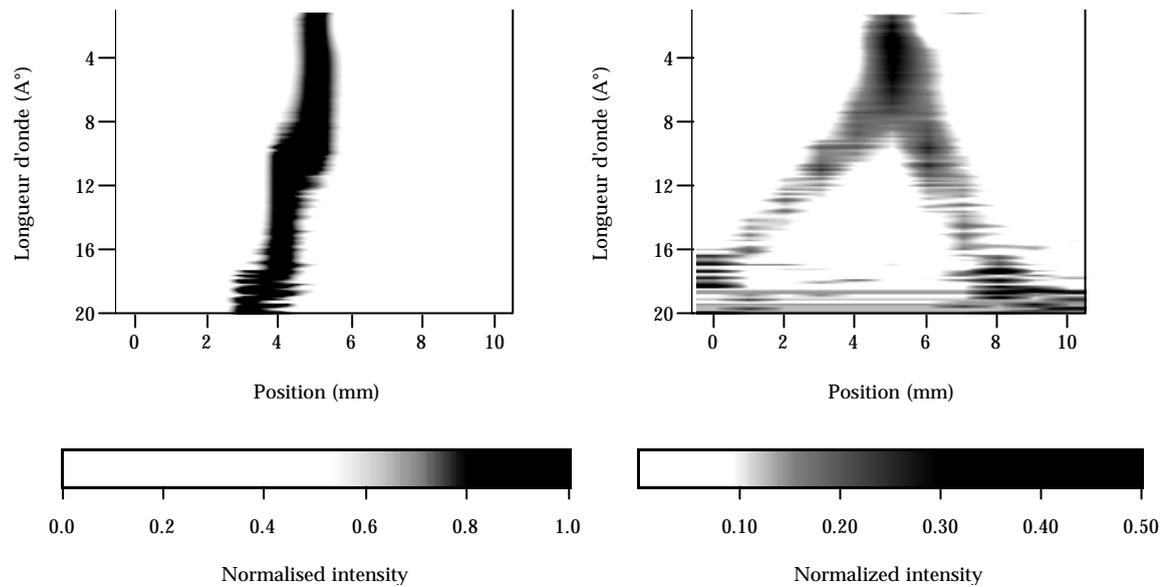


Figure 13 : (a) mesure de l'intensité du faisceau direct en fonction de la longueur d'onde (la courbure est due à la gravité) (b) après passage à travers le dispositif de Stern-Gerlach. On a séparé les deux faisceaux " up " et " down ". La séparation augmente avec la longueur d'onde.

## Conclusion

Nous avons montré que l'utilisation de nouveaux types d'aimants permanents permet de construire des dispositifs de Stern-Gerlach très compacts (300 mm de long) présentant des gradients de champs très importants (0.3 T/mm).

Cela permet d'envisager des dispositifs très prometteurs pour l'analyse en énergie de faisceaux blancs de neutrons et une application directe sur les spectromètres de réflectivité en temps de vol.

***Références bibliographiques.***



## Références bibliographiques.

- B.M. Alaudinov, I.A. Artyukov, V.E. Asadchikov, A.Yu. Karabekov and I.V. Kozhevnikov, *Crystallography Reports* **39**, pp. 605-616 (1994).  
"An Optical Model of a Surface in the X-Ray Range."
- R. Atkinson, N. Kubrakov, S. Utochkin and A. Zvezdin, *J. Appl. Phys.* **75**, pp. 6786-6789 (1994).  
"Magneto-Optical Properties and Magnetization Processes in Superlattices."
- R. Atkinson and N. Kubrakov, *Proc. R. Soc. Lond. A* **449**, pp. 205-222 (1995).  
"Magneto-Optical Normal Incidence Polar Kerr Effect of Inhomogeneous Multilayers."
- R.M.A. Azzam and N.M. Bashara, *Ellipsometry and Polarized Light* (North Holland, Amsterdam, 1977).
- G.E. Bacon, *Neutron Diffraction* (Clarendon Press, Oxford, 1975).
- M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friedrich, J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.* **61**, pp. 2472 (1988).  
"Giant Magnetoresistance of Fe/Cr Magnetic Superlattices."
- K. Balasubramanian, A.S. Marathay and H.A. MacLeod, *Thin Solid Films* **164**, pp. 391-403 (1988).  
"Modeling Magneto-Optical Thin Films Media for Optical Data Storage."
- E. Balcar, *Theory of Magnetic Neutron and Photon Scattering* (Clarendon Press, Oxford, 1989).
- B. Ballot, Ph.D. Thesis, Université Paris XI Orsay, 1995.  
"Etude Par Réflectivité de Neutrons de Multicouches Métalliques Nickel/Titane Pour Miroirs de Neutrons."
- N. Bardou, B. Bartenlian, F. Rousseaux, D. Decanini, F. Carcenac, C. Chappert, P. Veillet, P. Beauvillain, R. Mégy, Y. Suzuki and J. Ferré, *J. M. M. M.* **148**, pp. 293-294 (1995).  
"Light Diffraction Effects in the Magneto-Optical Properties of 2D Arrays of Magnetic Dots of AuCoAu Films with Perpendicular Magnetic Anisotropy."
- S. Barkan, E. Bieber, M.T. Burgy, S. Ketuadt, V.E. Krohn, P. Rice-Evans and G.R. Ringo, *Rev. Sci. Instr.* **39**, pp. 101-104 (1968).  
"Measurement of the Polarization of Thermal Neutron Beams of Mixed Velocities."
- G.T. Baumbach and M. Gailhanou, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **28**, pp. 2321-2327 (1995).  
"X-Ray Diffraction from Epitaxial Multilayered Surface Gratings."
- R.S. Beach, J.A. Borchers, A. Matheny, R.W. Erwin, M.B. Salomon, B. Everitt, K. Pettit, J.J. Rhyne, C.P. Flynn, *Phys. Rev. Lett.* **70**, pp. 3502 (1993).  
"Enhanced Curie Temperatures and Magnetoelastic Domains in Dy/Lu Superlattices and Films."
- R. Becker and W. Döring, *Ferromagnetismus* (Verlag. Julius Springer, Berlin, 1939).
- J.B. Bindell and N. Wainfan, *J. Appl. Cryst.* **3**, pp. 503-516 (1970).

*"The Non-Specular Scattering of X-Rays from Thin Films."*

S.J. Blundell and J.A.C. Bland, *Physical Review B* **46**, pp. 3391 (1992).

*"Polarized Neutron Reflection as a Probe of Magnetic Films and Multilayers."*

P. Böni, *Physica B* **234-236**, pp. 1038-1043 (1997).

*"Supermirror-based beam devices."*

M. Boutry, A. Bosseboeuf, G. Coffignal, *Proceedings of the SPIE*, vol. **2879** (1996) 126-134.

*"Characterization of residual stress in metallic films on Si substrates with micromechanical devices."*

M. Boutry, A. Bosseboeuf, T. Bouronina, J.P. Grandchamp, E. Gergam, J.P. Gilles, *J. Vac. Sci. Tech. B* **15**, pp. 1767-72 (1997).

*"Accuracy of thin film stress measurements with c-Si microbeams fabricated by dry etching."*

Wim G. Bouwman and Jan Skov Pedersen, *J. Appl. Cryst.* **29**, pp. 152-158 (1996) .

*"Resolution Function for Two-Axis Specular Neutron Reflectivity."*

R.M. Bozorth, *Ferromagnetism* (D. Van Nostrand, Princeton, 1951).

J.N. Chapman, *J. Phys. D* **17**, pp. 623 (1984).

N. Chateau and J.P. Hugonin, *J. Opt. Soc. Am. A* **4**, pp. 1321-1331 (1994).

*"Algorithm for the Rigorous Coupled-Wave Analysis of Grating Diffraction"*

C.H. Chou, *Physica B* **233**, pp. 130-133 (1997).

*"A Necessary Modification for Groove Tracking Method"*

C. Cohen-Tannoudji, B. Diu et F. Laloë, *Mécanique Quantique* (Hermann, Paris , 1973).

D.J. Craik and R.S. Tebble, *Ferromagnetism and Ferromagnetic Domains* ( North-Holland Publishing, Amsterdam, 1965).

C. Daboo, J.A.C. Bland, R.J. Hicken, A.J.R. Ives, M.J. Baird and M.J. Walker , *Phys. Rev. B* **47**, pp. 11852-11859 (1993).

*"Vectorial Magnetometry with the Magneto-Optic Kerr Effect Applied to Co/Cu/Co Trilayer Structures."*

C. Daboo, J.A.C. Bland, R.J. Hicken, A.J.R. Ives, M.J. Baird and M.J. Walker , *J. Appl. Phys.* **73**, pp. 6368-6370 (1993).

*"A Magnetic-Optic Technique for Studying Magnetization Reversal Processes and Anisotropies Applied to Co/Cu/Co Trilayer Structures."*

C. Daboo, R.J. Hicken, E. Gu, M. Gester, S.J. Gray, D.E.P. Eley, E. Ahmad, J.A.C. Bland, R. Ploessl and J.N. Chapman, *Physical Review B* **51** (22), pp. 15964-15973 (1995).

*"Anisotropy and Orientational Dependence of Magnetization Reversal Processes in Epitaxial Ferromagnetic Thin Films."*

D.K.G. de Boer, *Phys. Rev. B* **49**, pp. 5817-5820 (1994).

*"Influence of the Roughness Profile on the Specular Reflectivity of X-Ray and Neutrons."*

S. Dietrich and A. Haase, *Physics Reports* **260**, pp. 1-138 (1995).

*"Scattering of X-Rays and Neutrons at Interfaces."*

K. Dumesnil, C. Dufour, P. Mangin, G. Marchal, M. Hennion, *Euro. Phys. Lett.* **31**, pp. 43 (1995).

- K. Dumesnil, C. Dufour, Ph. Mangin, G. Marchal and M. Hennion, Phys. Rev. B **54**, pp. 6407-6420 (1996).  
*"Magnetic Structure of Dysprosium in Epitaxial Dy Films and in Dy/Er Superlattices."*
- G.P. Felcher, R.O. Hilleke, R.K. Crawford, J. Haumann, R. Kleb and G. Ostrowsky, Rev. Sci. Instrum. **58**, pp. 609-619 (1987).  
*"Polarized Neutron Reflectometer: A New Instrument to Measure Magnetic Depth Profiles."*
- G.F. Felcher, Physica B **192**, pp. 137-149 (1993).  
*"Magnetic Depth Profiling Studies by Polarized Neutron Reflection."*
- G.F. Felcher, Physica B **198**, pp. 150-155 (1994).  
*"Forward Scattering of Neutrons from Polymeric and Magnetic Multilayers."*
- G.P. Felcher, S. Adenwalla, V.O. De Haan and A.A. Van Well, Nature **377**, pp. 409-410 (1995).  
*"Zeeman Splitting of Surface-Scattered Neutrons."*
- G.P. Felcher, S. Adenwalla, V.O. de Haan and A.A. Van Well, Physica B **221**, pp. 494-499 (1996).  
*"Observation of the Zeeman Splitting for Neutrons Reflected by Magnetic Layers."*
- G.P. Felcher, S. Adenwalla and R.J. Goyette, J. Appl. Cryst. **30**, pp. 195-197 (1997).  
*"The Effect of Laboratory Magnetic Fields on Neutron Reflection"*
- [a] C. Fermon, Physica B **213-214**, pp. 910-913 (1995).  
*"Neutron Reflectometry with Polarization Analysis: A Theory and a New Spectrometer."*
- [b] C. Fermon, O.F.K. McGrath, D. Givord, Physica B **213-214**, pp. 236-238 (1995). *"Spin Configuration in Gd/Fe Epitaxial Bilayers."*
- C. Fermon, C. Miramond, F. Ott, G. Saux, J. of Neutron Research **4**, pp. 251-260 (1996).  
*"Polarized Neutron Analysis of the Reflection on Magnetic Thin Films."*
- C. Fermon, S. Gray, G. Legoff, V. Mathet, S. Mathieu, F. Ott, M. Viret and P. Warin, Physica B **241-243**, pp. 1055-1059 (1998).  
*"Vector Magnetometry with Polarized Neutron Reflectometry with Spin Analysis."*
- J.M. Florczak and E.D. Dahlberg, J. Appl. Phys. **67**, pp. 7520-7525 (1990).  
*"Detecting Two Magnetization Components by the Magneto-Optical Kerr Effect."*
- J.M. Florczak and E.D. Dahlberg, Phys. Rev. B **44**, pp. 9338-9347 (1991).  
*"Magnetization Reversal in (100) Fe Thin Films."*
- O. Fruchart, Ph.D. Thesis, Université Joseph Fourier Grenoble I, 1998.  
*"Elaboration, Étude et Modélisation D'un Système Magnétique Modèle: Réseaux de Plots Sub-Microniques Ultraminces de Fe(110) Épitaxié À Anisotropie Planaire."*
- M. Gailhanou, T. Baumbach, U. Marti, P.C. Silva, F.K. Reinhart and M. Ilegems, Appl. Phys. Lett. **62**, pp. 1623-1625 (1993).  
*"X-Ray Diffraction Reciprocal Space Mapping of a GaAs Surface Grating."*
- O. Geoffroy, D. Givord, Y. Otani, B. Pannetier, A.D. Santos, M. Schlenker and Y. Souche., Journal of

- Magnetism and Magnetic Materials **121**, pp. 516-519 (1993).  
"TMOKE Hysteresis Loops in Bragg Diffraction from 2D Patterns."
- V. Grolhier, Ph.D. Thesis, Université Paris XI Orsay, 1994.  
"Propriétés Statiques et Dynamiques Des Couches Ultra-Minces Co/Au: Étude Magnéto-Optique."
- O.J. Guentert, J. Appl. Phys. **30**, pp. 1361 (1965).
- V.O. de Haan, Physica B **198**, pp. 24-26 (1994).  
"Genetic Algorithms Used in Model Finding and Fitting for Neutron Reflection Experiments."
- V.O. de Haan, A.A. Van Well, S. Adenwalla and G.P. Felcher, Physical Review B **52** (15), pp. 10831-10833 (1995).  
"Retrieval of Phase Information in Neutron Reflectometry"
- I. Hamley and J.S. Pedersen, J. Appl. Cryst. **27**, pp. 29-35 (1994).  
"Analysis of Neutron and X-Ray Reflectivity Data"
- F. Havermeyer, S.F. Lyuksyotov, R.A. Rupp, Phys. Rev. Lett. **80**, pp. 3272-3275 (1998).  
"Nondestructive Resolution of Higher Harmonics of Light Induced Volume Gratings in PMMA with Cold Neutrons."
- E.J. Hearn, *Mechanics of materials* (Pergamon Press, 1985).
- B. Heinrich and J.F. Cochran, Advances in Physics **42**, pp. 523-639 (1993).  
"Ultrathin Metallic Magnetic Films: Magnetic Anisotropies And Exchange Interactions."
- Hercules Courses, *Neutron and Synchrotron Radiation for Condensed Matter Studies* (Springer-Verlag, Berlin, 1993).
- A. Herpin, *Théorie Du Magnétisme* (Institut National des Sciences et Techniques Nucleaires, 1968).
- T.J. Hicks, Advances in Physics **45**, pp. 243-298 (1996).  
"Experiments with Neutron Polarization Analysis."
- S. Hope, J. Lee, P. Rosenbusch, G. Lauhoff, J.A.C. Bland, A. Ercole, D. Bucknal, J. Penfold, H.J. Lauter, V. Lauter, R. Cubitt, Phys. Rev. B **55**, pp. 11422-11431 (1997).  
"Thickness dependence of the total magnetic moment per atom in the Cu/Ni/Cu/Si(001) system."
- A. Hubert and G. Traeger, J. Magn. Magn. Mater. **124**, pp. 185-202 (1993).  
"Magneto-Optical Sensitivity Functions of Thin-Film Systems."
- A.I. Ioffe, Physica B **174**, pp. 385-395 (1991).  
"The Diffraction Optics of Very Cold Neutrons."
- J. Kasper, H. Leeb and R. Lipperheide, Phys. Rev. Lett. **80**, pp. 2614-2617 (1998).  
"Phase Determination in Spin-Polarised Neutron Specular Reflection."
- C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics* (Wiley, New York, 1971).
- C. Kittel, Reviews of Modern Physics **21**, pp. 541-583 (1949).  
"Physical Theory of Ferromagnetic Domains."

- D. A. Korneev, V.I. Bodnarchuk and V.K. Ignatovich, JETP Lett. **63**, pp. 944-951 (1996).  
"Off-Specular Neutron Reflection From Magnetic Media with Nondiagonal Reflectivity Matrices."
- G. Korstorz, *Treatise on Materials Science and Technologie, Vol. 15, NEUTRON SCATTERING* (Academic Press, New York, 1979).
- H. Le Gall, J.P. Jamet, T.K. Vien and B. Desormière, Phys. Stat. Sol. **46**, pp. 467-606 (1971).  
"Theory of the Elastic and Inelastic Scattering of Light by Magnetic Crystals."
- J. Lekner, *Theory of Reflection* (Martinus Nijhoff, Dordrecht, 1987).
- Lifeng Li, J. Opt. Soc. Am. A **11**, pp. 2829-2835 (1994).  
"Bremmer Series, R-Matrix Propagation Algorithm, and Numerical Modeling of Diffraction Gratings."
- Lifeng Li, J. Opt. Soc. Am. A **11**, pp. 2816-2828 (1994).  
"Multilayer-Coated Diffraction Gratings: Differential Method of Chandezon et Al. Revisited."
- Lifeng Li, J. Opt. Soc. Am. A **13**, pp. 1024-1035 (1996).  
"Formulation and Comparison of Two Recursive Matrix Algorithms for Modeling Layered Diffraction Gratings."
- R. Lipperheide, H. Fiedeldey, H. Leeb, G. Reiss and S.A. Sofianos, Physica B **213-214**, pp. 914-916 (1995).  
"Inversion in Neutron Specular Reflection."
- M. Maaza and B. Pardo, J. Appl. Cryst. **28**, pp. 20-25 (1995).  
"A Multilayer-Coated Diffraction Grating Device for Polarized and Unpolarized Neutron Interferometry"
- Maissel and Glang, *Handbook of thin film technology* (McGraw Hill, 1983).
- C.F. Majkrzak, C.W. Cable, J. Kwo, M. Hong, D.B. McWhan, Y. Yafet, J.V. Waszczak, C. Vettier, Phys. Rev. Lett. **56**, pp. 2700 (1986).  
"Observation of a Magnetic Antiphase Domain Structure with Long Range Order in a Synthetic Gd-Y Superlattice."
- Majkrzak C.F. and Berk N.F., Physical Review B **52** (15), pp. 10827-10830 (1995).  
"Exact Determination of the Phase in Neutron Reflectometry."
- C.F. Majkrzak, Physica B **221**, pp. 342-356 (1996).  
"Neutron Scattering Studies of Magnetic Thin Films and Multilayers."
- M. Mansuripur, J. Appl. Phys. **67** (10), pp. 6466-6475 (1990).  
"Analysis of multilayer thin-film structures containing magneto-optic and anisotropic media at oblique incidence using 2x2 matrices"
- O. McGrath, Ph.D. Thesis, Université Joseph Fourier Grenoble 1, 1994.  
""
- A. Messiah, *Mécanique Quantique* (Dunod, Paris, 1995).
- F. Mezei, Z. Phys. **255**, pp. 146 (1972).
- V.I. Mikerov, F.A. Pudonin, V.A. Tukarev and M.P. Yakovlev, Physica B **174**, pp. 406-408 (1991).  
"A Fabry-Perot Neutron Interferometer."

- P. Mikulik, Ph.D. Thesis, Université Joseph Fourier Grenoble I, 1997.  
*"X-Ray Reflectivity from Planar and Structured Multilayers."*
- M. Li, J. Appl. Phys. **80**, pp. 2788-2790 (1996).  
*"Fitting of X-Ray or Neutron Specular Reflectivity of Multilayers by Fourier Analysis."*
- C. Miramond, Ph.D. Thesis, Université Paris XI Orsay, 1997.  
*"Propriétés Magnétiques de Réseaux de Plots de Permalloy, Réflectivité de Neutrons Polarisés."*
- L. Néel, J. de Phys. **15**, pp. 376 (1954).
- L. Nevot et P. Croce, Revue de Physique Appliquée **15**, pp. 761-779 (1980).  
*"Caractérisation Des Surfaces Par Réflexion Rasante de Rayons X. Application A L'étude Du Polissage de Quelques Verres Silicates."*
- A.N. Nigam, Phys. Rev. A **4**, pp. 1189 (1965).
- J.A. Ogilvy, *Theory of Wave Scattering from Random Rough Surfaces* (IOP Publishing Ltd, Bristol, 1991).
- R.C. O'Handley, Oh-Sung Song, C.A. Ballentine, J. Appl. Phys. **74** (10), pp. 6302--6307 (1993).  
*"Determining thin-film magnetoelastic constants"*
- F. Ott, J. de Physique IV **6**, pp. C7-77-81 (1996).  
*"La Réflectivité de Neutrons Polarisés Avec Analyse de Polarisation: Un Outil de Choix Pour L'étude Des Couches Minces Magnétiques."*
- F. Ott and C. Fermon, J. M. M. M. **165**, pp. 475-478 (1997).  
*"Magnetic Depth Profiles in Strained Nickel Thin Films Measured by Polarized Neutron Reflectometry."*
- F. Ott and C. Fermon, Physica B **234-236**, pp. 522-524 (1997).  
*"Spin Analysis and New Effects in Reflectivity Measurements."*
- B. Pardo, J.-M. André and A. Sammar, J. Optics (Paris) **22** (3), pp. 141-148 (1991).  
*"Dynamical Theory of Diffraction at in-Depth Multilayered Gratings."*
- J.S. Pedersen, Physica B **198**, pp. 16-23 (1994).  
*"Analysis of Neutron and X-Ray Reflectivity Data by Constrained Least-Squares Methods"*
- J. Penfold and R.K. Thomas, J. Phys.: Condens. Matter **2**, pp. 1369-1412 (1990).  
*"The Application of the Specular Reflection of Neutrons to the Study of Surfaces and Interfaces."*
- G. Pénissard, Ph.D. Thesis, Université Paris XI Orsay, 1993.  
*"Effets Magnéto-Optiques de Structures En Couches Ultra-Minces Au/Co."*
- G. Pénissard, P. Meyer, J. Ferré and D. Renard, J. Magn. Magn. Mater. **146**, pp. 55-65 (1995).  
*"Magneto-Optic Depth Sensitivity to Local Magnetization in a Simple Ultrathin Film Structure."*
- P.S. Pershan, Physical Review E **50**, pp. 2369-2372 (1994).  
*"X-Ray or Neutron Reflectivity: Limitations in the Determination of Interfacial Profiles"*
- N.K. Pleshanov, Z. Phys. B **94**, pp. 233-243 (1994).  
*"Neutrons at the Boundary of Magnetic Media."*

- N.K. Pleshanov, Z. Phys. B **100**, pp. 423-427 (1996).  
*"Spin Particles at Stratified Media: Operator Approach."*
- N.K. Pleshanov and V.M. Pusenkov, Z. Phys. B **100**, pp. 507-511 (1996).  
*"Application of Generalized Matrix Method to Neutrons in Magnetically Non-Collinear Stratified Media."*
- R. Pynn, Phys. Rev. B **45**, pp. 602-612 (1992).  
*"Neutron Scattering by Rough Surfaces at Grazing Incidence."*
- N.F. Ramsey, *Molecular Beams* (Oxford University Press, New York, 1956).
- Th. Rasing, J. Magnetism and Magnetic Materials **175**, pp. 35-50 (1997).  
*"Non Linear Magneto-Optics."*
- G. Reiss, Physics Letters A **196**, pp. 133-138 (1994).  
*"Thick Samples in Neutron Specular Reflection"*
- M. Rührig, R. Schäfer, A. Hubert, R. Mosler, J.A. Wolf, S. Demokritov, P. Grünberg, Phys. Stat. Sol. (a) **125**, pp. 635 (1991).  
*"Domain observations on Fe-Cr-Fe layered structures."*
- A. Sammar, M. Ouahabi, R. Barchewitz, J.M. André, R. Rivoira, C. Khan Malek, F.R. Ladan and P. Guérin., J. Optics (Paris) **24**, pp. 37-41 (1993).  
*"Theoretical and Experimental Study of Soft X-Ray Diffraction by a Lamellar Multilayer Amplitude Grating."*
- A. Sammar, J.-M. André and B. Pardo, Optics Communications **86** (2), pp. 245-254 (1991).  
*"Diffraction and Scattering by Lamellar Amplitude Multilayer Gratings in the X-U.V. Region."*
- I.I. Samoilenko, Physica B **221**, pp. 542-546 (1996).  
*"Global Minimization in Reconstruction of the Scattering-Length Density Profile by X-Ray Reflectivity Data"*
- A.M. Saxena, J. Appl. Cryst. **30**, pp. 138-146 (1997).  
*"The Origin and Minimization of the Critical-Angle Reflection from a Thin Film Multilayer Monochromator"*
- M.R. Scheinfein, J. Unguris, M.H. Kelley, D.T. Pierce and R.J. Celotta, Rev. Sci. Instr. **61**, pp. 2501 (1990).
- U. Schellhorn, R.A. Rupp, S. Breer and R.P. May, Physica B **234-236**, pp. 1068-1070 (1997).  
*"The First Neutron Interferometer Built of Holographic Gratings."*
- V.F. Sears, Physics Report **141**, pp. 281-317 (1986).  
*"Electromagnetic Neutron-Atom Interactions."*
- V. F. Sears, Neutron News **3** (3) (1992).  
*"Neutron Scattering Lengths and Cross Sections."*
- Qun Shen, C.C. Umbach, B. Weselak and J.M. Blakely, Phys. Rev. B **48**, pp. 17967-17971 (1993).  
*"X-Ray Diffraction from a Coherently Illuminated Si Grating Surface."*
- S. Shinzato, K. Kuwahara, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **35**, pp. 77--79 (1983).  
*"Resistance change of thin permalloy films caused by applied stress and its application to strain measurements"*
- S.K. Sinha, E.B. Sirota, S. GARoff and H.B. Stanley, Physical Review B **38** (4), pp. 2297-2311 (1988).  
*"X-Ray and Neutron Scattering from Rough Surfaces."*

S.K. Sinha, *Physica B* **174**, pp. 499-505 (1991).

*"Complementary of Neutrons and X-Rays as Probes of Surfaces and Interfaces."*

K. Sköld and D. Price, *Methods of Experimental Physics, Vol. 23, NEUTRON SCATTERING* (Academic Press, New York, 1986).

A.V. Sokolov, *Optical Properties of Metals* (Blackie and son, London, 1967).

O. Song, C.A. Ballentine, R.C. O'Handley, *Appl. Phys. Lett.* **64** (19), pp. 2593-2595 (1994).

*"Giant Surface Magnetostriction in Polycrystalline Ni and NiFe Films"*

M. Straub, R. Vollmer and J. Kirschner, *Phys. Rev. Lett.* **77**, pp. 743-746 (1996).

*"Surface Magnetism of Ultrathin Fe Films Investigated by Nonlinear Magneto-Optical Kerr Effect."*

J. Tappert et Al., oral communication (1995).

M. Tolan, Ph.D. Thesis, Christian Albrechts Universität, 1993.

*"Röntgenstreuung an Strukturieten Oberflächen - Experiment & Theorie -"*

M. Tolan, W. Press, F. Brinkop and J.P. Kotthaus, *Physical Review B* **51** (4), pp. 2239-2251 (1995).

*"X-Ray Diffraction from Laterally Structured Surfaces: Total External Reflection."*

G. Traeger, L. Wenzel and A. Hubert, *Physica A* **131**, pp. 201-227 (1992).

*"Computer Experiment on the Information Depth and the Figure of Merit in Magneto-optics."*

E. Train, C. Fermon, C. Chappert, A. Megy, P. Veillet and P. Beauvillain, *J.M.M.M.* **156**, pp. 86-88 (1996).

R. Wiesendanger, H.J. Güntherodt, G. Güntherodt, R.J. Gambino and R. Ruf, *Physical Review Letter* **65** (2), pp. 247-250 (1990).

*"Observation of Vacuum Tunneling of Spin-Polarized Electrons with the Scanning Tunneling Microscope."*

S. Wuechner, J. Voiron, J.C. Toussaint, J.J. Prejean, *J.M.M.M.* **148**, pp. 264 (1995).

Y. Yoneda, *Physical Review* **131**, pp. 2010-2013 (1963).

*"Anomalous Surface Reflection of X-Rays."*

H. Zabel, *Physica B* **198**, pp. 156-162 (1994).

*"Spin Polarized Neutron Reflectivity of Magnetic Films and Superlattices"*

X.L. Zhou, S.H. Chen, *Physics Reports* **257**, pp. 223-348 (1995).

*"Theoretical Foundation of X-Ray and Neutron Reflectometry."*

A.K. Zvezdin and V.A. Kotov, *Modern Magneto-optics and Magneto-optical Materials* (IOP Publishing Ltd, Bristol, 1997).