

THESE

présentée par

Laurent SEVE

pour obtenir le titre de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE JOSEPH FOURIER-GRENOBLE I

(Arrêtés ministériels du 5 juillet 1984 et du 30 mars 1992)

SPECIALITE - PHYSIQUE

**DIFFRACTION MAGNETIQUE RESONANTE DES
RAYONS X.
APPLICATIONS AUX MULTICOUCHES ET FILMS
MINCES.**

DATE DE SOUTENANCE : 29 Octobre 1997

Devant la Commission d'Examen:

Président	M. Vallade
Rapporteur	C. Fermon
Rapporteur	G. Krill
Examineur	M. Schlenker
Examineur	D. Raoux
Examineur	J.M. Tonnerre

THESE PREPAREE AU LABORATOIRE DE CRISTALLOGRAPHIE
CENTRE NATIONAL DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE
BP166X - F-38042 GRENOBLE CEDEX 09

A Maman,

Je remercie Monsieur Marcel Vallade qui m'a fait l'honneur de présider le jury de cette thèse, ainsi que Messieurs Gérard Krill et Claude Fermon pour avoir accepté d'être les rapporteurs de ce travail. Je remercie également Monsieur Michel Schlenker pour avoir bien voulu faire partie de ce jury.

Je tiens ici à exprimer toute ma reconnaissance à Denis Raoux qui a initié et dirigé ce travail. Tout au long de ces trois années, il m'a guidé tout en me témoignant un soutien constant. Malgré la charge importante de la direction du Laboratoire de Cristallographie, au sein duquel a été effectué ce travail, il a toujours su trouver le temps pour me faire profiter de ses grandes qualités scientifiques.

Je remercie Jean-Marc Tonnerre tant pour son encadrement scientifique que pour sa compagnie lors des longues heures d'expériences, souvent nocturnes. Sa disponibilité m'a permis de mener au mieux mes travaux de recherche dans un sujet pionnier.

Les expériences réalisées dans cette thèse, l'ont été dans différents centres de rayonnement synchrotron. Que tous ceux qui m'ont apporté leur concours dans la réussite de ces expériences trouvent ici l'expression de ma reconnaissance. Il me serait trop long de citer ici toutes les personnes impliquées sur les différentes lignes de lumières utilisées. Je suis sûr qu'ils se reconnaîtront dans ces quelques lignes. Qu'il me soit également donné l'occasion de remercier tous ceux qui ont préparé les échantillons, sans lesquels ce travail n'aurait pas été possible : B. Rodmacq, J.F. Bobo, W. Felsch, M. Arend, O. Fruchart, H. Fischer.

Un très grand merci à Jean Louis Hazemann et Daniel Aberdam pour leur aide et leurs conseils éclairés en ce qui concerne la partie EXAFS, mais également pour les discussions d'ordre plus général sur la science, que nous avons eues, souvent à des horaires un peu étranges.

Mes remerciements s'adressent également à François De Bergevin, avec qui les discussions scientifiques ont toujours été efficaces et fructueuses.

*Une grande partie de ce travail a nécessité le développement de programmes de simulations et d'affinement de données. A cet effet, je tiens à remercier Christian Mouget, Patrick Juen et Sabine Douillet qui m'ont toujours permis de débloquer ce *** de Macintosh.*

Je tiens à remercier tout particulièrement Pierre Wolfers sans qui la plus grande partie de ce travail n'aurait pas été possible. Les arcanes du système VMS m'ont ainsi été dévoilées par le magicien du cluster, me permettant de résoudre nombre de problèmes. Qu'il en soit ici profondément remercié.

Ces trois années m'auront permis de connaître nombre de personnes attachantes, notamment au laboratoire. Je voudrais donc adresser mes remerciements à l'ensemble des membres du laboratoire pour leur gentillesse et leur disponibilité.

Je tiens à exprimer mes remerciements plus particuliers à ceux que j'ai côtoyés tous les jours. Aude, Sergio, Yvonne, Mag, Daniel, Silke, Petra, Martine, Emilio, Sandra, Céline. Merci.

Comment enfin oublier les deux ibériques du labo, Fernando et Lionel. Je ne compte plus les nuits passées à revisiter l'histoire de la physique. Il en restera un profond désaccord, mais également je l'espère deux amis. Merci à vous deux pour votre amitié.

Je ne peux manquer d'adresser une pensée toute spéciale aux deux muses qui, tout au long de ces trois années, ont éclairé et inspiré mes journées par leur présence et leur bonne humeur. Stéphanie, Jitka, je suis vraiment heureux de vous avoir rencontrées.

A l'heure de finir ce mémoire, je tiens également à adresser des remerciements plus personnels à l'ensemble de ma famille qui m'a toujours épaulé dans ce long parcours.

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION

CHAPITRE II

Eléments de la théorie de la diffraction magnétique résonnante

1. / Introduction.....	7
2. / Interaction Rayonnement - Matière	8
3. / Diffraction Magnétique non-résonante.....	10
4. / Diffraction magnétique résonante.....	13
4.1. / Formalisme	13
4.2. / Dépendance en polarisation	17
4.3. / Amplitude de résonance	20
5. Relations et Outils utilisés en DMRX	24
5.1. / Relations de Kramers - Kronig.....	24
5.1.1./ Relations de Kramers-Kronig : la causalité	24
5.1.2./ Calcul numérique des transformées de Kramers-Kronig.....	25
5.2. / Approximation Cinématique de la diffraction.....	28
<i>Correction d'absorption</i>	30
<i>Facteur de Lorentz</i>	30
<i>Mise en évidence des effets dus au magnétisme</i>	31
5.3. / Outil expérimental.....	31
<i>Le rayonnement synchrotron</i>	32
<i>Emission de faisceau faiblement divergent</i>	32
<i>Flux</i>	33

<i>Continuité spectrale - monochromatisation.....</i>	<i>33</i>
<i>Etat de polarisation.....</i>	<i>33</i>
6. / Eléments et seuils accessibles en DMRX	36
Références bibliographiques du Chapitre II.....	43

CHAPITRE III

Etude de la Diffraction Magnétique Résonante dans la gamme des Rayons-X mous.

1. / Introduction	47
2. / Géométrie longitudinale : polarisation circulaire.....	49
2.1 / L'échantillon.....	49
2.2 / L'expérience en géométrie longitudinale	51
2.3 / Expression du Rapport d'Asymétrie dans cette géométrie	54
2.4 / Détermination des facteurs anomaux.....	56
2.4.1 / Détermination de f' , partie réelle du facteur de diffusion anomal	57
2.4.2 / Détermination de f'' , partie imaginaire du facteur de diffusion anomal ..	60
2.4.3 / Comparaison entre les valeurs de f' (f'') et la transformée par Kramers-Kronig de f'' (f')	64
2.4.4 / Comparaison avec d'autres déterminations de f	66
2.5 / Détermination du taux de polarisation circulaire.....	71
2.6 / Affinement Lorentzien.....	73
2.7 / Méthode Auto-cohérente	75
2.8 / Applications des règles de sommes	79
2.9 / Conclusions.....	81
3. / Géométrie transverse : polarisation linéaire	83
3.1 / Expression du Rapport d'Asymétrie - Paramètre d'importance	83
3.2. Multicouche Cu/Co : influence des plans morts.....	85
3.2.1 : Expérience et Echantillon.....	85
3.2.2 : Mesure de Rapport d'asymétrie et simulation.....	87
3.2.3 : Conclusion	91
3.3 / Multicouche Ag/NiFe : Séparation des contributions dans le cas d'un alliage ...	92

3.3.1 : Expérience et Echantillon.....	92
3.3.2 : Mesure du Rapport d'Asymétrie et simulation.....	93
3.3.3 : Etude X.A.F.S. au seuil K du Ni et du Fe dans Ag/NiFe.....	99
3.3.3.1. / Introduction :	99
3.3.3.2. / Rappel sur le X.A.S.....	100
3.3.3.3 / Formalisme de l'E.X.A.F.S.....	102
3.3.3.4 / Méthode d'analyse des données.....	104
3.3.3.5. / Mesure d'absorption X.....	107
3.3.3.6. / Résultats et discussion	108
3.3.3.7. / Modèle structural simple	115
3.3.3.8. / Conclusion sur les expériences d'EXAFS.....	117
3.3.4 : Conclusion sur la multicouche Ag/NiFe.....	118
4. / Couplages antiferromagnétiques	121
4.1 /Introduction.....	121
4.2./ Géométrie et montages expérimentaux.....	121
4.3 / Multicouche Cu/Co	124
4.4 / Multicouche Ag/Ni.....	129
4.5 / Multicouche Ag/NiFe : séparation des éléments - variation avec le champ.....	133
4.6 / Conclusion.....	140
5. / Conclusions générales	142
Références Bibliographiques du Chapitre III.....	144

CHAPITRE IV

Détermination du profil de polarisation magnétique des couches de Cérium par Diffraction Magnétique Résonante sur des multicouches Ce/Fe

1. / Introduction.....	149
2. / Principe de la mesure et résultats expérimentaux.....	154
2.1. / Expérience	154

TABLE DE MATIERES

2.2. / Mesure des rapports d'asymétrie.....	157
3. / Modèle structural	162
3.1. / Principe du calcul	162
3.2. / Détermination des facteurs anomaux.....	164
3.3. / Modélisation de la couche.....	166
4 / Détermination des paramètres structuraux	168
5. / Résultats des affinements du rapport d'asymétrie.....	173
5.1./ Profils modèles.....	173
5.2 / Résultats des affinements	176
6. / Discussion.....	181
7. / Conclusion	186
Références Bibliographiques du Chapitre IV.....	188

CHAPITRE V

Réflectivité Magnétique Résonante des Rayons X Effets Kerr Magnéto-Optiques des Rayons X

1. / Introduction	191
2. / Effets Kerr	192
3. / Equations de Maxwell	194
4. / Cas de l'effet Kerr transverse	196
4.1 / Propagation d'une onde dans un milieu magnétique.....	197
4.2./ Equations de continuité.....	199
4.3./ Notation matricielle	201
4.4./ Propagateurs.....	202
4.5./ Rugosité.....	204
5./ Constante diélectrique.....	206
4.1./ Relation entre constante diélectrique et facteur de diffusion atomique.....	206
4.2./ Evaluation pratique du tenseur diélectrique	209
6. / Echantillon "modèle" W/Fe/W.....	211
6.1 / Mesures de réflectivité magnétique.....	211
6.2 / Description structurale de la trcouche	215

6.3 / Calcul de réflectivité magnétique	218
7 / Echantillon FeMn	221
7.1./ Paramètres structuraux	222
7.2./ Simulations des courbes de réflectivité magnétique au seuil L du Fer	222
7.3./ Mesure au seuil du Mn	224
8. / Discussion	226
8.1./ Nature d'informations accessibles en géométrie transverse.....	226
8.2./ Autres géométries.....	230
9. / Conclusions.....	230
Références Bibliographiques du Chapitre V:	233

CONCLUSION

ANNEXES

Annexe 1 : Environnement Echantillon.....	A.1.1
Annexe 2 : Propriétés de Polarisation du rayonnement synchrotron.....	A.2.1
I./ Taux de polarisation pour le rayonnement émis par une machine sans émittance	A.2.1
II./ Taux de polarisation en tenant compte de l'émittance de la source électronique	A.2.3
III./ Variations des taux de polarisation pour la ligne SB3 (SACO) .	A.2.10
Annexe 3 : Equivalence des transformée de Kramers-Kronig pour la constante diélectrique et le facteur de diffusion atomique..	A.3.1
Annexe 4 : Calcul du rapport d'asymétrie en diffraction magnétique résonante pour une multicouche et pour les géométries transverse et longitudinale	A.4.1
I./ Notations	A.4.1
II./ Modèle structural pour une multicouche	A.4.2
III./ Géométrie transverse.....	A.4.5
IV./ Géométrie longitudinale.....	A.4.7
V./ Absorption.....	A.4.10

INTRODUCTION

INTRODUCTION

1. / Magnétisme et Rayons X

La découverte d'une sensibilité pour une onde électromagnétique aux propriétés magnétiques de la matière remonte à 1846, avec les travaux de M. Faraday, dans une géométrie de transmission. Par la suite, le même phénomène a été observé dans une géométrie de réflexion, et a donné naissance à ce qui est aujourd'hui appelé l'effet Kerr magnéto-optique. Les rayonnements électromagnétiques les plus utilisés se situent dans le domaine des rayons visibles (quelques eV pour l'énergie de l'onde), et correspondent donc à des excitations des électrons de la bande de valence dans la bande de conduction (transition intra ou inter-bande).

L'interaction entre les spins électroniques et une onde électromagnétique est connue depuis les travaux de Klein et Nishina [1]. Ce n'est cependant qu'en 1970 que Platzman et Tzoar [2] propose une description du processus d'interaction, dans le cas de la diffraction X. La démonstration expérimentale intervient 2 ans plus tard, par la mise en évidence d'un pic de surstructure magnétique, réalisée par F. De Bergevin et M. Brunel [3].

Dans le même temps, J.L. Erskine et E.A. Stern [4] ont prédit un fort effet Faraday pour des excitations dont l'état initial est un niveau de coeur : les seuils $M_{2,3}$ de Ni (transition $3p \rightarrow d$). C'est le point de départ du développement d'une technique aujourd'hui connue sous le nom de Dichroïsme Circulaire Magnétique des rayons X (XMCD, pour l'acronyme anglais). L'utilisation des excitations de couches électroniques profondes implique des électrons dont l'état initial, quasi atomique est parfaitement connu. La première mise en évidence expérimentale du XMCD a été réalisée en 1987 par G. Schütz *et al* [5] au seuil K du fer (transition $1s \rightarrow 4p$).

En 1985 Namikawa *et al* [6] présentent la première expérience de ce qui est maintenant définie comme la diffraction magnétique résonante des rayons X (XRMS, pour l'acronyme anglais). Dans un premier temps, l'étude du phénomène a permis d'en donner des modèles

simples pour décrire les résonances associées aux transitions observées. Dans un deuxième temps, une utilisation en a été entreprise afin d'étudier les propriétés magnétiques des solides. Les études ont été réalisées, pour la plupart dans la gamme en énergie correspondant aux rayons X "durs" (3-20 keV), aux seuils L de métaux de terre-rares, et M d'actinides.

La diffraction magnétique résonante est une contribution supplémentaire au facteur de diffusion atomique résonant (anomal) de l'atome, qui se produit lorsque l'énergie du photon incident correspond à celle d'une transition électronique d'un élément présentant un moment magnétique (principalement d'origine 3d ou 4f). La présence d'un couplage spin-orbite dans l'état final ainsi que d'une polarisation en spin sont nécessaires. L'origine de la diffraction magnétique résonante est donc la même que celle du XMCD.

Elle présente donc les avantages de la sélectivité atomique et d'orbite liée aux processus résonants d'excitation d'électrons de coeur, mais également celui de la sélectivité de site liée au phénomène de diffraction.

2. / Objectifs de nos études - Organisation du mémoire

Lors de nos études, nous avons travaillé au développement des techniques de diffraction et de réflectivité magnétique résonantes, principalement dans la gamme des rayons X-mous (200 eV - 2 keV), qui avait été peu abordée. Son intérêt est lié aux transitions dipolaires 2p→3d permettant de sonder la bande portant le moment magnétique des métaux de transition comme Fe, Co, Ni ou 3d→4f pour les terres rares. Les grandes longueurs d'onde des photons impliqués (de l'ordre de la dizaine d'angström) limitent évidemment la gamme accessible pour le vecteur de diffusion. Nous avons voulu développer cette technique, tant au niveau expérimental (développement d'environnement échantillon) qu'à celui de la mise en place des procédures d'analyse des données. Au moment où nous avons débuté ce travail, très peu de travaux avaient été effectués pour cette gamme en énergie. Nous avons donc aussi voulu montrer quels sont les types de problèmes auxquels il peut être possible d'apporter une réponse grâce à la XRMS.

Formalisme de la XMRS.

Dans la première partie, nous présentons les bases théoriques de l'interaction onde électromagnétique - matière, dans le cas où celle-ci présente des propriétés magnétiques. Ce chapitre décrit l'interaction qui est à la base de la diffraction magnétique résonante et dont l'origine est liée au processus de transition multipolaire électrique. Il donne une description de la dépendance de cette interaction avec des paramètres tels que l'énergie ou l'état de polarisation du photon incident.

Détermination des moments magnétiques.

Le deuxième chapitre rassemble les résultats obtenus en diffraction magnétique des rayons X dans la gamme des rayons X mous (200- 2000 eV), aux seuils L_{II} et L_{III} (transition $2p \rightarrow 3d$) des métaux de transitions tels que Fe, Co, Ni constituant une des sous couches d'une multicouche, l'autre étant constituée d'un métal noble non magnétique. Nous y décrivons l'application de la XRMS au cas de multicouches couplées ferro- ou antiferro- magnétiquement, ainsi que les grandeurs physiques qui peuvent être mesurées (moments magnétiques de chacun des constituants et séparation des composantes de spin et d'orbite, épaisseurs d'élément magnétiquement inerte aux interfaces, constantes de couplage antiferromagnétique...). Nous avons utilisé plusieurs multicouches à base de métaux 3d de transition : Ag/Ni, Ag/NiFe, Cu/Co afin de démontrer ces différentes applications de la XRMS.

Profil de polarisation en spin.

Le haut flux de photons X émis par les machines produisant un rayonnement synchrotron comme l'ESRF permet de mesurer des signaux de faibles amplitudes. La sélectivité chimique et d'orbitale du processus résonant qu'est la XRMS, permet donc d'étudier le magnétisme induit sur un état électronique (ou une bande) au niveau de Fermi, pour les couches d'espaceur non magnétique dans des structures artificielles comme les vannes de spin, ou sur les multicouches magnétiques.

Dans une troisième partie, nous utilisons donc cette spécificité de la XRMS pour déterminer à l'intérieur d'une sous-couche de Ce ou de La dans des multicouches Ce/Fe et La/Fe, le profil de polarisation en spin des états 5d (évolution de la population des états de spin 5d majoritaires et minoritaires). Cette étude a été effectuée au seuil L_{II} de Ce et de La (transition $2p \rightarrow 5d$). Les résultats expérimentaux, ainsi qu'une approche pour l'affinement d'un profil de polarisation des états 5d, sont présentés.

Réflectivité Magnétique Résonante.

La gamme d'énergie, imposée par la valeur des seuils d'absorption d'intérêt en X-mous, limite l'étude des propriétés magnétiques induites par la faible épaisseur des couches empilées le long de l'axe de croissance. Pour cette raison, pour l'étude de couches minces ne présentant pas de surstructure chimique ou magnétique accessible, le développement d'une méthode de type optique, la réflectivité des rayons X (incluant les contributions anormale et magnétique résonante) s'avère nécessaire. Les mesures effectuées aux seuils L_{II} et L_{III} de Fe pour deux

échantillons, en utilisant un faisceau polarisé linéairement sont exposées dans une dernière partie, ainsi que leur simulation selon le formalisme matriciel de l'optique, dans une approche qui tient compte de l'anisotropie de l'interaction onde-matière induite par la présence d'une aimantation. Nous avons en particulier essayé de simuler les dépendances en énergie et en angle d'incidence des spectres de réflectivité magnétique, ce qui est la première étape dans la perspective de l'utilisation pour l'étude du magnétisme des couches minces.

Ce travail de thèse repose principalement sur l'utilisation du rayonnement synchrotron, et de ses caractéristiques les plus remarquables (continuité spectrale, propriété de polarisation du faisceau...). L'essentiel des expériences s'est déroulé dans 3 centres fournissant un tel rayonnement :

- Laboratoire pour l'Utilisation du Rayonnement Electromagnétique (L.U.R.E), CNRS, Orsay

Lignes : SB3 (CEA-DAM), SU7, SU23, SA7, D21.

- * Adaptation et utilisation d'un diffractomètre pour la diffraction magnétique résonante en X mous.

- * Diffraction magnétique résonante aux seuils L de métaux de transition.

- National Synchrotron Light Source (B.N.L, New York), USA

Ligne U4B, Dragon.

- * Réflectivité magnétique résonante des rayons X mous

- European Synchrotron Radiation Facilities (ESRF), Grenoble

Ligne ID12, BL6.

- * Diffraction magnétique résonante aux seuils L_{II} de Ce et de La

Références bibliographiques du chapitre I:

- [1] O. Klein, Y. Nishina, Zeitschrift für Physik, **52** (1929) 853.
- [2] P.M. Platzman, N. Tzoar, Physical Review B, **2** (1970) 3556.
- [3] F. De Bergevin, M. Brunel, Physics Letters, **39A** (1972) 141.
- [4] J.L. Erskine, E.A. Stern, Physical Review B, **12** (1975) 5016.
- [5] G. Schütz, W. Wagner, W. Wilhelm, P. Kniele, R. Zeller, R. Frahm, G. Materlik, Physical Review Letters, **55** (1987) 2086.
- [6] K. Namikawa, M. Ando, T. Nakajima, H. Kawata, Journal of the Physical Society of Japan, **54** (1985) 4099.

CHAPITRE II

Eléments de la théorie de la diffraction magnétique résonnante

1. / Introduction	7
2. / Interaction Rayonnement - Matière.....	8
3. / Diffraction Magnétique non-résonante.....	10
4. / Diffraction magnétique résonante	13
4.1. / Formalisme	13
4.2. / Dépendance en polarisation	17
4.3. / Amplitude de résonance	20
5. Relations et Outils utilisés en DMRX.....	24
5.1. / Relations de Kramers - Kronig.....	24
5.1.1./ Relations de Kramers-Kronig : la causalité.....	24
5.1.2./ Calcul numérique des transformées de Kramers-Kronig	25
5.2. / Approximation Cinématique de la diffraction	28
<i>Correction d'absorption.....</i>	<i>30</i>
<i>Facteur de Lorentz.....</i>	<i>30</i>
<i>Mise en évidence des effets dus au magnétisme.....</i>	<i>31</i>
5.3. / Outil expérimental	31
<i>Le rayonnement synchrotron</i>	<i>32</i>
<i>Emission de faisceau faiblement divergent.</i>	<i>32</i>
<i>Flux.....</i>	<i>33</i>
<i>Continuité spectrale - monochromatisation.....</i>	<i>33</i>
<i>Etat de polarisation</i>	<i>33</i>
6. / Eléments et seuils accessibles en DMRX.....	36
Références bibliographiques du Chapitre II.....	43

CHAPITRE II

Eléments de la théorie de la diffraction magnétique résonante

1. / Introduction

Dans ce chapitre, nous décrivons les aspects théoriques de la diffusion des rayons X par un matériau magnétique. Ce développement se veut être une synthèse (non exhaustive) des phénomènes liés à la diffusion des rayons X par une collection d'atomes présentant des propriétés magnétiques, et de leurs conditions d'observation. Les développements détaillés des calculs de mécanique quantique donnant les sections efficaces de diffusion ne sont pas abordés. Nous nous attachons plutôt à faire ressortir les conditions d'observation (seuils, éléments et géométries) ainsi que les informations apportées par les diverses méthodes utilisant la diffusion résonante magnétique des rayons X, ou XRMS.

Dans une première partie, les équations de base de la théorie de la diffusion d'une onde électromagnétique par un matériau magnétique sont décrites. Un second paragraphe expose brièvement la diffraction magnétique non-résonante, celle-ci n'ayant pas été utilisée dans le cadre de ce travail. Dans une troisième partie sont décrites les origines de la diffusion magnétique résonnante, les divers formalismes proposés, ainsi que l'expression du facteur de diffusion atomique total, incorporant la dépendance résonante au magnétisme. Les trois derniers paragraphes présentent les divers outils tant mathématiques qu'expérimentaux utilisés pour les expériences et l'analyse de données en XRMS.

2. / Interaction Rayonnement - Matière

La description de l'interaction d'une onde électromagnétique (EM) avec la matière condensée a été donnée par plusieurs auteurs [1-3], dans le cadre de la théorie de perturbation au deuxième ordre d'un hamiltonien non relativiste. Le point de départ de ce développement consiste à considérer le hamiltonien d'électrons en interaction avec une onde électromagnétique. Les électrons sont considérés comme non relativistes. Le champ électromagnétique est quantifié et décrit par le potentiel vecteur (la partie temporelle étant omise) :

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{k}, \sigma} \left(\frac{2\pi\hbar c^2}{V\omega} \right)^{1/2} \left[\hat{\mathbf{e}}(\mathbf{k}\sigma) c(\mathbf{k}\sigma) e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} + \hat{\mathbf{e}}^*(\mathbf{k}\sigma) c^+(\mathbf{k}\sigma) e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}} \right] \quad [\text{II.1}]$$

où V est un volume de quantification, et ω la pulsation du champ. L'indice σ désigne les deux états de polarisation possibles pour l'onde de vecteur d'onde $\mathbf{k}$ et $\mathbf{e}(\mathbf{k}\sigma)$ est le vecteur de polarisation unitaire. Les ondes électromagnétiques étant des ondes transverses, on a la relation $\mathbf{k} \cdot \mathbf{e}(\mathbf{k}\sigma) = 0$. Les opérateurs c et c^+ sont respectivement les opérateurs de création et d'annihilation d'un photon du champ. $\mathbf{A}$ est linéaire par rapport aux opérateurs création et annihilation de photon. Les champs électrique ($\mathbf{E}$) et magnétique ($\mathbf{B}$) sont décrits par le potentiel scalaire (ϕ) et par le potentiel vecteur ($\mathbf{A}$) en utilisant les équations de Maxwell :

$$\begin{aligned} \mathbf{B}(\mathbf{r}_j) &= \nabla \times \mathbf{A}(\mathbf{r}_j) \\ \mathbf{E}(\mathbf{r}_j) &= -\nabla\phi - \frac{1}{c} \dot{\mathbf{A}} \end{aligned} \quad [\text{II.2}]$$

Le hamiltonien d'une collection d'électrons j dans un champ électromagnétique quantifié s'écrit [3] :

$$\begin{aligned}
\mathcal{H} = & \sum_j \frac{1}{2m} \left(\mathbf{P}_j - \frac{e}{c} \mathbf{A}(\mathbf{r}_j) \right)^2 \\
& + \sum_{i,j} V(\mathbf{r}_{i,j}) - \frac{e\hbar}{2mc} \sum_j \mathbf{s}_j \nabla \times \mathbf{A}(\mathbf{r}_j) \\
& - \frac{e\hbar}{2(mc)^2} \sum_j \mathbf{s}_j \mathbf{E}(\mathbf{r}_j) \times \left(\mathbf{P}_j - \frac{e}{c} \mathbf{A}(\mathbf{r}_j) \right) \\
& + \sum_k \hbar \omega_k \left(c^\dagger(\mathbf{k}\sigma) c(\mathbf{k}\sigma) + \frac{1}{2} \right)
\end{aligned} \tag{II.3}$$

Cette expression [II.3] contient les termes décrivant l'énergie cinétique et potentielle des j électrons (1° et 2° termes), les termes d'interactions entre les électrons et le champ (1°, 3° et 4° termes) ainsi que l'énergie associée au champ électromagnétique (dernier terme). Les interactions dépendant du spin figurant dans les 3° et 4° termes, décrivant entre autre l'interaction Zeeman entre le spin de l'électron et le champ magnétique de l'onde EM (3° terme), ainsi que l'interaction spin-orbite (4° terme). L'interaction non magnétique, purement électrique, avec le champ est toute entière contenue dans le premier terme qu'on peut développer en :

$$\sum_j \left(\frac{\mathbf{P}_j^2}{2m} - \frac{e}{mc} \mathbf{P}_j \mathbf{A} \right) + \frac{e^2}{2mc^2} \mathbf{A}^2 \tag{II.3'}$$

Dans cette interaction purement électrique, le terme $\mathbf{A} \cdot \mathbf{p}$ conduit à la création ou l'annihilation d'un photon : il décrit les processus à un photon tel que l'absorption ou l'émission X. Dans le processus de diffusion, élastique ou inélastique, le nombre de photons ne change pas. Les termes quadratiques en $\mathbf{A}$ sont donc responsables de tels processus avec création puis annihilation d'un photon (ou bien dans l'ordre inverse). Le processus de diffusion est donc décrit soit par le terme quadratique en $\mathbf{A}$ dans une théorie de perturbation au premier ordre, soit par le terme linéaire en $\mathbf{A}$ dans une théorie de perturbation au second ordre. Le terme en $\mathbf{A}^2$ donne lieu à la diffusion Thomson, alors que le terme du second ordre dans le développement de $\mathbf{A} \cdot \mathbf{p}$ décrit la diffusion résonante ou anormale.

3. / Diffraction Magnétique non-résonante

Blume [3] est le premier auteur à avoir donné une expression complète pour la section efficace des rayons X, en incluant les termes magnétiques. L'approche choisie permet d'inclure les effets des électrons liés. Le point de départ est le hamiltonien (eq. II.3) non relativiste pour les électrons (à l'ordre $(v/c)^2$) plongés dans un champ électromagnétique quantifié. Il est commode de réécrire ce hamiltonien sous la forme $H = H_0 + H_R + H'$: H_0 est le hamiltonien décrivant l'atome libre, H_R décrit le champ EM, et H' est le hamiltonien d'interaction perturbatif. Avec ces notations, les divers hamiltoniens se réécrivent sous la forme:

$$H_0 = \sum_j \frac{\mathbf{p}_j^2}{2m} + \sum_{i,j} V(r_{ij}) + \frac{e\hbar}{2(mc)^2} \sum_j \mathbf{s}_j (\nabla \phi_j \times \mathbf{p}_j) \quad [\text{II.4}]$$

$$H_R = \sum_{\mathbf{k}\sigma} \hbar\omega \left[c^+(\mathbf{k}\sigma) c(\mathbf{k}\sigma) + 1/2 \right] \quad [\text{II.5}]$$

$$H' = \underbrace{\frac{e^2}{2mc^2} \sum_j \mathbf{A}^2(\mathbf{r}_j)}_{H'_1} - \underbrace{\frac{e}{mc} \sum_j \mathbf{A}(\mathbf{r}_j) \cdot \mathbf{p}_j}_{H'_2} - \underbrace{\frac{e\hbar}{mc} \sum_j \mathbf{s}_j \cdot [\nabla \times \mathbf{A}(\mathbf{r}_j)]}_{H'_3} - \underbrace{\frac{e^2\hbar}{2(mc^2)^2} \sum_j \mathbf{s}_j \cdot [\dot{\mathbf{A}}(\mathbf{r}_j) \times \mathbf{A}(\mathbf{r}_j)]}_{H'_4} \quad [\text{II.6}]$$

La section efficace de diffusion est calculée en supposant que le solide est initialement dans un état $|A\rangle$ d'énergie E_A caractérisé par une fonction d'onde électronique $|a\rangle$ d'énergie E_a , fonction propre du hamiltonien H_0 , et par un photon incident $\hbar\omega$ de vecteur d'onde $\mathbf{k}$ et de polarisation $\mathbf{e}$ ($E_A = E_a + \hbar\omega$). L'étape suivante consiste à calculer la probabilité de transition vers un état final $|B\rangle$ en utilisant la règle d'or de Fermi au deuxième ordre :

$$w = \frac{2\pi}{\hbar} \langle \beta | H'_1 + H'_4 | \alpha \rangle + \sum_{\eta} \frac{\langle \beta | H'_2 + H'_3 | \eta \rangle \langle \eta | H'_2 + H'_3 | \alpha \rangle}{E_{\eta} - E_{\alpha}} \times \delta(E_{\alpha} - E_{\beta}) \quad [\text{II.7}]$$

Cette description permet d'inclure les processus inélastiques si l'état électronique final $|b\rangle$ est différent de l'état initial $|a\rangle$. Le cas de la diffusion élastique est obtenu pour $|a\rangle = |b\rangle$. Les composantes H'_1 et H'_4 quadratiques en $\mathbf{A}$ apparaissent au premier ordre de perturbation. Les hamiltoniens H'_2 et H'_3 , linéaires en $\mathbf{A}$, apparaissent au deuxième ordre, avec sommation sur

tous les états intermédiaires $|\eta\rangle$ permis par la transition virtuelle. Par la suite, nous ne considérons que la diffusion élastique, qui implique $E_\alpha = E_\beta$.

Le développement du calcul avec ces hypothèses donne, pour des énergies de photon incident $\hbar\omega$ loin de toute énergie de résonance, donc pour $\hbar\omega \neq E_\nu - E_\alpha$, la section efficace de diffusion :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \left(\frac{e^2}{mc^2} \right)^2 \left| \langle \beta | \sum_j e^{i\mathbf{K}\mathbf{r}_j} | \alpha \rangle (\mathbf{e}' \cdot \mathbf{e}) - i \frac{\hbar\omega}{mc^2} \langle \beta | \sum_j \left(i \frac{\mathbf{K} \times \mathbf{p}_j}{\hbar K^2} \mathbf{A}' + \mathbf{S}_j \cdot \mathbf{B}' \right) e^{i\mathbf{K}\mathbf{r}_j} | \alpha \rangle \right|^2 \times \delta(E_\alpha - E_\beta) \quad [\text{II.8}]$$

Où $\mathbf{K}$ décrit le transfert de moment entre le photon incident et diffusé : $\mathbf{K} = \mathbf{k}' - \mathbf{k}$

$\mathbf{A}'$ et $\mathbf{B}'$ sont des vecteurs géométriques dépendant de la configuration de diffraction, et sont donc reliés aux vecteurs d'ondes et aux vecteurs de polarisation de l'onde incidente et diffractée. Ils s'écrivent :

$$\begin{aligned} \mathbf{A}' &= \mathbf{e}' \times \mathbf{e} \\ \mathbf{B}' &= \mathbf{e}' \times \mathbf{e} + (\mathbf{k}' \times \mathbf{e}')(\mathbf{k}' \times \mathbf{e}) - (\mathbf{k} \times \mathbf{e})(\mathbf{k} \times \mathbf{e}') - (\mathbf{k}' \times \mathbf{e}')(\mathbf{k} \times \mathbf{e}) \end{aligned} \quad [\text{II.9}]$$

Le premier terme de l'équation II.8 décrit la diffusion de Thomson usuelle, par les charges électroniques avec le facteur de polarisation en cosinus de l'angle $(\mathbf{e}, \mathbf{e}')$: elle dépend de la transformée de Fourier de la densité électronique de l'atome j et conduit au terme classique $f_0(\mathbf{K})$. Le deuxième terme, qui est réduit par un facteur $(\hbar\omega/mc^2)$ en amplitude, décrit l'amplitude de la diffusion dépendant du magnétisme, avec deux composantes qui dépendent respectivement des moments orbital et de spin de l'électron. Bien que beaucoup plus faible que la diffusion de charge, cette contribution (reliée aux électrons non appariés, alors que la partie classique est reliée au nombre total d'électrons) est observable en utilisant l'intensité des anneaux de stockage synchrotron. De plus l'écriture de la section efficace met en lumière des facteurs géométriques (et de polarisation), $\mathbf{A}'$ et $\mathbf{B}'$, différents pour la composante orbitale et la composante de spin. Il est donc possible grâce aux rayons X d'obtenir une mesure séparée du moment orbital et du moment de spin en utilisant une géométrie et une polarisation appropriées : ceci a été montré expérimentalement pour la première fois dans le cas de l'Holmium [4-6].

Platzman et Tzoar [7] ont calculé dès 1970 les intensités des pics de Bragg d'origine magnétique pour un échantillon présentant un ordre antiferromagnétique, et ont montré que le rapport des intensités du pic de sur-structure magnétique et du pic de charge est typiquement de l'ordre de 10^{-6} et ont donc prédit que les pics magnétiques devaient être observables. La confirmation expérimentale a été donnée en 1972 par F. De Bergevin et M. Brunel [8], qui ont apporté la première observation d'un tel pic grâce aux rayons X, en utilisant un échantillon de NiO présentant un état de couplage antiferromagnétique au dessous de $T_N=250^\circ\text{C}$ (Figure 2.1). Le nombre de photons comptés est donné pour 225 minutes de comptage. Les intensités mesurées, $4 \cdot 10^{-8}$ fois plus faibles que l'intensité du pic de charge, sont en accord avec celles évaluées à partir de l'interaction du champ électromagnétique avec les spins électroniques. L'origine magnétique du pic est confirmée par sa disparition à une température supérieure à T_N .

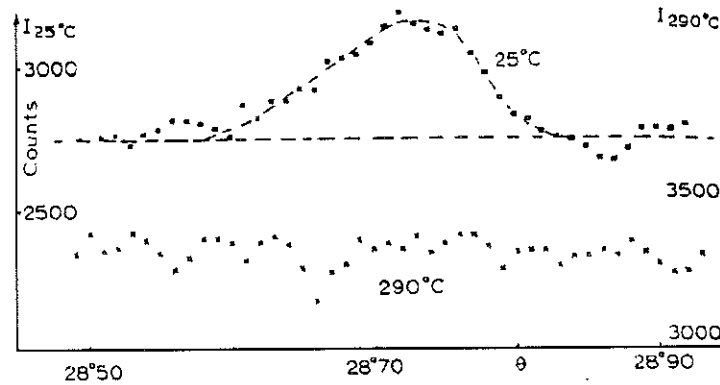


Figure 2.1 : Réflexion $\frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2}$ d'un cristal de NiO à 25°C et à 290°C
(d'après F. De Bergevin et M. Brunel [8]).

Ce n'est cependant que depuis 1985 que l'utilisation de la diffraction magnétique s'est développée, notamment avec les études sur les composés à base d'Holmium présentant des structures magnétiques spirales [5, 6, 9, 10]. Le délai s'explique par la faible amplitude de la diffusion magnétique. Ceci a été partiellement compensé par le développement des anneaux synchrotron, permettant en outre de bénéficier de faisceau X d'états de polarisation bien définis. Une présentation plus complète des divers résultats obtenus en diffraction magnétique non-résonante se situant au delà de ce mémoire, nous donnons seulement quelques références présentant la synthèse de cette interaction et les travaux expérimentaux s'y rapportant [3, 4, 11-16].

Remarque :

Le terme de réduction de l'intensité pour la contribution magnétique en $(\hbar\omega/mc^2)^2$ conduit pour la gamme des X-mous (100-1000 eV) à un facteur de réduction de l'ordre de 10^{-6} sur les intensités. et de l'ordre de 10^{-4} à 5 keV. Etant donné la faiblesse de cette contribution par rapport à l'amplitude des effets résonnants, elle a été négligée dans nos travaux.

4. / Diffraction magnétique résonante

L'équation II.7, donnant la probabilité de transition, fait également apparaître les termes de diffusion résonante qui se produisent lorsque $\hbar\omega = E_n - E_a$, c'est à dire pour une énergie des photons incidents correspondant à une arête d'absorption. C'est aussi l'utilisation du rayonnement synchrotron qui a conduit à la mise en évidence de la diffusion résonante, sensible à l'aimantation du matériau.

La première mise en évidence d'un effet de diffraction magnétique résonante a été réalisée par Namikawa *et al* [17] lors d'une expérience de diffraction magnétique non-résonante sur un cristal de Ni. En plus du signal magnétique, provenant de la diffusion non résonante décrite ci-dessus, ils ont observé un phénomène de résonance nouveau, lié au magnétisme du matériau, pour des énergies de photons incidents au voisinage du seuil d'absorption K du Ni. En partant des expressions données par Blume, ces auteurs ont développé les termes résonants et non résonants donnés par le hamiltonien, en séparant la partie dépendante du spin et celle dépendante de la charge, afin de décrire la résonance mesurée.

Peu après, à la suite de l'étude par diffraction magnétique des rayons X non-résonante, de l'ordre magnétique dans Ho présentant un ordre magnétique spiral, D. Gibbs *et al* [5, 6, 9, 10] ont observé une forte augmentation de la section efficace pour les satellites de diffraction qui sont la signature de l'ordre magnétique, pour des énergies proches du seuil L_{III} de l'Ho. Les 2^{ème}, 3^{ème}, et 4^{ème} satellites ont également été observés à la résonance. La dépendance en fonction de la polarisation a été caractérisée, et le processus a été interprété grâce à une expansion multipolaire des transitions impliquées [18, 19].

4.1. / Formalisme

Le formalisme de la XRMS a été décrit par Hannon *et al* [18, 19]. Dans le régime résonant, en plus des termes anomaux habituels $f' + if''$, apparaissent de nouveaux termes sensibles aux propriétés magnétiques du matériau. Dans un modèle décrivant la transition par un

processus à un électron et se déroulant en 2 temps, le photon incident provoque la transition d'un électron d'une couche interne vers un état inoccupé au dessus du niveau de Fermi, suivi d'une désexcitation par émission élastique d'un photon.

Si l'on ne considère que le terme H'_2 de l'équation [II.6], on peut écrire les contribution f' et f'' au facteur de diffusion atomique sous la forme (dans le cas élastique) :

$$f = f' + if'' = \left(\frac{e^2}{mc^2} \right) \sum_{\eta} \sum_j \frac{\langle \alpha | \hat{\mathbf{e}}^* \cdot \mathbf{P}_j e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}} | \eta \rangle \langle \eta | \hat{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{P}_j e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} | \alpha \rangle}{E_{\eta} - E_{\alpha} - \hbar\omega - i\frac{\Gamma}{2}} \quad [\text{II.10}]$$

$|\alpha\rangle$ représente l'état fondamental de l'atome et $|\eta\rangle$ les états virtuels consistant en un électron dans un état excité et un trou sur une couche interne. Γ est la largeur énergétique de l'état intermédiaire $|\eta\rangle$.

A la résonance pour $\hbar\omega \approx E_{\eta} - E_{\alpha}$, le facteur de diffusion f contient une sensibilité à l'état magnétique du matériau, ayant pour origine la levée de la dégénérescence des niveaux inoccupés par l'aimantation locale portée par l'atome.

Au contraire de la diffraction magnétique non résonnante, qui a pour origine principale la diffusion de l'onde EM par les moments magnétiques de spin et orbital des électrons non appariés, la diffusion magnétique résonnante résulte de transitions purement électriques multipolaires entre un état de coeur et soit un niveau électronique atomique vide (ex : $3d \rightarrow 4f$) dans les métaux de terres rares soit une bande au niveau de Fermi (ex : $2p \rightarrow 3d$ dans les métaux de transition, $2p \rightarrow 5d$ dans les métaux de terres rares). La sensibilité au magnétisme est attribuée à l'interaction spin-orbite (SO) dans l'état de coeur, et au décalage en énergie des 2 sous-bandes de valence pour les deux orientations de spin électronique sous l'effet de l'interaction d'échange (Δ).

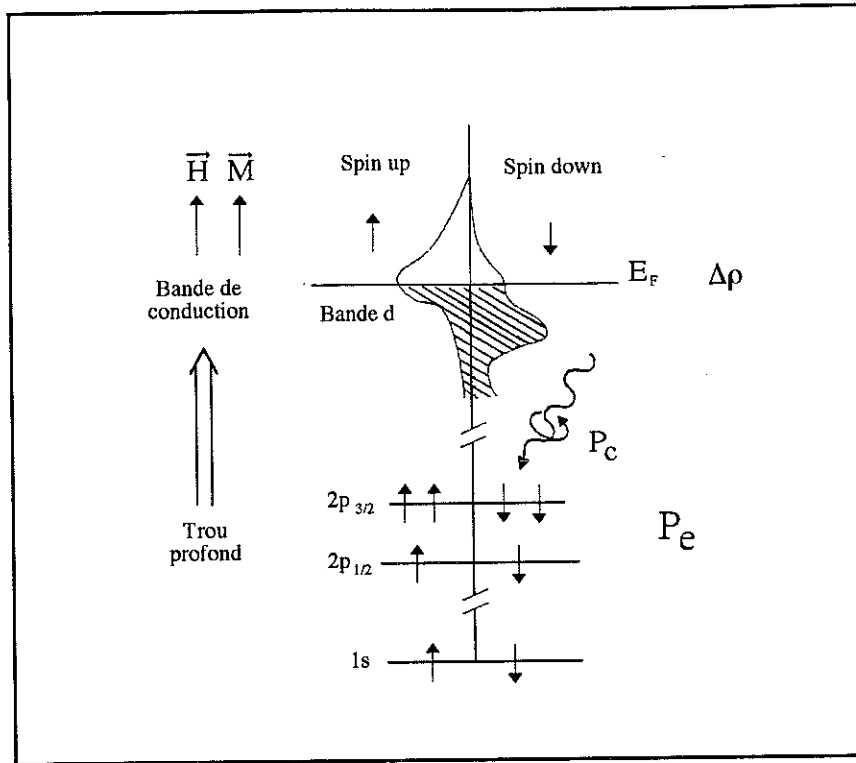


Figure 2.2 : Modèle des transitions pour l'approximation à un électron
(dans le cas d'une transition $2p \rightarrow d$: seuil L)

Le niveau de coeur agit comme une source d'électrons polarisés en spin grâce au couplage spin-orbite, et la bande (ou le niveau) final comme un détecteur d'électron résolu en spin du fait des probabilités de transition différentes vers les 2 sous-bandes de spin-up et spin-down dues à la différence des nombres d'états vides accessibles à la transition (Figure 2.2). Les conditions d'observation de la XRMS sont donc similaires à celles du Dichroïsme Circulaire Magnétique (leur équivalence sera d'ailleurs démontrée expérimentalement au chapitre III). En particulier, le couplage SO est nécessaire pour induire une différence des probabilités de transitions selon l'orientation de l'aimantation. En absence de couplage SO dans les niveaux profonds, ou au moins dans les niveaux intermédiaires, il faut alors faire intervenir les hamiltoniens de spin H'_3 et H'_4 afin d'obtenir une contribution d'origine magnétique.

Pour le cas particulier d'une transition électrique 2^L (EL) polaire pour un ion magnétique, la contribution à l'amplitude de diffusion est donnée par :

$$f_{EL} = 4\pi r_0 \sum_{M=-L}^L \left[\hat{e}'^* \cdot \mathbf{Y}_{LM}(\hat{k}') \mathbf{Y}_{LM}^*(\hat{k}) \cdot \hat{e} \right] F_{LM}(\omega) \quad [\text{II.11}]$$

$$\text{avec : } r_0 = \frac{e^2}{mc^2}$$

L'amplitude de la résonance est décrite par les termes F_{LM} donnant la probabilité de transition entre 2 états a et b :

$$F_{LM}(\omega) = \sum_{a,b} \frac{p_a p_{a(b)} \Gamma_x(aMb; EL) / \Gamma}{x(a,b) - i} \quad [\text{II.12}]$$

Dans ces expressions, les Y_{LM} sont des harmoniques sphériques vectorielles; $\mathbf{e}$, $\mathbf{e}'$, $\mathbf{k}$, $\mathbf{k}'$ désignent les vecteurs polarisation et les vecteurs d'onde des ondes incidente et diffusée. L est l'ordre de la transition ($L=1$ pour des transitions dipolaires, appelées E1 et $L=2$ pour des transitions quadrupolaires (E2)) et M est le changement du moment angulaire ($M=0, \pm 1$, pour des transitions E1). P_a désigne la probabilité pour que l'ion soit dans l'état $|a\rangle$ d'énergie E_a et $P_{a(b)}$ la probabilité pour que l'état $|b\rangle$ d'énergie E_b soit vide. $\Gamma_x(aMb; EL)/\Gamma$ est le rapport entre la largeur énergétique due aux seuls processus électriques 2^L -polaires et celle due à l'ensemble des processus de désexcitation. $x(a,b) = ((E_a - E_b) - \hbar\omega)/(\Gamma/2)$ est la déviation par rapport à la résonance en unité de $\Gamma/2$.

L'équation II.11 indique que la dépendance en polarisation de l'intensité diffusée est indépendante des coefficients F_{LM} qui incluent la structure électronique. Les produits $Y_{LM}(\mathbf{k})$ peuvent être exprimés en fonction de $\mathbf{k}$ et $\mathbf{e}$ en utilisant les coefficients de Clebsch-Gordan. Pour des transitions dipolaires, les termes géométriques s'écrivent :

$$[\mathbf{e}'^* Y_{1\pm 1}(\mathbf{k}') Y_{1\pm 1}(\mathbf{k}) \mathbf{e}] = \frac{3}{16\pi} [(\mathbf{e}'^* \cdot \mathbf{e}) \mp (\mathbf{e}'^* \times \mathbf{e}) \cdot \mathbf{z}_n - (\mathbf{e}'^* \cdot \mathbf{z}_n)(\mathbf{e} \cdot \mathbf{z}_n)] \quad [\text{II.13}]$$

$$[\mathbf{e}'^* Y_{10}(\mathbf{k}') Y_{10}(\mathbf{k}) \mathbf{e}] = \frac{3}{8\pi} [(\mathbf{e}'^* \cdot \mathbf{z}_n)(\mathbf{e} \cdot \mathbf{z}_n)] \quad [\text{II.14}]$$

où $\mathbf{z}_n$ est l'axe de quantification défini par la direction du moment magnétique sur le $n^{\text{ème}}$ atome.

La partie résonnante du facteur de diffusion s'écrit alors pour des transitions E1 :

$$f_{E1} = \frac{3}{4} r_0 \left\{ (\mathbf{e}'^* \cdot \mathbf{e}) [F_{11} + F_{1-1}] - i(\mathbf{e}'^* \times \mathbf{e}) \cdot \mathbf{z}_n [F_{11} - F_{1-1}] + (\mathbf{e}'^* \cdot \mathbf{z}_n)(\mathbf{e} \cdot \mathbf{z}_n) [2F_{10} - F_{11} - F_{1-1}] \right\}$$

[II.15]

Seuls trois termes subsistent donc pour une transition dipolaire E1. Le premier, indépendant de la direction du moment magnétique correspond à la diffusion anormale classique, associée à la transition entre les états a et b. Sa partie imaginaire est liée à l'absorption entre ces états, avec la raie blanche du seuil d'absorption (si existante). La partie réelle, dispersive, correspond à la transformée de Kramers-Kronig de l'absorption. Le deuxième terme est linéaire en moment, et permet donc l'étude de l'ordre magnétique. Dans un échantillon ferromagnétique, il donne une contribution supplémentaire aux pics de réflexion de charge. Il donne des pics purement magnétiques pour un ordre antiferro ou ferrimagnétique. Le troisième terme, quadratique en $\mathbf{z}_n$ produit les satellites de second ordre dans un composé antiferromagnétique incommensurable. Ce terme est faible devant le terme linéaire car $F_{11} + F_{1,-1} \approx 2F_{10}$ (pour une symétrie cubique). En outre on ne le met pas en évidence en renversant l'aimantation ou l'hélicité du faisceau puisqu'il est quadratique. Nous le négligerons en choisissant des géométries qui annulent le terme angulaire correspondant, ou le rendent négligeable. Les expressions dérivées dans le cas de transitions dipolaires montrent que seule intervient la direction de l'aimantation totale $\mathbf{z}_n$. A priori, il n'est donc pas évident de pouvoir séparer L et S à l'aide des phénomènes résonnants.

Bien que les transitions dipolaires soient généralement les plus importantes en amplitude, les termes quadrupolaire (E2) peuvent jouer un rôle en diffraction magnétique, spécialement dans le cas des terres rares à cause de la polarisation forte du niveau 4f (transitions $2p \rightarrow 4f$). La prise en compte de ces termes E2 est complexe. Elle ajoute 13 termes géométriques supplémentaires au facteur de diffusion atomique dépendant des polarisations et des vecteurs d'onde [18, 20, 21], et introduisant 5 amplitudes de transitions quadrupolaire $F_{2,M}$ pour $-2 \leq M \leq 2$.

4.2. / Dépendance en polarisation

L'équation II.15 fait apparaître des dépendances en polarisation différentes pour la partie magnétique et celle non magnétique du facteur de diffusion. La diffusion non dépendante du moment magnétique d'un photon ne produit aucun changement dans l'état de polarisation du photon : du fait du terme de polarisation en produit scalaire, un photon de polarisation σ sera diffusé sur un état de polarisation final σ , et de même pour l'état π . Au contraire, la partie dépendante du magnétisme induit une rotation de la polarisation entre l'état initial et l'état final du fait de la dépendance en produit vectoriel des polarisations. Elle s'apparente à un pouvoir rotatoire magnétique.

Le type de géométrie utilisée pour une expérience XRMS dépend évidemment des caractéristiques de l'échantillon (type d'ordre magnétique), de la gamme en énergie pour les photons incidents et de la gamme en k nécessaire pour la mesure.

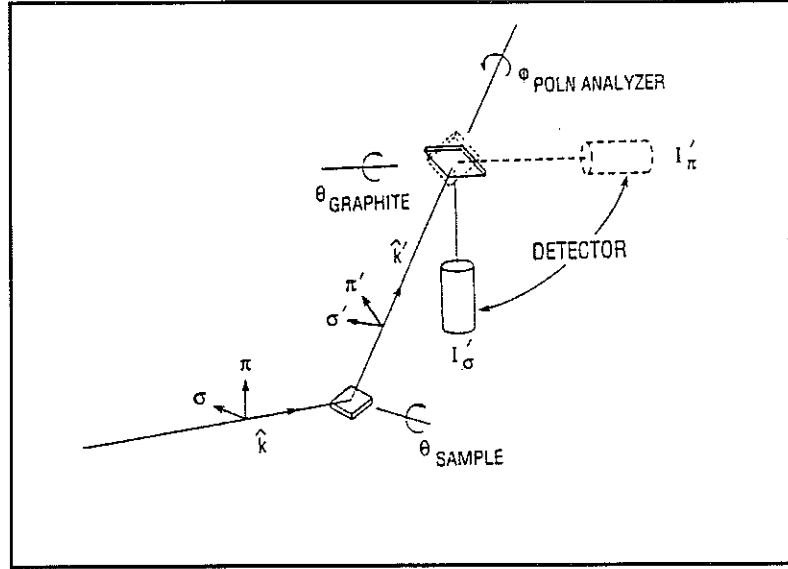


Figure 2.3 : Arrangement expérimental typique pour une étude de XRMS
L'analyse de polarisation est effectuée en tournant le cristal analyseur de 90° autour du faisceau diffracté afin de mesurer seulement la composante σ ou π diffractée.

Dans le domaine des rayons X durs (vers l'Angström), la plupart des expériences de XRMS ont été réalisées en utilisant un cristal analyseur de polarisation, constitué par un cristal présentant une réflexion de Bragg, pour un angle d'incidence proche de 45° à la longueur d'onde de la résonance. Dans ce cas il est possible de mesurer séparément chacun des états de polarisation final σ et π en tournant le cristal analyseur de 90° par rapport au plan de diffraction (figure 2.3). Ceci permet de séparer la diffraction magnétique de la diffraction de charge.

Dans le cas des X mous, on ne dispose en général pas de cristal analyseur donnant une réflexion à 90° aux longueurs d'onde choisies (typiquement $\lambda \sim 10\text{-}20 \text{ \AA}$). Pour mettre en évidence la diffusion magnétique dans un matériau ferromagnétique, on peut alors utiliser le couplage dans l'intensité réfléchie entre l'amplitude de charge et celle d'origine magnétique, qui est donné de manière générale par le terme d'interférence :

$$-i(\mathbf{e}_f^* \cdot \mathbf{e}_i)(\mathbf{e}_f^* \times \mathbf{e}_i)z_j[F_{11}^2 - F_{1-1}^2] \quad [\text{II.16}]$$

En renversant le sens de l'aimantation dans l'échantillon, donc de z_j on ajoute ou on retranche ce terme aux carrés des 2 facteurs de diffusion. La différence $I^+ - I^-$ des intensités ainsi diffractées met en évidence l'effet magnétique. En général, on utilise le rapport d'asymétrie qui

est sans dimension : $R_a = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-}$.

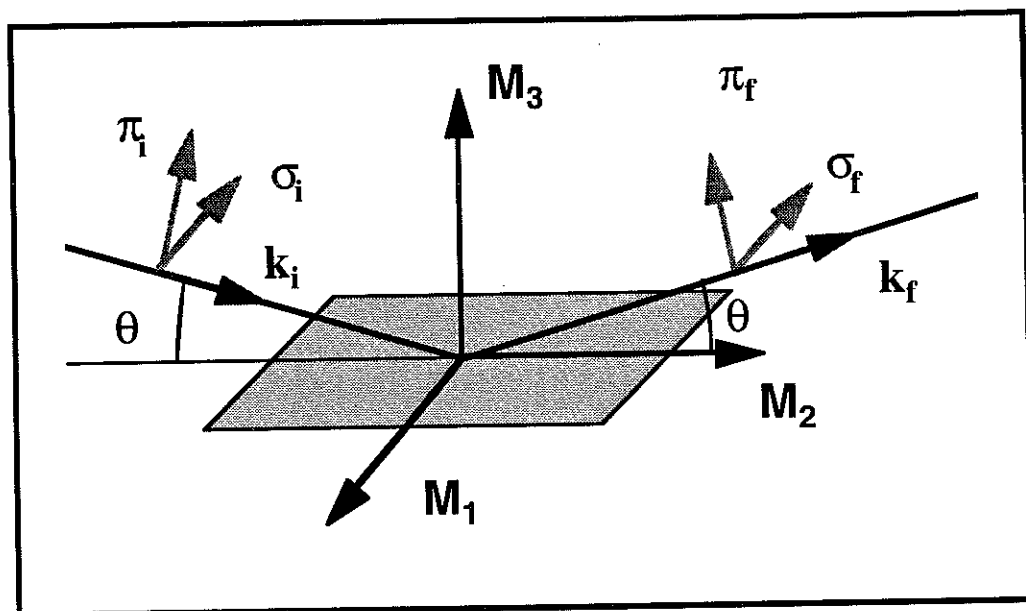


Figure 2.4 : Géométrie symétrique de diffraction définissant les polarisation σ et π , ainsi que les vecteurs d'onde de l'onde incidente et diffractée

	Contribution de charge		Moment local selon le vecteur					
			M_1		M_2		M_3	
	σ_i	π_i	σ_i	π_i	σ_i	π_i	σ_i	π_i
σ_f	1	0	0	0	0	$-i\cos(\theta)$	0	$i\sin(\theta)$
π_f	0	$\cos(2\theta)$	0	$-i\sin(2\theta)$	$i\cos(\theta)$	0	$-i\sin(\theta)$	0

Tableau II.1 : Facteur géométrique reliant l'amplitude diffusée à celle incidente selon l'orientation de l'aimantation et l'état de polarisation linéaire des faisceaux incident et diffusé.

Le tableau II.1 récapitule les divers facteurs géométriques obtenus selon l'orientation de l'aimantation par rapport aux faisceaux incident et réfléchi (défini par les vecteurs M_i) et selon l'état de polarisation du faisceau incident : les notations sont celles de la figure 2.4. Une possibilité pour augmenter les effets dus au magnétisme est de coupler dans l'intensité réfléchie

les amplitudes d'origines magnétiques à celle de Thomson. Le tableau II.1 montre qu'il est aisé de réaliser une telle condition dans le cas de la géométrie transverse (moments selon U_1 , perpendiculaire au plan de diffraction), en utilisant la polarisation linéaire. Cette condition est également remplie dans les deux autres géométries à condition d'utiliser un faisceau incident comprenant à la fois une polarisation σ et π : un faisceau polarisé circulairement dans le cas du rayonnement synchrotron.

Deux géométries permettant le couplage des intensités de charge et magnétique sont donc privilégiées :

- la géométrie transverse : Champ magnétique appliqué perpendiculaire au plan de diffraction et polarisation π (géométrie U_1). Elle présente l'avantage de permettre d'utiliser un faisceau X polarisé linéairement.
- la géométrie longitudinale : Champ magnétique appliqué dans le plan de diffraction et polarisation circulaire (géométrie U_2). Cette géométrie nécessite l'utilisation de polarisation circulaire, mais est plus efficace aux petits angles de diffraction du fait d'un terme magnétique en $\cos(\theta)$.

4.3. / Amplitude de résonance

Les coefficients F_{LM} contiennent les éléments de matrice couplant les états électroniques de coeur aux états excités. La dépendance en énergie de cette amplitude contient donc des informations sur la densité des états inoccupés au-dessus du niveau de Fermi. Un modèle simple pour décrire les effets d'échange est de considérer des niveaux atomiques élargis en bandes, pour lesquels les états de spin-up et de spin-down sont décalés en énergie par l'échange Δ . Les deux sous-bandes sont décrites dans un modèle de bandes rigides décalées de $\pm\Delta/2$ par rapport au niveau E_d qui serait celui de la bande d en l'absence du décalage d'échange (figure 2.5).

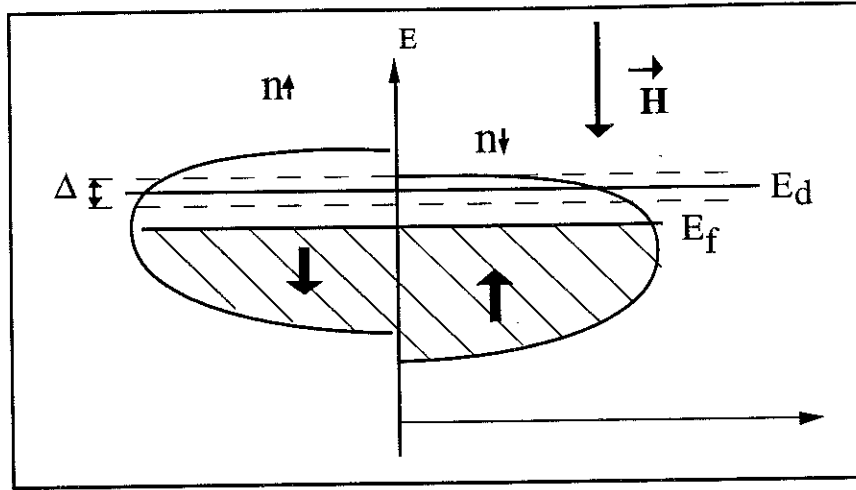


Figure 2.5 : Modèle schématique d'une bande polarisée en spin au niveau de Fermi.
Les deux sous-bandes de spin-up et spin-down sont décalées par l'énergie d'échange Δ

A partir de ce modèle simple, on cherche à calculer les termes F_{LM} . On se limite au cas d'une transition du type $2p \rightarrow d$. Il existe deux types d'états de spin "up" et "down" dans la bande d : $|d, m_l, \downarrow\rangle$ et $|d, m_l, \uparrow\rangle$. La résonance au seuil fait intervenir les transitions dipolaires (ex $2p_{3/2} \rightarrow d$). La probabilité $p_a(n)$ pour que l'orbitale $|d, m_l, m_s\rangle$ soit sondée dépend du détail de la structure électronique, et à priori donc de m_l . Une hypothèse simplificatrice est de négliger cette dépendance orbitale et de prendre : $p_a(d, m_l, m_s) = p(m_s)$. La probabilité p ne dépend alors plus que de la sous-bande sondée. Le calcul de la largeur Γ_x fait intervenir la décomposition du niveau $|2p_{3/2}, m_j\rangle$ en ses différentes composantes $|2p_{3/2}, m'_l, m'_s\rangle$ qui permet le calcul des éléments de matrices pour les transitions considérées, de la forme :

$$\langle 2p, j = 3/2, m_j | J_L(\mathbf{kr}) Y_{LM}(\mathbf{r}) | d, m_l, m_s \rangle \quad [\text{II.17}]$$

On obtient alors pour les amplitudes F_{LM} :

$$\begin{aligned} F_{1,1}(\omega) &= \frac{5}{18} \left(\frac{5p(\uparrow)}{x(\uparrow) - i} + \frac{3p(\downarrow)}{x(\downarrow) - i} \right) \frac{mc^2}{\Gamma} \frac{\chi^2}{4} \\ F_{1,-1}(\omega) &= \frac{5}{18} \left(\frac{3p(\uparrow)}{x(\uparrow) - i} + \frac{5p(\downarrow)}{x(\downarrow) - i} \right) \frac{mc^2}{\Gamma} \frac{\chi^2}{4} \quad [\text{II.18}] \\ F_{1,0}(\omega) &= \frac{20}{18} \left(\frac{p(\uparrow)}{x(\uparrow) - i} + \frac{p(\downarrow)}{x(\downarrow) - i} \right) \frac{mc^2}{\Gamma} \frac{\chi^2}{4} \end{aligned}$$

où x est l'énergie réduite, décrite pour chacune des orientations de spin :

$$\begin{aligned}x(\uparrow) &= \frac{2}{\Gamma}(E_d - E_p - \hbar\omega) - \frac{\Delta}{\Gamma} = x_0 - \frac{\Delta}{\Gamma} \\x(\downarrow) &= \frac{2}{\Gamma}(E_d - E_p - \hbar\omega) + \frac{\Delta}{\Gamma} = x_0 + \frac{\Delta}{\Gamma} \\|\chi|^2 &= \frac{24}{5} |\langle 2p | J_1(kr) | d \rangle|^2\end{aligned}$$

Ce modèle simple implique que :

$$F_{l,0}(\omega) = \frac{1}{2} [F_{l,1} + F_{l,-1}]$$

Il ne rend donc pas compte du terme quadratique dans II.15. A partir des expressions II.18, on peut calculer les termes $F_{l,1} - F_{l,-1}$ et $F_{l,1} + F_{l,-1}$ en prenant un développement au 1^{er} ordre de $1/(x-i)$ en $\Delta/\Gamma \ll 1$ (approximations généralement satisfaites). On obtient :

$$\begin{aligned}F_{l,1} - F_{l,-1} &= -F/12 \left(5(p(\uparrow) - p(\downarrow)) - \frac{\Delta 5(p(\uparrow) + p(\downarrow))}{\Gamma(x_0 - i)} \right) \\F_{l,1} + F_{l,-1} &= F/3 \left(5(p(\uparrow) + p(\downarrow)) - \frac{\Delta 5(p(\uparrow) - p(\downarrow))}{\Gamma(x_0 - i)} \right)\end{aligned} \quad [\text{II.19}]$$

$$\text{Avec :} \quad F = \frac{mc^2 |\chi|^2}{3} \frac{1}{\Gamma(x_0 - i)} \quad [\text{II.20}]$$

On remarque que $n_e = 5(p(\uparrow) - p(\downarrow))$ est le nombre net de spins et donc proportionnel au moment magnétique $m = -g_s \mu_B n_e$.

De la même manière $n_h = 5(p(\uparrow) + p(\downarrow))$ est le nombre total de trous dans la bande d.

L'amplitude de résonance pour des transitions E1 s'écrit finalement :

$$f_{E1} = \frac{1}{4} r_0 \frac{F}{\Gamma(x_0 - i)} \left\{ (\hat{\mathbf{e}}'^* \cdot \hat{\mathbf{e}}) n_h + i(\hat{\mathbf{e}}'^* \times \hat{\mathbf{e}}) \cdot \mathbf{z}_j \left[n_e - \frac{\Delta n_h}{\Gamma(x_0 - i)} \right] \right\} \cdot 4$$

[II.21]

où :

- F : Amplitude de la résonance (reliée aux éléments de matrice couplant l'état initial et l'état final)
- n_e : Différence du nombre d'électrons (ou de trous) présents dans les sous-bandes de spin-up et de spin-down. n_e est donc proportionnel à l'aimantation.
- n_h : Nombre total de trous disponibles dans le niveau (ou la bande) vers lequel s'effectue la transition. C'est la somme des trous de spin-up et de spin-down.
- Δ : décalage d'échange. Dans un modèle simple on a $\Delta = Jm$, où J est l'énergie d'échange intervenant, notamment, au niveau du critère de Stoner, et m est le moment magnétique (en μ_B).

L'équation II.21 met en lumière le fait que la partie résonante du facteur de diffusion classique (ou isotrope) est proportionnelle au nombre de trous total dans la bande, n_h , si du moins l'on néglige le terme correctif en $n_e\Delta/\Gamma$. La partie magnétique est elle sensible au décalage Δ entre les 2 sous-bandes, principalement au travers de la différence n_e du nombre d'électrons (ou de trous) dans les bandes de spin up et de spin down, mais également directement via le terme correctif en $n_h\Delta/\Gamma$. Le couplage SO dans le niveau $2p$ intervient de manière implicite dans le calcul du terme F_{LM} via les composantes $|m_l, m_s\rangle$ des états propres $J=3/2$ et $J=1/2$ (cf equation II.17).

La section efficace de diffusion dépend du moment magnétique total (n_e), et une séparation de L et S ne parait pas directement possible, contrairement au cas non résonant. Les deux règles de somme magnéto-optique [22, 23] décrites pour le cas du dichroïsme circulaire sont néanmoins applicables à la partie imaginaire du facteur de diffusion magnétique, si tant est que l'on soit capable d'extraire séparément des données les parties imaginaire et réelle du facteur de diffusion magnétique (voir chapitre III).

Une approche simplifiée pour décrire la résonance a été proposée par De Bergevin et al [24]. Dans cette approche, le terme correctif en Δ/Γ décrivant le décalage des résonances pour les deux bandes est négligé : il ne reste donc plus qu'une résonance purement lorentzienne pouvant être décrite par un terme d'amplitude ($n_m = n_e F/4\Gamma$). On l'exprime en unité d'électron (r_0) pour qu'il soit directement comparable aux facteurs de diffusion classiques. En ne gardant

que le premier terme de résonance magnétique, la résonance au seuil se décrit pour la partie non magnétique et magnétique par (en unité de r_0) :

$$\begin{aligned} f &= -(\hat{\mathbf{e}}_f^* \cdot \hat{\mathbf{e}}_i)(f_0 + f' - if'') + f_{\text{mag}}^{\text{res}} \\ f_{\text{mag}}^{\text{res}} &= -i(\hat{\mathbf{e}}_f^* \times \hat{\mathbf{e}}_i) \cdot \hat{\mathbf{z}}_{\text{jm}} \frac{x + i}{1 + x^2} \end{aligned} \quad [\text{II.22}]$$

Cette description se rapproche plus d'une description optique, l'élément de comparaison étant dans ce cas l'amplitude non magnétique. Le lien direct entre l'amplitude des facteurs de diffusion magnétique et le moment magnétique porté est alors perdu. Cependant cette approche s'avère plus intéressante pour une comparaison avec le XMCD, puisqu'elle peut être étendue en ne supposant aucune forme a priori pour la dépendance énergétique de la résonance, et permet donc de tenir compte des asymétries présentes dans les spectres d'absorption et de dichroïsme aux seuils L_{II} et L_{III} des métaux de transition 3d.

5. Relations et Outils utilisées en XRMS

5.1. / Relation de Kramers - Kronig

5.1.1./ Relations de Kramers-Kronig : la causalité

Les relations de Kramers-Kronig relient les parties imaginaire et réelle de la réponse d'un système linéaire passif, et traduisent le principe de causalité selon lequel aucun signal de réponse ne préexiste avant le signal d'excitation, en tenant compte du fait qu'aucun signal ne se propage plus vite que la vitesse de la lumière [25].

Considérons une onde incidente sur un milieu à $t=0$, formant le signal d'entrée A d'un système linéaire passif. Le signal, nul pour les temps $t < 0$, est composé de plusieurs composantes de Fourier s'étendant de $t = -\infty$ à $t = +\infty$ (cf figure 2.6). Ces composantes produisent un signal nul pour $t < 0$ par interférences destructives. Il est impossible de trouver un milieu linéaire passif dont la réponse serait la simple absorption d'une des composantes de Fourier (B) sans affecter les autres composantes, car dans ce cas le signal réponse contiendrait le complément de cette composante (A-B) pour des temps $t < 0$ (Figure 2.6). Ceci est en

contradiction avec le principe de causalité. Le principe de causalité implique donc que l'absorption d'une fréquence soit accompagnée d'un décalage compensatoire des autres fréquences afin de conserver un signal nul pour $t < 0$. Ce décalage est décrit par les relations de dispersion.

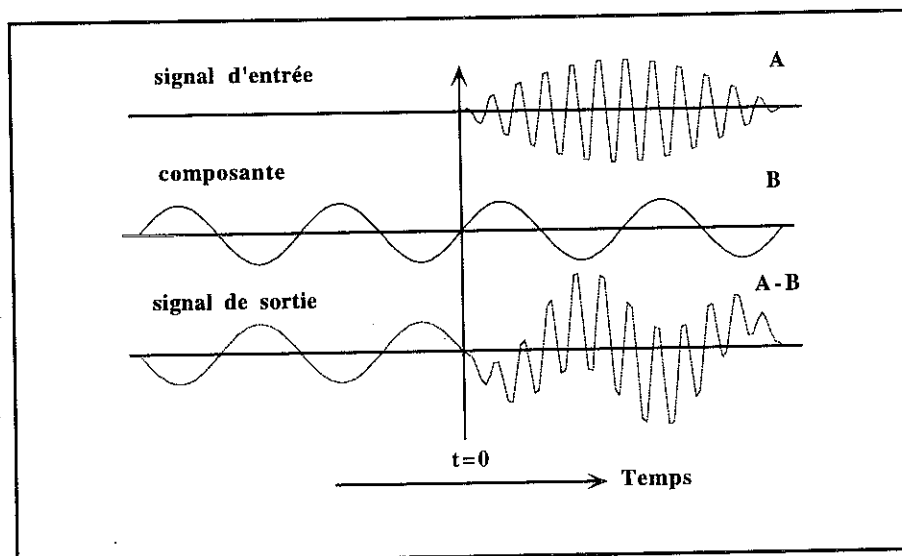


Figure 2.6 : Illustration du principe de causalité

A : signal d'entrée

A-B : signal de sortie dans le cas où l'on ne tient compte que de l'absorption d'une seule longueur d'onde, sans mécanisme de dispersion.

La traduction mathématique de ce phénomène est donnée par les relations de Kramers-Kronig reliant les termes anomaux f' et f'' entre eux. Etant donné le caractère général de ces formules, nous soulignons ici qu'elles s'appliquent également dans le cas des termes magnétiques anomaux.

$$f'(\omega) = \frac{2}{\pi} P \int_0^{\infty} \frac{\omega' f''(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' \quad \text{et} \quad f''(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} P \int_0^{\infty} \frac{f'(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' \quad [\text{II.23}]$$

où P désigne la partie principale de Cauchy de l'intégrale

5.1.2./ Calcul numérique des transformées de Kramers-Kronig

Le traitement de la plupart des données de ce mémoire a nécessité l'utilisation extensive des relations de Kramers-Kronig. Pour ce faire, j'ai écrit deux programmes (FPRIMES et FSECONDES) suivant la méthode décrite par Dreier et Rabe [26]. Elle consiste en une

interpolation linéaire du terme d'absorption (ou de dispersion) sur un intervalle en énergie. Cette linéarisation permet un calcul analytique de l'intégrale sur cette gamme en énergie. Le terme de dispersion (absorption) est calculé en sommant sur toute la gamme en énergie, les contributions de chacun des éléments linéarisés. Les intervalles pour lesquels ω (pulsation à laquelle le calcul est effectué) constitue une des bornes, sont substitués par un intervalle plus large contenant cette valeur de ω . Ceci permet d'éliminer les divergences se produisant dans le calcul de l'intégrale lorsque $\omega'=\omega$. Cette méthode est donc surtout valable pour la transformation de données d'un seuil d'absorption pour lequel les points expérimentaux sont resserrés en énergie.

Un point important dans cette méthode est l'étendue de la fenêtre en énergie sur laquelle le calcul est effectué. La précision est d'autant meilleure que celle-ci est plus étendue, bien que les points dont l'influence est la plus grande soient ceux situés les plus près de l'énergie ω à laquelle on calcule le facteur de diffusion (à cause du terme de pondération en $\omega'^2-\omega^2$). La fenêtre en énergie utilisée pour l'intégration d'un signal d'absorption est donc étendue largement au delà des données expérimentales au moyen de valeurs tabulées pour l'atome libre par Cromer et Mann [27, 28], ou par Sasaki [29]. Dans le cas de seuils situés dans la gamme en énergie des rayons X-mous, ce domaine d'intégration doit être complété par les tables de Henke [30] allant jusqu'à 30 eV. L'effet d'un domaine fini en énergie sur l'intégration se traduit par une divergence de f' et f'' aux bornes à faibles et hautes énergies qui peuvent conduire à des décalages aux énergies intermédiaires considérées [31].

Le critère que nous avons utilisé pour les bornes d'intégration est celui décrit par Hoyt et De Fontaine [31] visant à minimiser ces décalages. Ces auteurs préconisent d'utiliser la gamme en énergie de $E/50$ jusqu'à $E \times 50$, autour d'un seuil d'énergie E . Pour des seuils L de métaux de transitions (700-900 eV), ceci conduit aux limites suivantes : 10 eV - 40 keV (Figure 2.7). Pour la partie haute énergie, les tables de Sasaki sont suffisantes. En revanche il apparaît une limitation plus importante pour les faibles énergies où l'utilisation des tables de Henke limite la fenêtre à 30 eV.

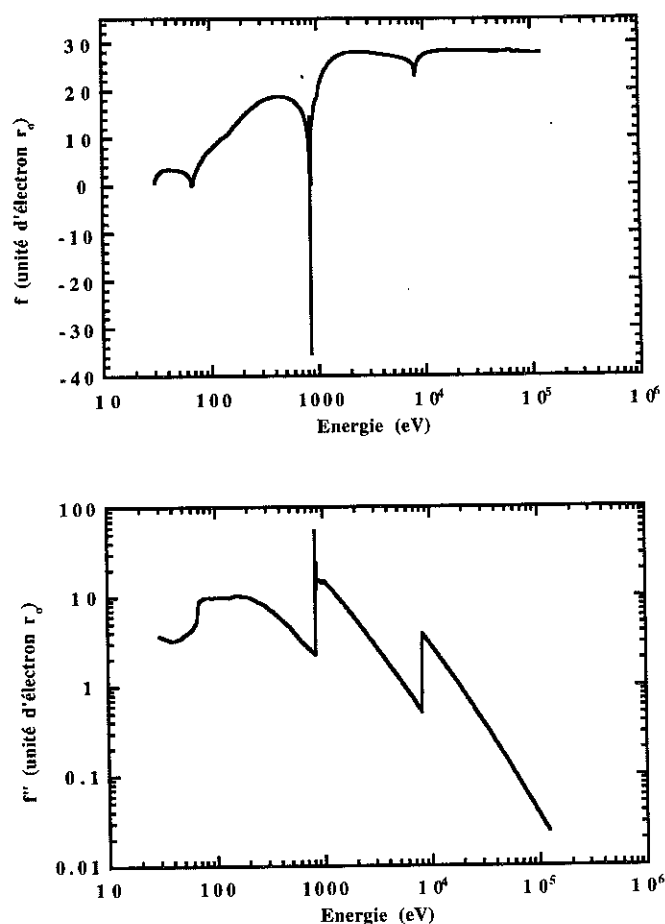


Figure 2.7 : Partie réelle (f_0+f') calculée par KK (haut) et imaginaire(f'') donnée par les tables de Henke et Sasaki (bas) du facteur de diffusion atomique pour le Ni. La séparation des 3 seuils L est peu visible à cette échelle.

Dans certains cas (calcul auto-cohérent), nous avons utilisé la méthode proposée par Templeton et Templeton [32] basée sur la linéarité des relations de Kramers-Kronig. La méthode consiste à calculer la transformée non pas sur le signal brut, mais sur la différence soit par rapport à une référence mesurée expérimentalement, soit par rapport à un spectre théorique : $\Delta f = f_{\text{exp}} - f_{\text{theo}}$ (où f représente f' ou f''). La différence s'annulant rapidement de part et d'autre du seuil d'absorption cette méthode peut s'utiliser avec des bornes d'intégration plus petites, ce qui limite les effets de divergence. On obtient évidemment ainsi une correction par rapport à la transformée Kramers-Kronig du spectre correspondant à la référence expérimentale ou théorique.

Dans le cas des termes magnétiques, ceux-ci tendant vers zéro très rapidement autour des seuils (résonance de forme lorentzienne), aucun problème particulier d'intégration ne se pose. On peut tout de même appliquer la méthode de différence dans ce cas par rapport à un spectre référence. Dans certains cas, l'approximation lorentzienne pour la forme des résonances magnétiques a été utilisée. Nous donnons les expressions analytiques pour la transformée de Kramers-Kronig :

$$KK\left(\frac{1}{1+x^2}\right) = \frac{-x}{1+x^2} \quad \text{avec} \quad x = \frac{E_s - E}{\Gamma/2} \quad [\text{II.24}]$$

où :
 $E = \hbar\omega$: Energie des photons
 E_s : Position de la résonance en énergie
 Γ : Largeur à mi-hauteur de la résonance [33].

La même description lorentzienne est parfois utilisée pour décrire la contribution de la raie blanche aux termes f'' et f' classiques (non magnétiques) [24]. Cette description modélise un seuil d'absorption par la somme d'une lorentzienne décrivant les transitions vers les états localisés (raie blanche) et d'une fonction arctangente décrivant les états du continuum [34]. La transformée de Kramers-Kronig peut alors être calculée de manière analytique.

Enfin, il faut, en principe, tenir compte des corrections relativistes pour les valeurs de la partie réelle f' . Les corrections utilisées sont celles proposées par Kissel et Pratt [35]. Elles sont très faibles dans la gamme des rayons X-mous (de l'ordre de quelques 10^{-2} électrons pour le Nickel, à comparer à des valeurs de f' et f'' de l'ordre de quelque dizaines d'électron).

5.2. / Approximation Cinématique de la diffraction

Les deux chapitres suivants discutent du formalisme de la diffraction magnétique résonante par un échantillon dans une approche cinématique. Nous exposons ici les principales équations décrivant cette théorie.

Le modèle cinématique suppose que la probabilité de diffusion d'un photon est petite, et donc que l'amplitude du faisceau diffusé reste faible par rapport à celle du faisceau incident. Les diffusions multiples sont donc négligées. Pour un composé ordonné (cristal, multicouche ...), les ondes diffusées interfèrent constructivement dans certaines directions d'espace, donnant des pics de diffraction.

L'amplitude de l'onde diffractée par un cristal périodiquement ordonné est décrite par le facteur de structure total [36] :

$$F_{hkl}(K) = \sum_{\text{maille } i} \sum_{\substack{\text{atomes } j \\ \text{dans une} \\ \text{maille}}} f_j \exp[iK(r_j + R_i + u_j)] \quad [\text{II.25}]$$

- f_j : facteur de diffusion atomique **total** précédemment défini
 R_i : position de la maille élémentaire.
 r_j : position de l'atome j dans la maille.
 u_j : déplacement de l'atome j par rapport à sa position idéale.

La sommation est effectuée sur toutes les mailles élémentaires i , et sur tous les atomes j dans une maille donnée. La condition de diffraction est satisfaite par la loi de Bragg :

$$2d \sin(\theta) = \lambda \quad [\text{II.26}]$$

- où
 d : distance entre les plans diffractants
 θ : angle des faisceaux incident et réfléchi avec ces plans
 λ : longueur d'onde du rayonnement incident

L'intensité diffractée est proportionnelle au carré de l'amplitude de l'onde, et peut s'écrire, dans le cas d'un monocristal plan d'épaisseur infinie [36] :

$$\frac{I}{I_o} = \frac{Q}{2\mu} \text{ avec } Q = \frac{N^2 \lambda^3 r_o^2 |F|^2}{\sin(2\theta)} \quad [\text{II.27}]$$

- N : Nombre de mailles diffractantes
 r_o : rayon classique de l'électron
 μ : coefficient d'absorption linéaire

Dans le cas où l'échantillon ne peut pas être considéré infiniment épais, ce qui est à priori le cas pour une multicouche, une expression plus compacte est obtenue [37] :

$$I_{Obs} = K.A.P.L|F|^2 \quad [\text{II.28}]$$

- A : Correction d'absorption
 P : Correction de polarisation
 L : Correction de Lorentz
 K : Constante de normalisation incorporant le flux incident I_o

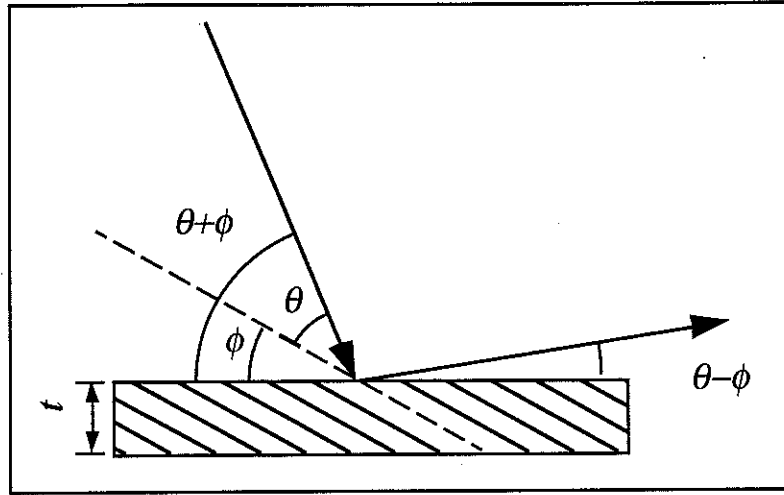
Correction d'absorption

Figure 2.8 : Schéma de géométrie pour une diffraction asymétrique

Dans le cas général (non-symétrique) et avec les conventions de la figure 2.8, la correction d'absorption est donnée pour un échantillon plan d'épaisseur t par [38] :

$$A = \frac{1}{\mu \left(1 + \frac{\sin(\theta + \phi)}{\sin(\theta - \phi)} \right)} \left(1 - e^{-\mu t \cos \theta} \right) \quad [\text{II.29}]$$

Dans le cas d'un échantillon plan d'épaisseur infinie et en géométrie symétrique, cette correction se réduit à :

$$A = \frac{1}{2\mu} \quad [\text{II.30}]$$

Facteur de Lorentz

Le facteur de correction de Lorentz prend en compte la vitesse à laquelle le noeud du réseau réciproque traverse la sphère d'Ewald. Dans ce travail, cette correction a été prise égale à celle utilisée pour un monocristal. On s'intéresse en effet aux pics de Bragg d'une multicouche aux petits angles. On peut donc considérer que l'empilement des couches présente un caractère de monocristal à une dimension. Dans ce cas cette correction s'écrit :

$$L = \frac{1}{\sin(2\theta)} \quad [\text{II.31}]$$

Mise en évidence des effets dus au magnétisme

Pour les composés ferromagnétiques, on utilise souvent le rapport d'asymétrie, afin de mettre en évidence les effets d'interférences entre diffusion normale et diffusion magnétique résonante :

$$R_a = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} \quad [\text{II.32}]$$

où I^+ et I^- désignent deux orientations opposées du champ magnétique appliqué à l'échantillon, et donc de l'aimantation locale portée par l'atome. Le couplage en amplitude entre les termes non-magnétiques et magnétiques introduit un terme magnétique de premier ordre, ce qui permet d'augmenter la sensibilité à ce dernier terme en général faible.

L'utilisation de ce rapport d'asymétrie présente l'avantage d'éliminer certaines corrections à l'intensité diffractée, ne dépendant pas de l'orientation de l'aimantation. Tel est le cas notamment de la correction d'absorption et de la correction de Lorentz. Il n'apparaît donc dans ce R_a que le facteur de structure total incluant la contribution magnétique. L'utilisation de ce rapport permet de mettre en évidence les effets magnétiques de manière rapide (signal différent de 0), mais permet également une comparaison de l'amplitude de ces effets avec ceux mesurés en XMCD.

5.3. / Propriétés de polarisation du rayonnement synchrotron

Les travaux menés dans le cadre de cette thèse ont été effectués essentiellement en utilisant des montages expérimentaux situés sur des anneaux de stockage dédiés à l'utilisation du rayonnement synchrotron. La diffraction magnétique résonante des rayons X nécessite en effet un rayonnement électromagnétique possédant une longueur d'onde bien définie (monochromatique) ainsi qu'un état de polarisation du faisceau X bien défini.

Etant donné la diversité des lignes de lumières, des montages expérimentaux et des gammes en énergie utilisés, nous ne donnons ici qu'une présentation sommaire des différentes caractéristiques du rayonnement synchrotron en insistant sur celles qui seront critiques par la suite, et notamment sur les propriétés de polarisation. Chaque montage expérimental, ainsi que les protocoles expérimentaux suivis seront brièvement décrits dans la suite de ce mémoire.

Le rayonnement synchrotron :

Le rayonnement synchrotron est le rayonnement émis par une particule chargée accélérée (électron ou positron), ayant une vitesse relativiste et dont la trajectoire est non-rectiligne. L'énergie des particules est $E = \gamma mc^2$, avec $\gamma \gg 1$ et m leur masse au repos avec $mc^2 = 511$ keV. Le moyen le plus simple, pour réaliser de telles conditions, est d'accélérer des électrons dont la trajectoire est courbée par des champs magnétiques statiques perpendiculaires à l'orbite électronique. Le rayon de courbure de l'orbite des électrons est donné par : $r = \gamma mc^2 / eB$, où B est l'induction magnétique. L'utilisation de particules relativistes permet d'obtenir une émission de photons très localisée le long de la direction tangentielle à l'orbite électronique (Figure 2.9).

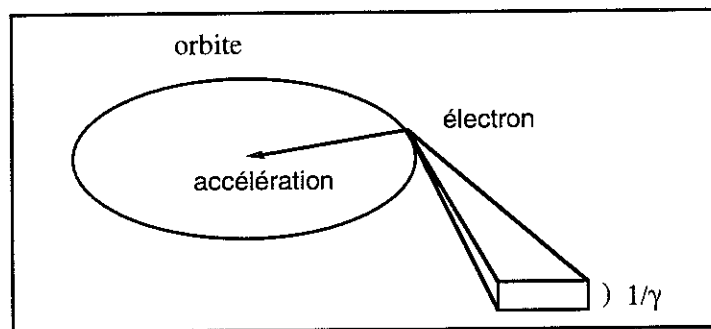


Figure 2.9 : Schéma d'émission du rayonnement synchrotron par une particule relativiste (électron). Cas d'un aimant de courbure.

De nombreux ouvrages traitent des caractéristiques de ce rayonnement (voir par exemple [39]), nous ne rappelons ici que celles qui sont essentielles pour des expériences de diffraction (réflectivité) magnétique.

Emission de faisceau faiblement divergent.

Le rayonnement émis par une particule relativiste est localisé dans un cône de lumière dont l'ouverture angulaire verticale est liée à l'énergie des particules via γ et à celle du faisceau X par la relation : $\phi = 1/\gamma \cdot \sqrt{E/E_c}$ où E_c est l'énergie critique de l'anneau. Le rayonnement émis par un arc d'orbite circulaire présente donc une faible divergence verticale. La divergence horizontale est évidemment définie par des fentes. Une des géométries utilisées (géométrie dite transversale) impose au plan de diffraction de se situer dans le plan de l'orbite. Elle est donc sensible à la divergence horizontale et aux fluctuations latérales de position du faisceau qui créent des variations de l'angle de Bragg.

Flux

Le flux de photons sur l'échantillon est un paramètre important dans le cas de la diffraction magnétique non-résonante d'intensité faible ainsi que pour la réflectivité (magnétique et non magnétique). Le flux rayonné est défini comme étant le nombre de photons émis dans une bande passante $\Delta\omega/\omega=10^{-3}$ dans un cône d'ouverture de 1 mrad (voir annexe 2 pour le détail des expressions du flux dans le cas d'un aimant de courbure). Etant donné la taille latérale relativement importante des couches minces et des multicouches avec laquelle nous avons travaillé, c'est ce paramètre qui est pertinent dans nos expériences plutôt que la brillance.

Continuité spectrale - monochromatisation

Pour un observateur, le rayonnement émis par un électron a une structure temporelle pulsée très courte due aux effets de propagation relativiste qui concentrent l'émission autour de la vitesse de l'électron. Cette brève impulsion temporelle est à l'origine d'une large bande spectrale d'émission. Le rayonnement émis présente donc une continuité spectrale en énergie, jusqu'à une énergie de coupure E_c au delà de laquelle le flux chute exponentiellement. Il est donc nécessaire d'utiliser un monochromateur afin d'obtenir une onde monochromatique. Ce monochromateur utilise des réflexions de Bragg par un cristal parfait (monochromateur à deux cristaux) pour des énergies de photons supérieures à 800 eV et un réseau gravé pour des énergies inférieures.

Etat de polarisation

L'état de polarisation est un paramètre critique pour l'interaction photon-matière, dès lors que celle-ci présente des propriétés anisotropes telles que celles induites par la présence d'une aimantation. Ceci est vrai pour la diffraction magnétique, tant résonante que non-résonante, mais l'est également pour les expériences d'absorption dépendante du magnétisme tel que le XMCD (Dichroïsme magnétique circulaire) ou le XMLD (Dichroïsme magnétique linéaire).

Comme cette caractéristique est celle qui est la plus utilisée dans la suite de ce travail, nous nous attardons un instant pour décrire les propriétés de polarisation du rayonnement synchrotron. Dans le cas d'un aimant de courbure, les amplitudes A_σ (dans le plan de l'orbite) et A_π (hors du plan de l'orbite) du champ électrique rayonné dans une direction ψ , par rapport à la tangente à la trajectoire s'écrivent, pour chacun des états de polarisation :

$$\begin{cases} A_{\sigma}(\psi, \omega) = -i\alpha K_{2/3}(y) \\ A_{\pi}(\psi, \omega) = \frac{\alpha\gamma\psi}{(1+\gamma^2\psi^2)^{1/2}} K_{1/3}(y) \end{cases}$$

[II.33]

$$\alpha = \frac{\sqrt{3}}{2\pi} \gamma \frac{\omega}{\omega_c} (1 + \gamma^2\psi^2)$$

$$y = (1 + \gamma^2\psi^2)^{3/2} \frac{\omega}{\omega_c}$$

ω : pulsation du rayonnement

ψ : ouverture angulaire

$K_{1/3}, K_{2/3}$: fonction de Bessel de seconde espèce

ω_c : pulsation critique de l'anneau ($E_c = \hbar\omega_c$). Pour Super ACO $E_c = 800$ eV ($\lambda_c = 15\text{\AA}$).

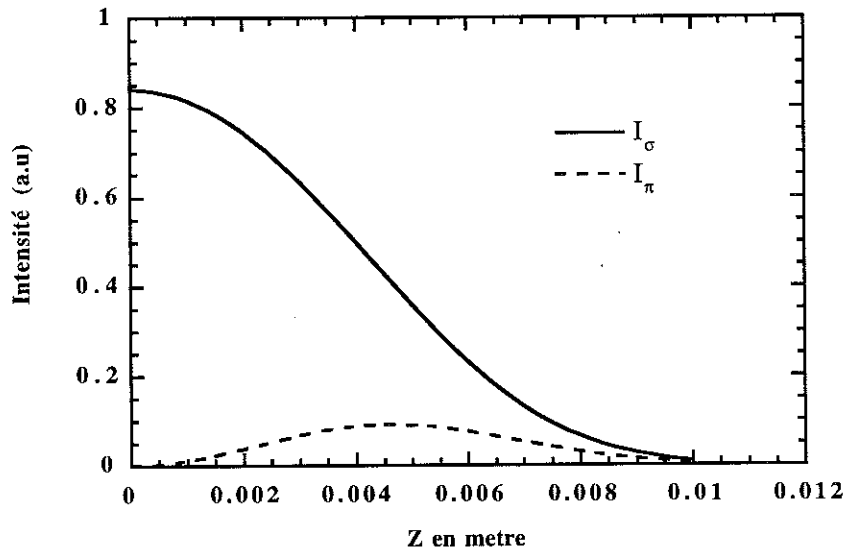


Figure 2.10 : Variation de l'intensité du faisceau X pour les polarisations perpendiculaire (π) et parallèle (σ) à l'orbite synchrotron calculé pour la ligne SB3 (SACO) à 852 eV.

Ces expressions permettent de calculer les propriétés de flux et de polarisation du rayonnement émis par un aimant de courbure (voir annexe 2 pour plus de détails), et notamment la variation de l'intensité du faisceau pour chacun des états de polarisation, en fonction du déplacement vertical par rapport à l'orbite moyenne (Figure 2.10). On notera que I_{π} s'annule dans le plan de l'orbite ce qui donne une polarisation linéaire dans ce plan. Hors du plan, I_{σ} et I_{π}

sont déphasées de $\pi/2$ (équation II.33). Le rayonnement possède donc une polarisation elliptique, d'hélicité gauche (+) ou droite (-). Le vecteur de polarisation s'écrit : $\mathbf{e} = \mathbf{e}_\sigma \pm i\mathbf{e}_\pi$.

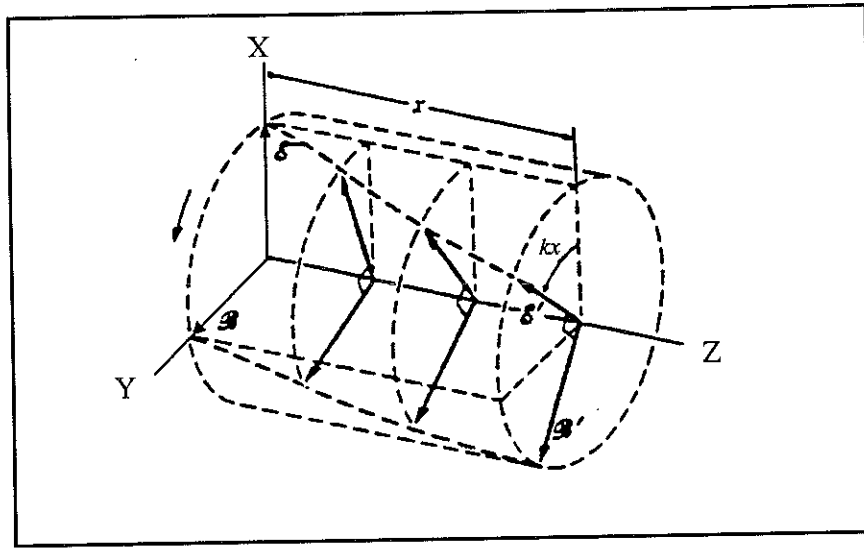


Figure 2.11 : Rotation des champs électrique et magnétique pour un rayonnement électromagnétique ayant une polarisation circulaire gauche

On définit les taux de polarisation circulaire et linéaire caractérisant l'onde électromagnétique par :

$$\begin{aligned} \tau_l &= \frac{A_\sigma^2 - A_\pi^2}{A_\sigma^2 + A_\pi^2} \\ \tau_c &= \frac{A_+^2 - A_-^2}{A_+^2 + A_-^2} = \frac{2A_\sigma A_\pi}{A_\sigma^2 + A_\pi^2} \end{aligned} \quad [\text{II.34}]$$

A_σ, A_π : amplitude pour chacun des états de polarisation linéaire σ et π

A_+, A_- : amplitude pour chacun des états de polarisation circulaire + (gauche) et - (droit)

Remarque :

La notation σ, π est ici différente de celle utilisée pour la description des états de polarisation d'une onde par rapport au plan d'incidence de l'onde. σ et π se réfèrent ici à l'orbite de l'anneau synchrotron (σ dans le plan de l'orbite, π perpendiculaire à ce plan).

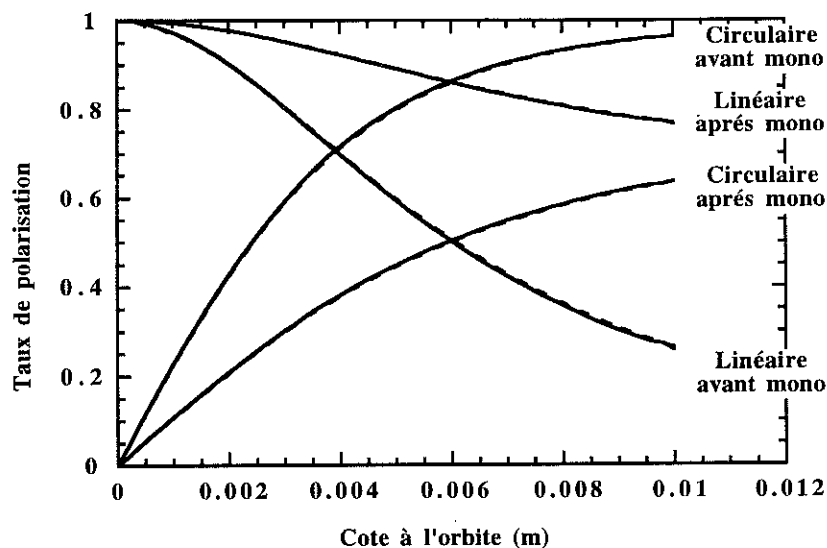


Figure 2.12: Variation des taux de polarisation linéaire et circulaire calculés pour la ligne SB3 à 852 eV.

La figure 2.12 montre les variations des taux de polarisation linéaire et circulaire, calculées en fonction de la cote par rapport à l'orbite, pour la station expérimentale SB3 à SACO et à 852 eV. La comparaison des figure (2.10) et (2.12) montre le compromis à choisir entre un taux de polarisation circulaire élevé, et la perte de flux conséquente au déplacement hors du plan de l'orbite. Un taux de polarisation circulaire et un flux raisonnable sont obtenus à une côte où le paramètre $I\tau_c^2$ est maximal (vers 4 mm pour le cas de SB3 à SACO, ce qui correspond à une inclinaison de 0.48 ± 0.03 mrad par rapport à l'horizontale, pour un taux de polarisation circulaire de l'ordre de 50 %). Les variations des taux de polarisation, avant et après monochromatisation du faisceau par 2 réflexions de Bragg sur un cristal de Beryl, qui sont présentées figure 2.12, s'expliquent par le renforcement de la polarisation horizontale (σ) par les deux réflexions du faisceau sur le monochromateur d'axe horizontal. En conséquence le taux de polarisation linéaire est renforcé, alors que le taux circulaire diminue. L'effet est particulièrement important pour des angles $\theta_{\text{mono}} \approx 45^\circ$.

6. / Eléments et seuils accessibles en XRMS

Dans le cadre des études de dichroïsme magnétique circulaire des rayons X, les seuils des éléments magnétiques les plus étudiés sont les seuils $L_{II, III}$ et K de métaux de transition ainsi que

les seuils $M_{IV, V}$ et $L_{II, III}$ de terres rares. Quelques études ont également été conduites sur les éléments métalliques 4d et 5d afin d'étudier la polarisation magnétique induite sur les bandes au niveau de Fermi pour ces composés. On pourra se référer à la thèse de J.P. Schillé présentant une synthèse de la plupart des travaux effectués en dichroïsme magnétique avant 1994 [40].

Cependant, pour ce qui est de la XRMS, on note peu d'études sur les métaux de transitions, d'une part du fait de la grande longueur d'onde des rayons X aux seuils L qui est peu favorable pour la diffraction, et d'autre part à cause du très faible signal aux seuils K. Le tableau II.2 présente les principaux seuils d'absorption électroniques pour lesquels une étude XRMS a été effectuée, ou peut être effectuée.

Métal de Transition	Rayons X-Mous		Rayons X-durs	
Transition 3d	$2p_{1/2, 3/2} \rightarrow 3d$	$L_{II, III}$ (400 - 900 eV)	$1s \rightarrow 4p$	K (4 - 9 keV)
	$3p_{1/2, 3/2} \rightarrow 3d$	$M_{II, III}$ (30 - 100 eV)		
Métal de Transition 4d	$3p_{1/2, 3/2} \rightarrow 4d$	$M_{II, III}$ (300 - 800 eV)	$2p_{1/2, 3/2} \rightarrow 4d$	$L_{II, III}$ (2 - 4 keV)
Métal de Transition 5d			$2p_{1/2, 3/2} \rightarrow 5d$	$L_{II, III}$ (10 - 14 keV)
Métal de Terre Rare (4f)	$3d_{3/2, 5/2} \rightarrow 4f$	$M_{IV, V}$ (800 - 1600 eV)	$2p_{1/2, 3/2} \rightarrow 5d$	$L_{II, III}$ (5 - 10 keV)
Actinides (5f)			$3d_{3/2, 5/2} \rightarrow 5f$	$M_{IV, V}$ (3 - 5 keV)

Tableau II.2 : *Eléments et seuils électronique pour lesquels une étude de XRMS est possible et énergies des seuils associés.*

Bien que les métaux 4d soient mentionnés dans le tableau II.2, aucune expérience, à notre connaissance n'a été réalisée tant aux seuils L que M.

Seules deux études ont été menées au seuil K de métaux de transition : au seuil du Ni dans un monocristal (Figure 2.13), ce qui a été la première mise en évidence de la XRMS par Namikawa *et al* [17], ainsi qu'au seuil du Fer dans Fe_2O_3 [41]. On note également une étude de la rotation Faraday au seuil K du Fe [42] donnant une comparaison directe avec le MCXD par transformée de Kramers-Kronig.

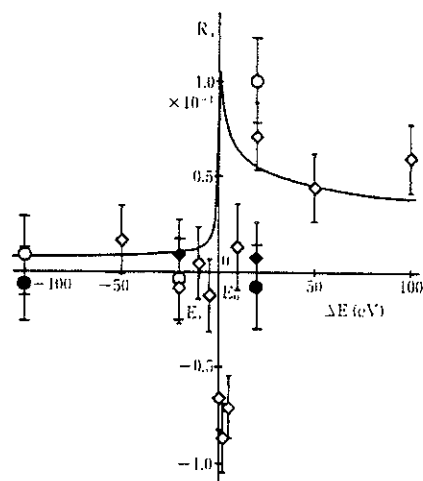


Figure 2.13 : Rapport d'asymétrie mesuré au seuil K sur la raie de Bragg 220 d'un cristal de Ni.
(d'après Namikawa et al [17])

La plupart des études ont été réalisées aux seuils $L_{II,III}$ de terre rares. Les éléments suivants ont été étudiés : Nd [43, 44], Sm, Gd [45], Dy [46, 47], Ho [5, 6, 9, 10, 48], Er [49], Tm [50]. La thématique la plus abordée pour cette série d'éléments est l'étude des ordres magnétiques s'installant à basse température : structure spirale antiferromagnétique (dans le plan de base), structure à spirale conique selon l'axe c, structure modulée selon l'axe c [21]. On note également l'étude des contributions quadrupolaires au seuil L_{II} et L_{III} du Nd dans $Nd_2Fe_{14}B$ [51].

Les autres seuils étudiés sont surtout les seuils $M_{IV,V}$ d'actinides se situant dans la gamme 3-5 keV qui autorise encore des études de diffraction. Les deux éléments les plus étudiés sont d'une part l'Uranium [52-56], et d'autre part le Neptunium [57, 58]. Pour cette série d'éléments, les études se sont plus particulièrement focalisées sur l'évolution de l'ordre antiferromagnétique à basse température en regard de l'ordre supraconducteur. Tout comme les premières expériences aux seuils L de terres rares, celles-ci ont permis de valider le modèle d'oscillateur dipolaire électrique (Figure 2.14) pour la résonance et de rendre compte de sa très grande amplitude.

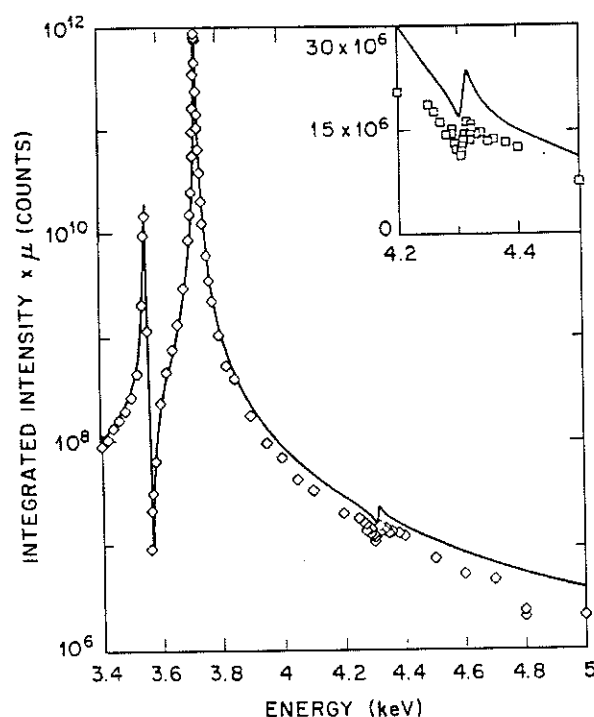


Figure 2.14 : Dépendance en énergie de la raie $(0,0,5/2)$ du composé UAs aux seuils M_{IV} , M_V et M_{III} de l'Uranium. La ligne pleine représente un affinement des données à partir du modèle d'oscillateurs dipolaires décrit précédemment (d'après D.B. Mc Whan et al [53])

La seule expérience réalisée, à notre connaissance sur un élément non magnétique, est une étude sur un cristal de CoPt, au seuil L_{II} du Pt, montrant la polarisation induite sur le platine par les atomes de Co avec une amplitude de résonance magnétique de $0.8 r_o$ [24].

Soulignons enfin les travaux récents de XRMS appliquée à l'étude du magnétisme de la surface de l'échantillon. Une approche théorique [59] a montré la possibilité de mesurer la composante magnétique résonante présente dans les tiges de troncature signature de la surface. Deux études expérimentales ont été alors réalisées simultanément à l'ESRF. D'une part, une étude de la surface d'un cristal cfc de UO_2 a permis de mesurer les tiges de troncature propre à l'ordre antiferromagnétique, et également de mettre en évidence un comportement différent à la transition magnétique (T_N) pour les atomes de surface et pour le massif [60]. D'autre part, une étude quantitative de la surface d'un cristal de Co_3Pt a montré une réduction d'un facteur $1/2$ de l'amplitude magnétique résonante sur les atomes de surface par rapport au massif [61]. Ceci montre la sensibilité obtenue dans de telles expériences, pour peu que l'on utilise une source de rayonnement très brillante.

Toutes les études citées ont été réalisées en utilisant un faisceau polarisé linéairement, issu du rayonnement synchrotron. La plupart du temps une analyse de la polarisation du faisceau diffracté a été réalisée afin de séparer les deux composantes σ et π .

A l'opposé, dans la gamme des rayons X-mous, peu d'études ont été menées en XRMS malgré le grand nombre de travaux en dichroïsme circulaire des rayons X. Un article théorique de J.L. Erskine et E.A. Stern [62] a montré la possibilité d'un effet magneto-optique important aux seuils $M_{II,III}$ du Ni. Cet article fondateur est considéré comme un des points de départ pour le développement du dichroïsme circulaire magnétique, bien que peu d'études aient été conduites aux seuils $M_{II,III}$ de métaux de transition. Seule une expérience de réflectivité des rayons X aux seuils $M_{II,III}$ du Ni a été réalisée [63], montrant un effet magnéto-optique important (avec un rapport d'asymétrie mesuré de l'ordre de 24 % selon notre définition), confirmant les prédictions de J.L.Erskine et E.A.Stern (Figure 2.15).

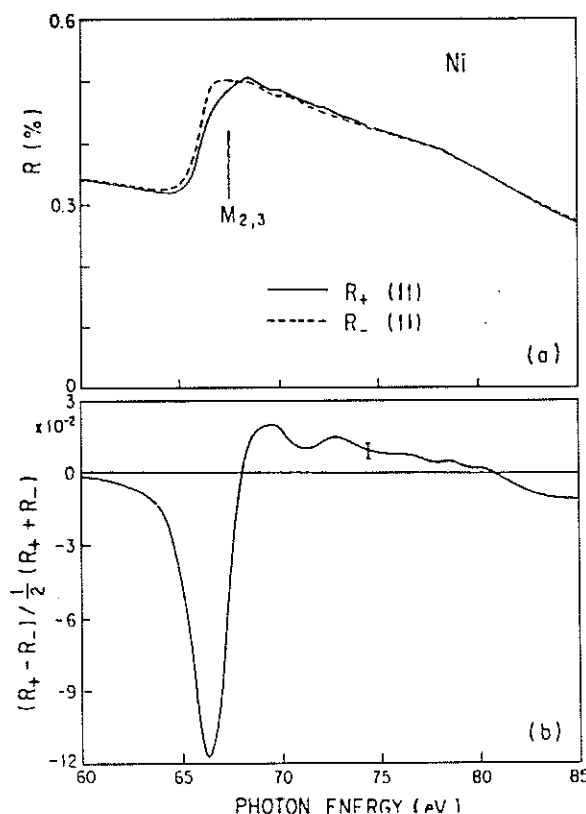


Figure 2.15 : Réflectivité magnétique d'un cristal de Ni aux seuils $M_{II,III}$.

(d'après Koide et al [63])

Au début de notre travail, la seule référence existante pour une étude quantitative en X-mous était celle de C.C Kao *et al* [64] qui ont mesuré et analysé grâce au formalisme lorentzien de Hannon, le spectre de réflectivité en énergie d'une couche de Fer (ZnSe/Fe/GaAs) aux seuils L_{II} et L_{III} du Fer (cf Figure 2.16).

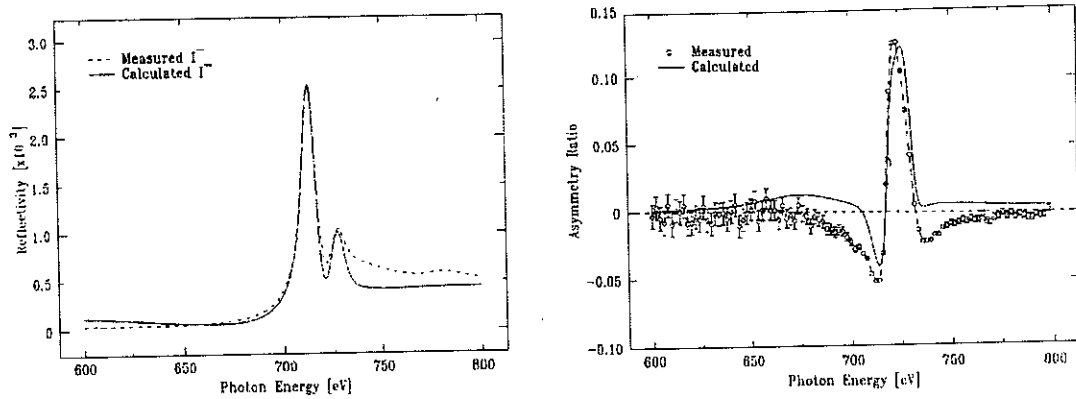


Figure 2.16 : Réflectivité magnétique résonante d'une couche de Fer encapsulée aux seuils L_{II} et L_{III} . (d'après C.C. Kao *et al* [64])

Cette approche a permis à ces auteurs de déterminer les paramètres de l'équation II.12 : $n_e = 1$, $n_h = 4$ et $\Delta = 1.5$ eV, en relatif accord avec les valeurs connues ($n_e = 2.05$, $n_h = 3.39$ [65, 66], $\Delta = 1.3 - 2.3$ eV). Cependant, l'affinement de ces paramètres ne permet pas de reproduire de manière totalement satisfaisante le spectre expérimental. Deux raisons peuvent être avancées pour expliquer cet écart : d'une part l'approche lorentzienne utilisée pour décrire la dépendance en énergie du dichroïsme et de la résonance de f'' ne tient pas compte des asymétries de la résonance aux seuils L de métaux 3d liées aux corrélations électroniques et à la forme de la densité d'état ; d'autre part l'approche suivie pour le calcul de la réflectivité est basée sur celle de Parratt [67] et néglige donc l'aspect tensoriel nécessaire pour la description de la réflectivité magnétique (voir chapitre V).

Notons également une tentative récente d'étude des corrélations magnétiques latérales aux seuils L_{II} et L_{III} du Co dans des couches de Co et multicouches Cu/Co [68], réalisée en mesurant la composante magnétique de la diffusion diffuse hors spéculaire.

	M	L	K
Métal de Transition 3d	0.25	0.8	0.001
Métal de Transition 5d		0.1	
Métal de Terre Rare (4f)	0.1	0.1	

***Tableau II.3** : Valeurs maximales observées pour le rapport d'asymétrie magnétique associé à une réflexion de Bragg à différents seuils d'absorption*

Au travers de ces divers exemples, il est possible de tirer quelques conclusions quand à l'amplitude des effets de résonance magnétique observables selon les seuils (Tableau II.3). D'une façon générale, les effets apparaissent les plus importants aux seuils L et M, du fait du fort couplage spin-orbite sur ces niveaux.

Références bibliographiques du Chapitre II:

- [1] C. Noguera dans "Ecole de Mittelwihr 1989" (eds. E. Beaurepaire, B. Carrière, J. P. Kappler, 1989)
- [2] O. Klein, Y. Nishina, Zeitschrift für Physik, **52** (1929) 853.
- [3] M. Blume, Journal of Applied Physics, **57** (1985) 3615.
- [4] M. Blume, D. Gibbs, Physical Review B, **37** (1988) 1779.
- [5] D. Gibbs, D.R. Harshman, E.D. Isaacs, D.B. Mc Whan, D. Mills, C. Vettier, Physical Review Letters, **61** (1988) 1241.
- [6] D. Gibbs, G. Grubel, D.R. Harshman, E.D. Isaacs, D.B. Mc Whan, D. Mills, C. Vettier, Physical Review B, **43** (1991) 5663.
- [7] P.M. Platzman, N. Tzoar, Physical Review B, **2** (1970) 3556.
- [8] F. De Bergevin, M. Brunel, Physics Letters, **39A** (1972) 141.
- [9] D. Gibbs, D.E. Moncton, K.L. D'Amico, J. Bohr, B.H. Grier, Physical Review Letters, **55** (1985) 234.
- [10] D. Gibbs, D.E. Moncton, K.L. D'Amico, Journal of Applied Physics, **57** (1985) 3619.
- [11] C. Vettier dans "Ecole de Mittelwihr 1989" (eds. E. Beaurepaire, B. Carrière, J. P. Kappler, 1989) 387.
- [12] M. Brunel, F. De Bergevin, Acta Crystallographica A, **37** (1981) 324.
- [13] J.M. Tonnerre dans "Magnetism and Synchrotron Radiation" (eds. E. Beaurepaire, B. Carrière, J.-P. Kappler, Les Editions de Physique, Les Ulis, 1997) 245.
- [14] M. Brunel, F. De Bergevin dans "Handbook on Synchrotron Radiation" (eds. G. Brown, D. E. Moncton, Elsevier Science, Amsterdam, 1991) 535.
- [15] F. De Bergevin, M. Brunel, Acta Crystallographica A, **37** (1981) 314.
- [16] M. Blume dans "Resonant Anomalous X-ray Scattering, Theory and Applications" (eds. G. Materlik, C. J. Sparks, K. Fischer, North-Holland, Amsterdam, 1994)
- [17] K. Namikawa, M. Ando, T. Nakajima, H. Kawata, Journal of the Physical Society of Japan, **54** (1985) 4099.
- [18] J.P. Hannon, G.T. Trammell, M. Blume, D. Gibbs, Physical Review Letters, **61** (1988) 1245.
- [19] J.P. Hannon, G.T. Trammell, M. Blume, D. Gibbs, Physical Review Letters, **62** (1989) 2644.
- [20] P. Carra, M. Altarelli, F. De Bergevin, Physical Review B, **40** (1989) 7324.
- [21] J.P. Hill, D.F. Mc Morrow, Acta Crystallographica A, **52** (1996) 236.
- [22] P. Carra, B.T. Thole, M. Altarelli, X. Wang, Physical Review Letters, **70** (1993) 694.

- [23] B.T. Thole, P. Carra, F. Sette, G. Van Der Laan, *Physical Review B*, **68** (1992) 1943.
- [24] F. De Bergevin, M. Brunel, R.M. Galera, C. Vettier, S. Lefebvre, M. Bessière, *Physical Review B*, **46** (1992) 10772.
- [25] J.S. Toll, *Physical Review*, **104** (1956) 1760.
- [26] P. Dreier, P. Rabe, W. Malzfeldt, W. Niemann, *Journal of Physics C*, **17** (1983) 3123.
- [27] D.T. Cromer, *Acta Crystallographica*, **18** (1965) 17.
- [28] D.T. Cromer, J.B. Mann, *Acta Crystallographica A*, **24** (1968) 321.
- [29] S. Sasaki, Anomalous scattering factor for synchrotron radiation users calculated using Cromer and Liberman's method (National. Lab. for High Energy Physics, 1984).
- [30] B.L. Henke, P. Lee, T.J. Tanaka, R.L. Shimabukuro, B.K. Fujikawa, *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, **27** (1982) 1.
- [31] J.J. Hoyt, D. De Fontaine, W.K. Warburton, *Journal of Applied Crystallography*, **17** (1984) 344.
- [32] L.K. Templeton, D.H. Templeton, *Journal of Applied Crystallography*, **21** (1988) 558.
- [33] J. Petiau dans "Rayonnement Synchrotron Polarisé, Electrons Polarisés et Magnétisme" (eds. E. Beaurepaire, B. Carrière, J. P. Kappler, L'Ecole de Printemps, 1989)
- [34] J. Röhler, *Handbook on the physics and chemistry of rare earth* (Elsevier Science Publisher, 1987)
- [35] L. Kissel, R.H. Pratt, *Acta Crystallographica A*, **46** (1990) 170.
- [36] R. James, *The Optical Principles of the Diffraction of X-Rays* (Cornell University Press, Ithaca, 1965)
- [37] E. Fullerton, I.K. Schuller, H. Vanderstroeten, Y. Bruynseraede, *Physical Review B*, **45** (1992) 9292.
- [38] Y. Fujii dans "Metallic Superlattices" (eds. t. Shinjo, T. Takada, Elsevier, Amsterdam, 1987) 33.
- [39] D. Raoux dans "Neutron and synchrotron Radiation for Condensed Matter Studies" (eds. J. Baruchel, J. L. Hodeau, M. S. Lehmann, J. R. Regnard, C. Schlenker, Les éditions de Physique. Springer - Verlag, Les Ulis, 1993) 37.
- [40] J.P. Schillé, *Dichroïsme Magnétique dans le domaine des Rayons X : Application à l'Etude du Magnétisme de composés de Terre-Rares* (Strasbourg I) 1994.
- [41] K.D. Finkelstein, Q. Shen, S. Shastri, *Physical Review Letters*, **69** (1992) 1612.
- [42] D.B. Mac Whan, J.B. Hastings, C.-C. Kao, D.P. Siddons, *Review of Scientific Instruments*, **63** (1992) 1404.
- [43] A. Zheludev, J.P. Hill, D.J. Buttrey, *Physical Review B*, **54** (1996) 7216.
- [44] J.P. Hill, A. Vigliante, D. Gibbs, J.L. Peng, R.L. Greene, *Physical Review B*, **52** (1995) 6575.
- [45] R.M. Galera, D.P. Osterman, J.D. Axe, *Journal of Applied Physics*, **63** (1988) 3580.

- [46] K. Dumesnil, C. Dufour, M. Vergnat, G. Marchal, P. Mangin, M. Hennion, W.T. Lee, H. Kaiser, J.J. Rhyne, *Physical Review B*, **49** (1994) 12274.
- [47] E.D. Isaacs, D.B. Mac Whan, D.P. Siddons, J.B. Hastings, D. Gibbs, *Physical Review B*, **40** (1989) 9336.
- [48] J. Bohr, D. Gibbs, D.E. Moncton, K.L. D'Amico, *Physica A*, **140** (1986) 349.
- [49] D. Gibbs, J. Bohr, J.D. Axe, D.E. Moncton, K.L. D'Amico, *Physical Review B*, **34** (1986) 8182.
- [50] J. Bohr, D. Gibbs, K. Huang, *Physical Review B*, **42** (1990) 4322.
- [51] F. Bartolomé, J.M. Tonnerre, D. Raoux, J. Chaboy, L.M. Garcia, J. Bartolomé, H. Maruyama, A. Marcelli, F. Rieutord, R. Simon, *Journal de Physique IV*, **7** (1997) C2—437.
- [52] C.C. Tang, W.G. Stirling, G.H. Lander, D. Gibbs, W. Herzog, P. Carra, B.T. Thole, K. Mattenberger, O. Vogt, *Physical Review B*, **46** (1992) 5287.
- [53] D.B. Mac Whan, C. Vettier, E.D. Issacs, G.E. Ice, D.P. Siddons, J.B. Hastings, C. Peters, O. Vogt, *Physical Review B*, **42** (1990) 6007.
- [54] E.D. Isaacs, D.B. Mac Whan, C. Peters, G.E. Ice, D.P. Siddons, J.B. Hastings, C. Vettier, O. Vogt, *Physical Review Letters*, **62** (1989) 1671.
- [55] B.D. Gaulin, D. Gibbs, E.D. Isaacs, J.G. Lussier, J.N. reimers, A. Schröder, T. Taillefer, P. Zschack, *Physical Review Letters*, **73** (1994) 890.
- [56] E.D. Isaacs, D.B. Mac Whan, R.N. Kleiman, D.J. Bishop, G.E. Ice, P. Zschack, B.D. Gaulin, T.E. Mason, J.D. Garrett, W.J.L. Buyers, *Physical Review Letters*, **65** (1990) 3185.
- [57] S. Langridge, W.G. Stirling, G.H. Lander, J. Rebizant, *Physical Review B*, **49** (1994) 12010.
- [58] S. Langridge, W.G. Stirling, G.H. Lander, J. Rebizant, *Physical Review B*, **49** (1994) 12022.
- [59] A. Fasolino, P. Carra, M. Altarelli, *Physical review B*, **47** (1993) 3877.
- [60] G.M. Watson, D. Gibbs, G.H. Landers, B.D. Gaulin, L.E. Berman, H. Matzke, W. Ellis, *Physical review Letters*, **77** (1996) 751.
- [61] S. Ferrer, P. Fajardo, F. De Begevin, J. Alvarez, X. Torrelles, H.A. Van Der Vegt, V.H. Etgens, *Physical review Letters*, **77** (1996) 747.
- [62] J.L. Erskine, E.A. Stern, *Physical Review B*, **12** (1975) 5016.
- [63] T. Koide, T. Shidara, H. Fukutani, K. Yamaguchi, A. Fujimori, S. Kimura, *Physical Review B*, **44** (1991) 4697.
- [64] C.C. Kao, J.B. Hastings, E.D. Johnson, D.P. Siddons, G.C. Smith, G.A. Prinz, *Physical Review Letters*, **65** (1990) 373.
- [65] R. Wu, D. Wang, A.J. Freeman, *Physical Review Letters*, **71** (1993) 3581.
- [66] R. Wu, A.J. Freeman, *Physical Review Letters*, **73** (1994) 1944.

[67] L.G. Parratt, Physical Review, **95** (1954) 359.

[68] J.F. MacKay, C. Teichert, D.E. Savage, M.G. Lagally, Physical Review Letters, **77** (1996) 3925.

CHAPITRE III

**Etude de la Diffraction Magnétique Résonante
dans la gamme des Rayons-X mous.**

1. / Introduction	47
2. / Géométrie longitudinale : polarisation circulaire	49
2.1 / L'échantillon	49
2.2 / L'expérience en géométrie longitudinale	51
2.3 / Expression du Rapport d'Asymétrie dans cette géométrie	54
2.4 / Détermination des facteurs anomaux	56
2.4.1 / Détermination de f' , partie réelle du facteur de diffusion anomal	57
2.4.2 / Détermination de f'' , partie imaginaire du facteur de diffusion anomal	60
2.4.3 / Comparaison entre les valeurs de f' (f'') et la transformée par Kramers-Kronig de f'' (f')	64
2.4.4 / Comparaison avec d'autres déterminations de f	66
2.5 / Détermination du taux de polarisation circulaire	71
2.6 / Affinement Lorentzien	73
2.7 / Méthode Auto-cohérente	75
2.8 / Applications des règles de sommes	79
2.9 / Conclusions	81
3. / Géométrie transverse : polarisation linéaire	83
3.1 / Expression du Rapport d'Asymétrie - Paramètre d'importance	83
3.2. Multicouche Cu/Co : influence des plans morts	85
3.2.1 : Expérience et Echantillon	85
3.2.2 : Mesure de Rapport d'asymétrie et simulation	87
3.2.3 : Conclusion	91
3.3 / Multicouche Ag/NiFe : Séparation des contributions dans le cas d'un alliage	92
3.3.1 : Expérience et Echantillon	92
3.3.2 : Mesure du Rapport d'Asymétrie et simulation	93
3.3.3 : Etude X.A.F.S. au seuil K du Ni et du Fe dans Ag/NiFe	99
3.3.3.1. / Introduction :	99
3.3.3.2. / Rappel sur le X.A.S.	100
3.3.3.3 / Formalisme de l'E.X.A.F.S.	102
3.3.3.4 / Méthode d'analyse des données	104
3.3.3.5. / Mesure d'absorption X	107
3.3.3.6. / Résultats et discussion	108
3.3.3.7. / Modèle structural simple	115
3.3.3.8. / Conclusion sur les expériences d'EXAFS	117
3.3.4 : Conclusion sur la multicouche Ag/NiFe	118
4. / Couplages antiferromagnétiques	121
4.1 / Introduction	121
4.2 / Géométrie et montages expérimentaux	121
4.3 / Multicouche Cu/Co	124
4.4 / Multicouche Ag/Ni	129
4.5 / Multicouche Ag/NiFe : séparation des éléments - variation avec le champ	133
4.6 / Conclusion	140
5. / Conclusions générales	142
Références Bibliographiques du Chapitre III	144

CHAPITRE III

Etude de la Diffraction Magnétique Résonante dans la gamme des Rayons-X mous. Application aux multicouches.

1. / Introduction

Afin d'étudier la diffraction magnétique résonante dans la gamme des Rayons-X mous ($5 \text{ \AA}$ - $40 \text{ \AA}$ en longueur d'onde, soit 500 - 2500 eV en énergie), il est nécessaire d'utiliser un cristal, d'une part permettant de diffracter de telles longueurs d'ondes, et contenant d'autre part des éléments métalliques magnétiques qui présentent un seuil d'absorption électronique dans cette gamme d'énergie. Ce seuil doit en outre être bien choisi pour donner lieu à un effet de diffusion magnétique résonante comme il a été décrit au chapitre II (typiquement le cas pour les seuils $L_{II,III}$ de métaux de transition et $M_{IV,V}$ pour les métaux de terres rares). La nature présente peu de cristaux inorganiques de grande période. Par contre, les multicouches ou superréseaux sont bien adaptés. Ils présentent en effet des périodes de répétition pouvant être accordées à la gamme de longueur d'onde utilisée (typiquement de l'ordre de quelques dizaines d'angström).

De plus, les progrès relativement récents dans les techniques de dépôt de multicouches métalliques, fournissent des "cristaux" unidimensionnels présentant de bonnes qualités structurales. Enfin, les multicouches permettent l'utilisation d'éléments 3d tels que le Fe, Co, Ni qui sont des éléments de choix pour les propriétés magnétiques, et dont les seuils d'absorption électronique L_{II} et L_{III} se situent dans la gamme des X-mous (entre 750 eV et 900 eV).

Un des intérêts des structures artificielles alternant des couches non-magnétiques et des couches minces incorporant des éléments magnétiques est de permettre l'établissement de couplage magnétique entre ces dernières. Du fait des bonnes qualités structurales obtenues, des propriétés de couplages macroscopiques variés ont été observées [1] : antiferromagnétiques, hélimagnétiques [2], voire même des couplages plus complexes comme dans le cas d'Ho/Y.

Les premières tentatives de croissance, dans le cas des métaux 3d, ont été réalisées sur le système Cu/Ni [3]. Par la suite, de nombreux systèmes multicouches à base de métaux 3d et de métaux nobles ont été synthétisés, pour leurs propriétés magnétiques ou de transport : magnétorésistance géante, couplage magnétique, aimantation perpendiculaire, anisotropie magnétique. Elles ont fait l'objet de nombreuses études magnétiques et structurales.

Une des problématiques importantes est l'étude des couplages oscillants qui peuvent s'instaurer entre deux couches ferromagnétiques (Fe, Co, Ni), séparées par une couche constituée d'un élément non-magnétique, souvent un métal noble (Cu, Ag, Au). La première observation d'un tel couplage a été effectuée sur un superréseau Fe(001)/Cr(001) par Baibich *et al* [4], en enregistrant l'évolution des courbes d'aimantation en fonction de l'épaisseur de la couche de Cr. Depuis, de nombreux systèmes ont montré la même caractéristique de couplage oscillant antiferromagnétique ou ferromagnétique, notamment les couches de Co/Cu, Ag/Ni et Ag/NiFe auxquels nous nous sommes intéressés.

Un modèle théorique a été développé par Bruno *et al* [5]. Il considère un couplage de type Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) modifié. Cette interaction conduit à un comportement oscillatoire du couplage entre couches ferromagnétiques en fonction de l'épaisseur de la couche non-magnétique intercalée. Dans les couches minces et les multicouches la période de cette oscillation est typiquement de l'ordre de quelques angströms et peut être reliée aux vecteurs d'onde au niveau de Fermi des électrons de conduction dans la couche espaceur non magnétique.

Dans ce chapitre, nous montrons les potentialités de la diffraction magnétique résonante des rayons X mous par rapport à l'étude des systèmes multicouches magnétiques. Les deux premières sections traitent de systèmes multicouches présentant un état de couplage ferromagnétique, et la dernière traite de l'étude des couplages antiferromagnétiques entre couches magnétiques.

2. / Géométrie longitudinale : polarisation circulaire

La première expérience de diffraction magnétique résonante en X-mous que nous avons réalisée [6, 7] utilise une onde électromagnétique polarisée elliptiquement. Cette "difficulté" supplémentaire est due au fait qu'aucun diffractomètre fonctionnant sous vide à SACO ne permettait de réaliser des expériences dont le plan de diffraction se situe dans le plan de l'orbite (géométrie la plus simple permettant l'utilisation de rayonnement polarisé linéairement).

2.1 / L'échantillon

L'échantillon choisi est une multicouche Ag/Ni (échantillon AN975F1), pour une étude aux seuils L_{II} et L_{III} du Ni, à respectivement 870.5 eV et 852.9 eV. Ces multicouches présentent, comme nous le verrons par la suite, des propriétés très intéressantes de magnétorésistance [8] et de couplage antiferromagnétique, pour une épaisseur de la couche d'Ag de 11Å. En ce qui concerne ce travail, les caractéristiques importantes de la multicouche choisie sont :

- la période de 28.55 Å bien adaptée pour la gamme des énergies de photons X comprenant les seuils L du Ni : il apparaît un pic de Bragg à $q=0.22 \text{ Å}^{-1}$, soit à un angle de 14.6° pour une énergie de photon de 852 eV.
- l'aimantation des couches de Ni est dans le plan des couches.
- le faible champ à saturation de la multicouche : 600 Gauss suffisent pour la saturer magnétiquement à température ambiante [9] ce qui a permis une étude conjointe des états de couplage ferromagnétique et antiferromagnétique.

La multicouche a été préparée par l'équipe de B. Rodmacq (CEN-Grenoble) par évaporation en alternant les dépôts d'Ag et de Ni, sur un substrat de verre. La température du substrat est maintenue à 100°K pendant la durée du dépôt pour limiter la diffusion atomique. L'épaisseur totale de la multicouche est de 5 µm, ce qui est particulièrement épais (cette multicouche avait été réalisée pour des expériences de diffraction neutronique exigeant une grande épaisseur d'échantillon).

Dans tous les calculs qui suivent, nous avons représenté la multicouche utilisée par un modèle d'empilement parfait. L'échantillon est donc modélisé, de façon classique, par un empilement (généralement selon la direction de croissance [111]) décrit par n_A plans d'atome A

dont la distance interplan est d_A et n_B plans d'atomes B dont la distance est d_B (Figure 3.1). Les atomes B constituent la couche magnétiquement ordonnée (Ni).

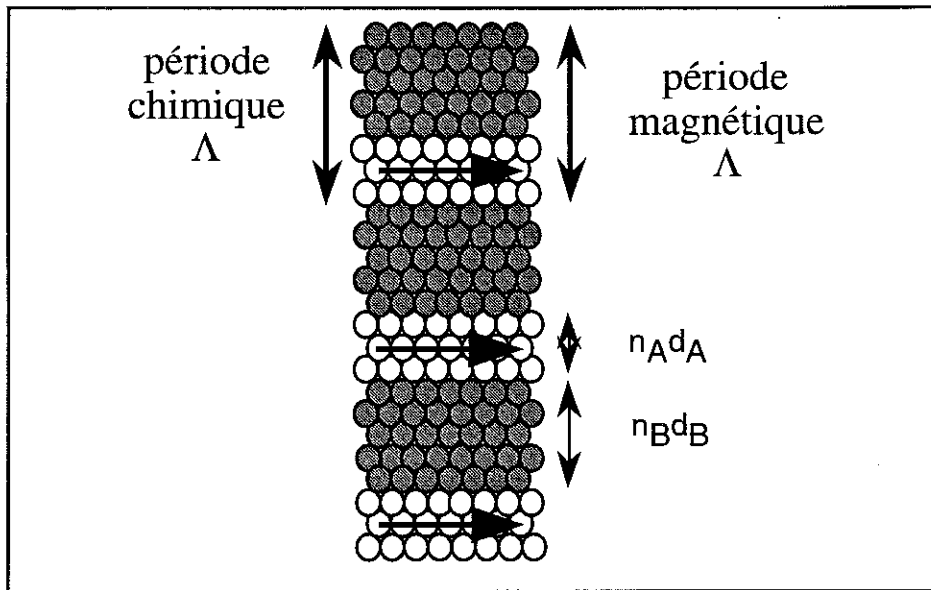


Figure 3.1 : Modèle structural pour une multicouche orientée selon la direction [111], comprenant une couche ferromagnétiquement ordonnée et pour un couplage ferromagnétique entre couche.

Les paramètres structuraux de la multicouche donnés au tableau III.1 sont tirés d'une étude structurale approfondie par rayons X, réalisée sur une série de multicouches Ag/Ni d'épaisseurs variables [10]. Cette étude a montré que les multicouches ainsi préparées sont polycristallines avec une texture (111). Des simulations des diagrammes de diffraction X montrent un bon accord avec les expériences pour des profils de concentrations rectangulaire et des distances interplans (111) légèrement supérieures à celle du massif (tableau III.1).

	d_{111} (Å)	σ (Å ⁻²)	n	e (Å)	d_{111} massif (Å)
Ag	2.377	0.139	4.64	11	2.358
Ni	2.055	0.187	8.52	17.5	2.034

Tableau III.1 : Paramètres structuraux de la multicouche Ag/Ni (Echantillon AN975F1)
où d_{111} est la distance moyenne entre les plans atomiques, σ représente la densité atomique surfacique dans le plan des couches et e l'épaisseur de chacune des sous-couches, n est le nombre de plans atomiques pour chacune des sous-couches.

2.2 / L'expérience en géométrie longitudinale

Les expériences de diffraction magnétique ont été effectuées sur la station expérimentale SB3, à Super ACO (L.U.R.E). Au moment de ces expériences, seuls deux diffractomètres sous vide construits par le CEA-DAM pour des études de réflectométrie de multicouches (celui installé à demeure sur SB3, et celui construit par l'équipe de P. Troussel, pouvant être installé sur la ligne de lumière SU7) pouvaient être utilisés. Tous deux ne permettaient que la diffraction dans le plan vertical (axe du goniomètre perpendiculaire au plan d'incidence). De ces deux, seul celui installé sur la ligne SB3 peut être déplacé aisément verticalement hors du plan de l'orbite de l'anneau de stockage afin de bénéficier d'un taux de polarisation circulaire non nul, d'où le choix de cet appareil.

Les principales composantes de la station expérimentale SB3 sont l'utilisation d'un aimant de courbure pour source de rayonnement, un monochromateur équipé de deux cristaux de Béryl donnant une radiation monochromatique avec une résolution de 0.3 eV à 850 eV, et un diffractomètre sous vide comprenant 7 mouvements (4 translations et 3 rotations) [11]. La détection est assurée par un compteur proportionnel à gaz (Argon-Méthane) couplé à une électronique de comptage. Un tel compteur est très limité en taux de comptage (15000 cps). Par contre il est sans bruit du fait du mode de fonctionnement en comptage de photons.

Pour réaliser cette expérience le support échantillon a été modifié pour recevoir un aimant permanent SmCo_5 monté sur une table de rotation afin de saturer ferromagnétiquement la multicouche. L'aimantation de l'échantillon peut ainsi être tournée dans le plan de l'échantillon (angle ϕ) par rotation de l'aimant (Figure 3.2). L'intensité du champ appliqué est fixée en ajustant la distance aimant - échantillon. Un champ maximum de 600 Gauss peut être obtenu dans les conditions expérimentales, permettant le passage des faisceaux X incident et réfléchi.

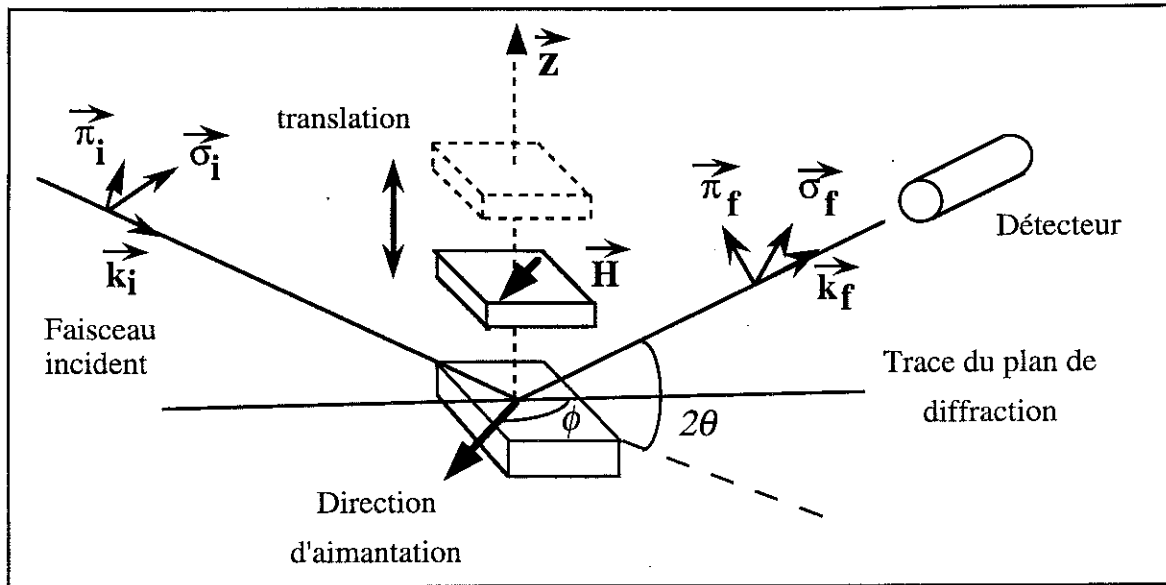


Figure 3.2 : Géométrie de diffraction dans le cas longitudinal.
Le champ est appliqué selon la direction donnée par l'angle ϕ .
Le faisceau est polarisé elliptiquement.

La figure 3.3 montre la forme des pics de Bragg du premier ordre de la multicouche mesuré à diverses énergies au voisinage du seuil L_{III} de Ni (853 eV). On constate de très fortes variations d'intensité et de largeur des raies reliées à la forte absorption par la raie blanche au seuil L_{III} . On observe aussi un fort déplacement de la position des raies qui reflète des variations fortes d'indice dans cette zone en énergie.

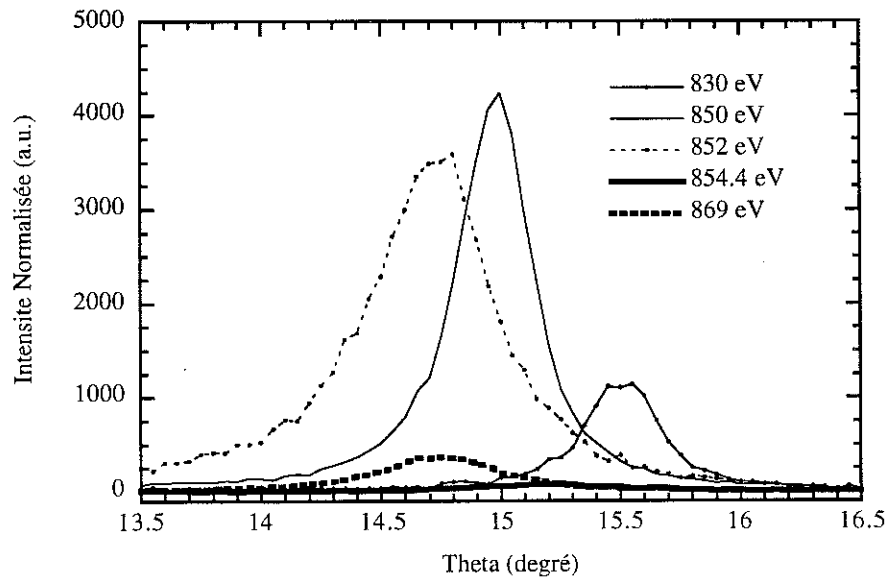


Figure 3.3 : Pic de Bragg de premier ordre de la multicouche Ag/Ni en fonction de l'énergie des photons incidents, pour différentes énergies autour du seuil L_{III} du Ni.

Etant donné les faibles taux de comptage résultant de l'efficacité faible du compteur (absorption dans les fenêtres) et du flux limité de SACO à 850 eV, seules les intensités au maximum du pic de Bragg ont été enregistrées pour les deux orientations du champ magnétiques ($\phi=0^\circ$ et $\phi=180^\circ$). Après chaque changement de l'énergie du photon incident un balayage angulaire (θ , 2θ) rapide est effectué pour s'assurer que le goniomètre est bien positionné au maximum du pic de Bragg. Les intensités I_+ et I_- obtenues en renversant l'aimantation diffèrent de quelques dizaines de pourcents à la résonance L_{III} . Pour ces mesures l'aimantation est dans le plan de diffraction ($\phi=0$). L'effet de diffusion sensible au magnétisme est mis en lumière en calculant le rapport d'asymétrie, $R_a = (I_+ - I_-)/(I_+ + I_-)$ dont les variations avec l'énergie des photons sont montrées sur la figure 3.4. Les barres d'erreurs sont fournies par l'écart statistique sur plusieurs mesures. Deux séries de mesures ont été effectuées, l'une au dessus du plan de l'orbite à environ +4 mm, l'autre en dessous à environ -4 mm. Elles présentent des variations de signe opposé, comme attendu. La courbe enregistrée à "+4 mm" comporte peu de points de mesure, et constitue surtout une expérience de contrôle pour caractériser l'état de polarisation du faisceau de rayons X. Cette deuxième mesure servira essentiellement pour la calibration de la cote verticale du goniomètre afin de déterminer le taux de polarisation circulaire du faisceau incident (voir §2.5). Le fait que les deux signaux de R_a mesurés au dessus et au dessous de l'orbite synchrotron n'ont pas la même amplitude en valeur absolue, conduit à conclure que les 2 mesures n'ont pas été effectuées pour des cotes symétriques par rapport au centre de la nappe.

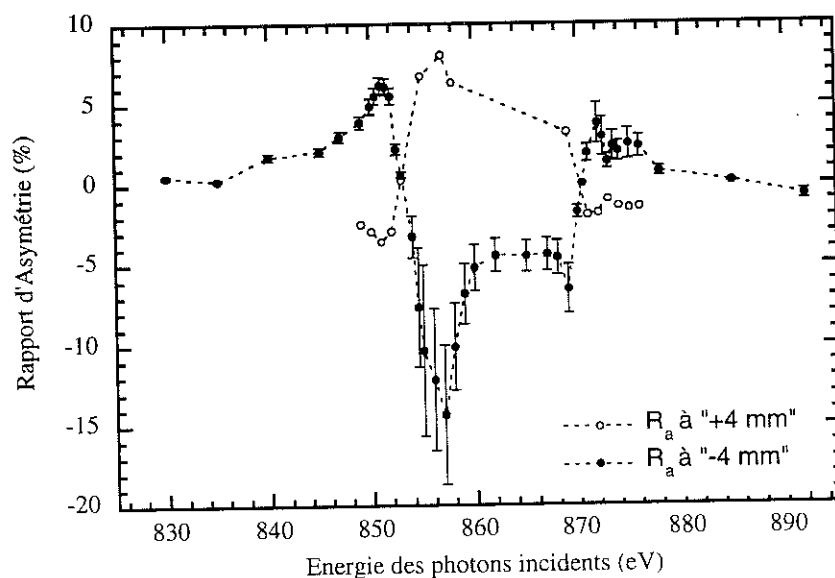


Figure 3.4 : Rapport d'Asymétrie mesuré sur le premier pic de Bragg de la multicouche Ag/Ni au dessus (" +4mm ") et au dessous (" -4mm ") de l'orbite synchrotron, dans une géométrie longitudinale.

Les variations du rapport d'asymétrie au voisinage des deux seuils L_{II} et L_{III} ont des formes compatibles avec celles d'une résonance puisqu'elles s'apparentent à une dérivée de Lorentzienne (ou plus exactement à la partie réelle d'une résonance lorentzienne). On note une inversion de signe entre les deux seuils qui correspond à l'inversion de signe observée en dichroïsme circulaire X. L'amplitude de Ra atteint jusqu'à 15% au delà du seuil L_{III} . Dans cette zone en énergie, la mesure est très bruyante alors que le rapport signal sur bruit est bien meilleur à des énergies plus basses où le rapport d'asymétrie est faible. Ceci est dû à la faiblesse de l'intensité du pic de Bragg au delà du seuil L_{III} (voir figure 3.3). Cette forte augmentation dans le rapport d'asymétrie est donc surtout due à un effet de renormalisation par une intensité faible. En outre, on constate que le Ra s'annule à 853 eV et 871 eV, c'est à dire précisément aux énergies des seuils L_{II} et L_{III} , respectivement.

2.3 / Expression du Rapport d'Asymétrie dans cette géométrie

En partant des expressions données au chapitre II pour l'intensité diffusée en théorie cinématique, le rapport d'asymétrie peut être calculé sous une forme analytique. Le calcul est réalisé en suivant les notations de De Bergevin *et al.* [12].

Le calcul du rapport d'asymétrie inclue celui du facteur de structure de la multicouche. Pour une géométrie utilisant une polarisation elliptique, il faut prendre en compte tous les états de polarisations finals possibles. Les états de polarisation initial et final couplés dans la géométrie de diffraction représentée sur la figure 3.2 et en polarisation circulaire se distribuent comme suit :

$$\text{Diffusion de charge avec règle de sélection } \hat{\mathbf{e}}_f \cdot \hat{\mathbf{e}}_i : \begin{cases} \sigma_i \rightarrow \sigma_f \\ \pi_i \rightarrow \pi_f \end{cases} \quad [\text{III.1}]$$

$$\text{Diffusion magnétique avec règle de sélection } (\hat{\mathbf{e}}_f \times \hat{\mathbf{e}}_i) \cdot \mathbf{z} : \begin{cases} \sigma_i \rightarrow \pi_f \\ \pi_i \rightarrow \sigma_f \text{ et } \pi_f \end{cases} \quad [\text{III.2}]$$

Le troisième terme apparaissant dans le facteur de diffusion, dépendant du carré de l'aimantation est négligé.

Dans la géométrie choisie avec le champ magnétique appliqué longitudinalement ($\phi=0$), la "transition" de l'état de polarisation π_i vers π_f est nulle puisque $\pi_i \times \pi_f$ est perpendiculaire au

plan de diffraction. Le facteur de structure est introduit dans le calcul en séparant les composantes dépendante et non-dépendante du terme magnétique.

$$F = F_r - iF_i = \sum_{\text{plans}} \sigma_j f_{c,j} e^{ikr_j} \quad [\text{III.3}]$$

$$M = M_r - iM_i = \sum_{\substack{\text{plans} \\ \text{"magnetiques"}}} \sigma_{m,j} f_{m,j} e^{ikr_j} \quad [\text{III.4}]$$

où σ_j et $\sigma_{m,j}$ désignent respectivement les densités atomiques surfaciques pour les plans atomiques définissant les couches, pour tous les atomes et pour les atomes magnétiques seuls. $f_{c,j}$ et $f_{m,j}$ désignent les composantes de charge et magnétique résonante du facteur de diffusion atomique.

Avec ces notations, et pour une polarisation circulaire gauche, le rapport d'asymétrie peut s'écrire sous la forme analytique suivante (voir l'annexe 4 pour le développement détaillé du calcul):

$$R_a = \frac{-4 \sqrt{I_\sigma I_\pi} \cos^3(\theta) [F_r M_r + F_i M_i]}{(I_\sigma + I_\pi \cos^2(2\theta)) (F_r^2 + F_i^2) + \cos^2(2\theta) (I_\sigma + I_\pi) (M_r^2 + M_i^2)} \quad [\text{III.5}]$$

où :

θ : angle du pic de Bragg

I_σ, I_π : intensité sur chacun des deux états de polarisation linéaire incidents, selon lesquels on peut décomposer la polarisation elliptique.

Pour une polarisation incidente elliptique droite le rapport d'asymétrie est multiplié par -1. On remarquera que la principale dépendance angulaire du rapport d'asymétrie est en $\cos^3(\theta)$, ce qui implique une faible variation aux petits angles. De plus, en première approximation, pour le seuil L_{III} du Ni, le terme M^2 est, comme nous le verrons plus loin de l'ordre de 8^2 (correspondant à l'amplitude de la résonance magnétique en unité d'électron), alors que le terme F^2 est de l'ordre de 70^2 (correspondant au terme de diffusion classique en unité d'électron), et $\cos(2\theta) \approx 0.7$ (pour des angles de l'ordre de 15°); le terme purement magnétique au dénominateur apparaît donc de l'ordre de 1% au maximum de celui non-magnétique. En première approximation le R_a est donc proportionnel au taux de polarisation circulaire. Enfin on

retrouve dans l'expression de Ra le fait qu'il faille, dans cette géométrie, à la fois I_σ et I_π non nuls donc de la polarisation elliptique pour observer un effet de résonance magnétique.

Afin de pouvoir calculer le rapport d'asymétrie il est donc nécessaire de déterminer les termes d'importances contenus dans l'équation [III.5] :

- les facteurs anomaux de l'élément pour lequel se produit la résonance. Les autres facteurs anomaux sont pris dans des tables.
- le taux de polarisation circulaire du faisceau incident.

2.4 / Détermination des facteurs anomaux

Les facteurs de diffusion atomique ont été tabulés dans le cas de l'atome libre à partir des fonctions de Hartree-Fock [13]. Néanmoins ces facteurs tabulés sont inexacts lorsque l'énergie des photons se situe au voisinage d'une résonance, et il faut alors une détermination expérimentale. Une méthode générale consiste en l'utilisation du théorème optique liant le coefficient d'absorption à la partie imaginaire du facteur de diffusion :

$$\mu(E) = \frac{4\pi\beta}{\lambda} = 2r_0\lambda \frac{N_a\rho}{A} f''(E) \quad [\text{III.6}]$$

ρ est la densité volumique, A est le nombre de masse de l'élément considéré.

La partie réelle f' est obtenue à partir de $f''(E)$ en appliquant les équations de transformation de Kramers-Kronig présentées au chapitre II. Cette méthode largement utilisée nécessite une mesure du coefficient d'absorption linéaire dans le matériau étudié. Ceci s'est avéré être impossible, notamment dans le cas de ces multicouches Ni/Ag épaisses, préparées ex-situ, car elles présentent un état d'oxydation en surface. Lors d'essais de mesure de dichroïsme magnétique circulaire aux seuils L_{II} et L_{III} du Nickel sur les multicouches Ag/Ni (ainsi que sur d'autre multicouche Cu/Co), nous avons constaté que la couche d'oxydation de surface, bien que peu importante en épaisseur, est rédhibitoire pour une mesure du spectre d'absorption en détection des électrons secondaires. La couche d'oxyde de nickel en surface domine le spectre. Par ailleurs, une mesure en transmission est rendue impossible par la forte épaisseur de ces échantillons (0.5 à 5 μm) ainsi que par la présence d'un substrat épais de verre.

Nous avons donc dû chercher à utiliser le spectre de diffraction lui-même pour évaluer le facteur de diffusion anomal du Nickel. La mesure de l'angle de diffraction des pics de Bragg (figure 3.3) de la multicouche en fonction de l'énergie permet en effet de mesurer l'indice de réfraction qui intervient comme un terme correctif à la loi de Bragg. Ceci permet de mesurer directement la partie réelle du facteur de diffusion anomal. Cette technique a été utilisée dans la gamme des X-durs pour déterminer le facteur f' du Cu [14]. Nous montrons dans ce paragraphe son application dans la gamme des X-mous pour la multicouche Ag/Ni (échantillon ANF975F1). Les résultats obtenus sont confrontés d'une part à une mesure du coefficient d'absorption réalisée sur un échantillon de nickel massif orienté selon la direction [111] en détection d'électron, ainsi qu'à une mesure en détection de fluorescence effectuée sur un échantillon similaire (multicouche Ag/NiFe).

La détermination des paramètres des pics de Bragg (intensité, hauteur, largeur et position) a été effectuée en utilisant le programme ABFFit [15]. Les pics de Bragg sont affinés par une fonction Pseudo-Voigt. A posteriori, il a été constaté que tous les coefficients de mélange se situent dans la gamme 0.9 à 1, attestant du caractère lorentzien du pic de Bragg. La contribution de la réflectivité donne un fond d'intensité. Celui-ci a été affiné simultanément au pic par un polynôme d'ordre 2. La figure 3.5 donne la variation de l'angle de Bragg en fonction de l'énergie des photons incidents.

2.4.1 / Détermination de f' , partie réelle du facteur de diffusion anomal

La loi de Bragg corrigée de l'indice optique s'écrit [16]:

$$\theta = \theta_B + \frac{\bar{\delta}}{\sin(\theta_B) \cos(\theta_B)} \quad [\text{III.7}]$$

$$\text{avec } \bar{\delta} = \frac{r_0 \lambda^2 N_a}{2\pi} \left\langle \frac{\rho(Z + f')}{A} \right\rangle \quad [\text{III.8}]$$

où $\frac{\rho(Z + f')}{A}$ est la moyenne pondérée par les concentration atomiques en Ni et Ag du facteur de diffusion atomique.

De cette mesure on tire donc le facteur de diffusion du Nickel si on connaît celui de l'Argent et les concentrations respectives.

Cette équation III.8 peut s'appliquer en considérant la multicouche comme un matériau homogène possédant un indice moyen calculé à partir des deux sous-couches. Dans un cadre plus général, A.E. Rosenbluth et P. Lee [16] ont analysé l'effet de l'absorption sur la correction à la loi de Bragg. Elle reste faible dans ce cas précis (correction de l'ordre de 10^{-2}).

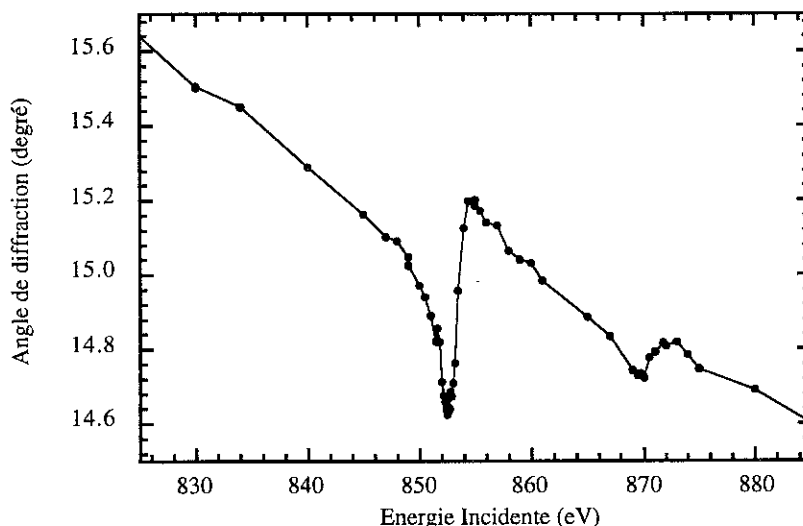


Figure 3.5 : Variation de l'angle de Bragg du premier ordre de diffraction pour une multicouche Ag/Ni. avec l'énergie des photons incidents aux seuil L_{II} et L_{III} du Ni

Les valeurs des facteurs de diffusion non-résonante (facteur de Ag et de Ni de part et d'autre des seuils) sont obtenues à partir des tables de Henke [17], et ont été interpolées linéairement aux énergie souhaitées. Les valeurs utilisées pour le facteur f' de l'Argent sont peu critiques, puisque celui-ci ne représente qu'un tiers, en composition, dans cette couche. Supposer les valeurs du facteur de diffusion constantes pour l'Argent sur la gamme d'énergie associée aux seuils L_{II} et L_{III} du Ni conduirait à une erreur de 0.7% sur les valeurs extraites pour le Ni. Ceci montre la faible contribution de l'Argent dans la détermination de la partie réelle du facteur de diffusion anomal du Ni (Figure 3.6). De δ et du facteur de diffusion de Ag on tire celui de Ni. Les valeurs ainsi déterminées pour f_{Ni} sont recalées sur les valeurs données par les tables de Henke aux deux extrémités de la fenêtre en énergie à 830 eV et 890 eV. Ce recalage revient à supposer l'existence d'un décalage constant de l'angle du goniomètre par rapport à la vraie valeur de l'angle de Bragg, trouvé égal à 0.02° et attribuable à une faible erreur lors du réglage du zéro du goniomètre. Une formule plus exacte peut être utilisée pour la détermination de f'_{Ni} . Celle-ci est obtenue en considérant deux milieux d'indices différents pour chacune des couches, au lieu d'un indice moyen et en tenant compte des termes de second ordre en δ et β .

La différence obtenue est de seulement 0.5 électrons sur toute la fenêtre en énergie. Elle est inférieure aux barres d'erreur dues à l'incertitude sur le pointage du centre du profil de réflexion et est de plus constante sur toute la gamme de mesure.

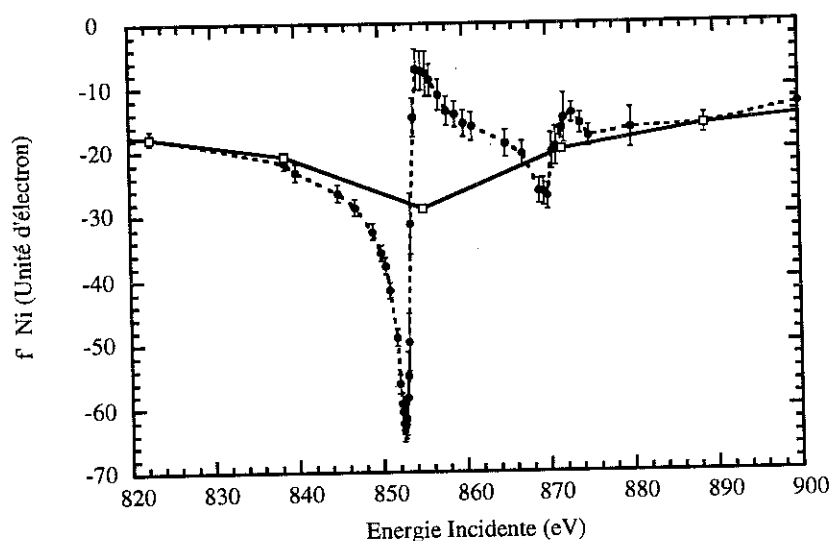


Figure 3.6 : Variation de la partie réelle du facteur de diffusion anormal du Ni aux seuils L_{III} et L_{II} pour une multicouche Ag/Ni (La courbe continue représente les valeurs tabulées de Henke)

Les incertitudes sur la détermination de f' sont calculées à partir des erreurs systématiques en considérant deux sources majeures : la largeur spectrale du rayonnement incident ainsi que l'incertitude sur la position angulaire. Dans le premier cas, la largeur spectrale donnée par la résolution du monochromateur ($E/\Delta E \approx 3000$ pour des cristaux de Béryl) conduit à une erreur maximale sur f'_{Ni} de 0.06 électrons. Celle-ci sera négligée. La seconde contribution provient de l'incertitude sur la détermination de la position angulaire du pic de Bragg. Elle est évaluée par l'affinement lorentzien, grâce au programme ABFit. Elle conduit à des incertitudes pouvant aller jusqu'à 4 électrons au maximum et au delà de la résonance L_{III} , où l'intensité diffractée diminue fortement, ce qui rend peu précise la détermination expérimentale des maximum d'intensité diffusée.

Cette méthode pour la mesure de f' , déjà utilisée dans les X-durs s'avère fort intéressante dans le cas des X-mous. Elle est cependant extrêmement sensible aux réglages du goniomètre : un décalage de 0.1 degré sur la position du pic de Bragg conduirait à des valeurs erronées de plus de 9 électrons à 852.5 eV.

Les valeurs ainsi obtenues pour f'_{Ni} montrent une très forte résonance au seuil L_{III} , avec des valeurs atteignant -63 électrons au seuil L_{III} . Cette dernière valeur est à comparer à la valeur du facteur de forme non résonant égal, aux petites valeurs de k , à $Z=28$ électrons dans le cas du Nickel. Une conséquence importante est la possibilité d'obtenir des valeurs négatives pour la partie réelle du facteur de diffusion (f_o+f') dans une plage en énergie autour du seuil L_{III} . Ceci conduit à des phénomènes relativement inhabituels pour les Rayons X, bien que ceux-ci existent dans le cas des neutrons (la longueur de Fermi pouvant être négative). Dans cette gamme en énergie, l'aspect des courbes de réflectivité est donc totalement modifié : l'angle critique (devenant complexe) ainsi que la réflexion totale disparaissent. La contribution de l'Argent a tendance à diminuer ces effets, puisque le paramètre important est le facteur de diffusion moyenné sur la couche. Le fait que la partie réelle du facteur de diffusion du Ni devienne négative permet d'expliquer les différences observées à partir de mesures de réflectivité sur une couche de Ni massif [18] donnant une valeur de -32.7 électrons au seuil L_{III} . Cette mesure utilise en effet la valeur de l'angle critique en fonction de l'énergie pour évaluer l'indice, ce qui n'est à notre avis pas possible autour du seuil L_{III} .

2.4.2 / Détermination de f'' ,

partie imaginaire du facteur de diffusion anomal

Comme le montre la figure 3.3 au voisinage des résonances, on observe des variations de forme des pics de Bragg de la multicouche dues à des variations de la largeur à mi-hauteur (FWHM) des pics : la figure 3.7 représente les variations de la largeur en fonction de l'énergie.

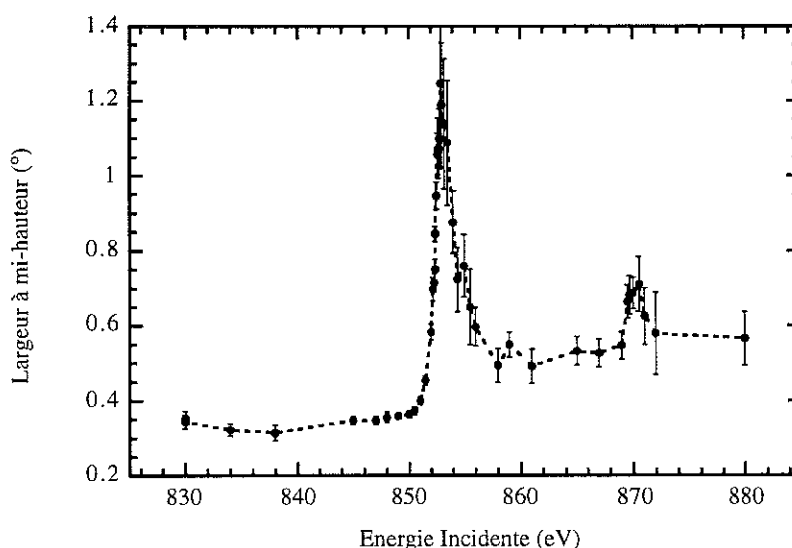


Figure 3.7 : Variation de largeur à mi-hauteur du pic de Bragg de premier ordre pour une multicouche Ag/Ni. en fonction de l'énergie incidente au seuil L_{II} et L_{III} du Ni

La largeur des pics de diffraction peut être reliée au coefficient d'absorption. Un calcul direct du facteur de structure de la multicouche dans l'approximation cinématique montre que les pics de Bragg ont une forme lorentzienne avec une FWHM proportionnelle au coefficient d'absorption μ . Afin de pouvoir écarter tout effet de caractère dynamique, deux critères ont été vérifiés. Le premier consiste à comparer la largeur du pic à celle donnée par la largeur de Darwin [19] : la mesure est de 1.2° alors que l'estimation théorique est de 0.3° , à 853 eV. L'autre critère porte sur l'intensité diffractée [20]. Il considère que les effets dynamiques ne sont à prendre en compte que si l'intensité de la réflexion est supérieure à 10% de l'intensité incidente. Dans notre cas, l'intensité mesurée au maximum du pic Bragg est de l'ordre de 1% de la réflectivité totale. Ce critère n'est pas satisfait lui non plus ce qui justifie l'utilisation de l'approximation cinématique.

Il convient alors de tenir compte, dans le calcul du facteur de structure, de la forte absorption en considérant le vecteur de diffusion complexe.

$$k = q + i \frac{\mu(E)}{2} \quad [\text{III.9}]$$

$$q = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \theta \quad [\text{III.10}]$$

Bien que cette approche ne soit pas absolument rigoureuse, puisqu'elle considère que les plans d'équiphasse et d'équiamplitude sont confondus, elle permet néanmoins de donner la forme des pics de Bragg à partir du calcul du facteur de structure, dans le cas d'une forte absorption. La sommation dans le facteur de structure s'effectue sur tous les plans atomiques. Dans le calcul, il est possible de séparer la contribution $H(k)$ provenant de la maille élémentaire constituée d'une bi-couche Ni/Ag de celle de l'empilement des bi-couches $S(k)$. $H(k)$ est proportionnel à une fonction de Laue $\sin(\frac{kn_i d_i}{2}) / \sin(\frac{k d_i}{2})$ tant que l'on néglige l'absorption à l'intérieur d'une période Λ . En développant q , autour de la position du pic de Bragg

($q = \frac{2\pi}{\Lambda} + \delta q$, avec $\delta q \Lambda \ll 1$ et $\mu \Lambda \ll 1$), on obtient :

$$S(\delta q, E)^2 \propto \frac{1/\Lambda^2}{\frac{\mu(E)^2}{4} + \delta q^2} \quad [\text{III.11}]$$

Finalement, on retiendra que la largeur à mi-hauteur du pic de Bragg est proportionnelle au coefficient d'absorption linéaire moyen $\langle\mu\rangle$. La contribution de l'Argent au coefficient $\langle\mu\rangle$ a tendance à diminuer les effets de résonance dus au nickel. A cette contribution due à l'absorption, s'ajoute une autre contribution liée à la longueur de cohérence de l'empilement des couches. Cette dernière ne dépend pas de l'énergie. La largeur à mi-hauteur des pics en q s'écrit donc :

$$\Delta q = c \left(\frac{t_{Ni}}{\Lambda} \mu_{Ni} + \frac{t_{Ag}}{\Lambda} \mu_{Ag} \right) + \gamma \quad [\text{III.12}]$$

où c et γ sont des constantes, γ étant due à la longueur de cohérence. Elles sont déterminées aux deux extrémités du spectres pour lesquelles les valeurs de μ pour le Ni données par les tables sont fiables. On obtient :

$$c = 2.01 \cdot 10^{-6}$$

$$\gamma = 0.00228 \text{ \AA}^{-1}$$

γ est inversement proportionnel à l'épaisseur diffractante. Il est possible de le relier à une longueur de cohérence par la formule : $L = \frac{2\pi}{\gamma}$

Dans le tableau III.2, la valeur obtenue pour L est comparée aux valeurs obtenues sur des multicouches comparables élaborées suivant le même protocole par des mesures de diffraction aux grands angles en diffraction X et aux petits angles en diffraction neutronique.

	λ (Å)	L	Système	Référence
Neutrons PA	2.36 Å	1000 Å	Ag/Ni (0.5 μ)	[21]
Rayons X GA	1.7 Å	150-300 Å	Ag/Ni	[10]
Rayons X-mous PA	15 Å	2800 Å	Ag/Ni (5 μ m)	Ce travail [22]

Tableau III.2 : Taille de cohérence des multicouches Ag/Ni mesuré par différentes techniques (GA=grands Angles, PA=petits angles)

Les deux longueurs de cohérences obtenues aux petits angles en X mous et en diffraction neutronique sont sensibles à l'empilement multicouche, alors que la mesure effectuée aux grands angles est quant à elle sensible à l'empilement des plans atomiques individuels, ce qui explique leur grande différence. La différence entre les deux mesures aux petits angles peut être expliquée par l'amélioration constatée de la qualité de ce type de multicouche lorsque le nombre de périodes déposées augmente.

La partie imaginaire du facteur anomal pour Ni est obtenue en appliquant le coefficient de proportionnalité, c , au spectre des largeurs à mi-hauteur (Figure 3.8).

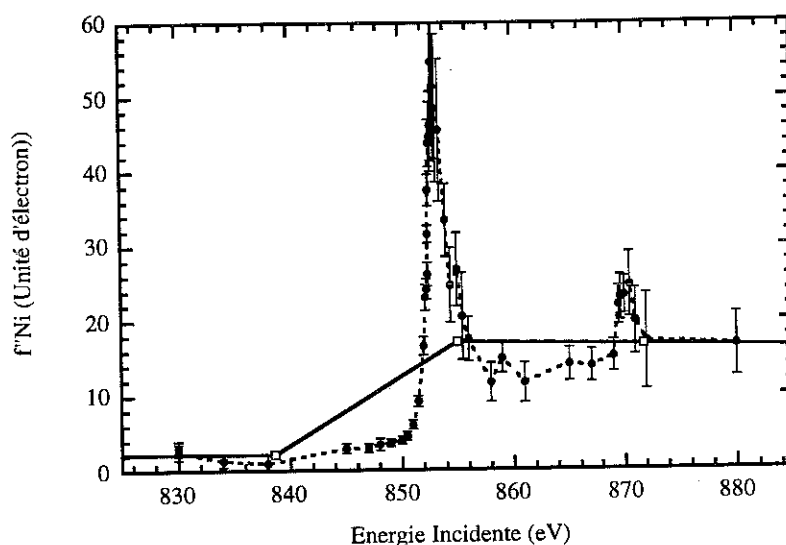


Figure 3.8 : Variation de la partie imaginaire du facteur de diffusion anomal du Ni aux seuils L_{II} et L_{III} (La courbe en trait plein représente les valeurs tabulées de Henke)

L'amplitude de la raie blanche représente 55 électrons, ce qui est fort en comparaison des 15 électrons du saut d'absorption correspondant aux transitions vers les états vides du continuum donnés par les tables de Henke. La structure faible à 6 eV au dessus du seuil observé en absorption X et attribuée à des effets d'excitation multi-électronique [23, 24], est identifiée. Les résonances (raies blanches) ainsi mesurées ont pour largeurs respectives 1.2 eV au seuil L_{III} et 2 eV au L_{II} . Les barres d'erreurs, obtenues à partir des incertitudes dans l'affinement des spectres, sont larges au delà du seuil L_{III} , pour atteindre jusqu'à 20% du signal. Cette augmentation sur l'incertitude est liée à la décroissance extrêmement forte de l'intensité diffractée à des énergies supérieures à celle du seuil L_{III} (Figure 3.9), ainsi qu'à l'augmentation, à ces angles, du fonds de diffusion dû à la réflectivité totale, pour des énergies où l'absorption est forte. La très forte diminution de l'intensité intégrée des pics de Bragg qui est importante à des énergies supérieures au seuil L_{III} s'explique en partie par les effets d'absorption, mais résulte pour l'essentiel de la diminution du contraste entre les atomes d'Ag et de Ni à cause de la forte variation du f''_{Ni} : dans cette gamme en énergie Ag et Ni ont des facteurs de diffusion très voisins.

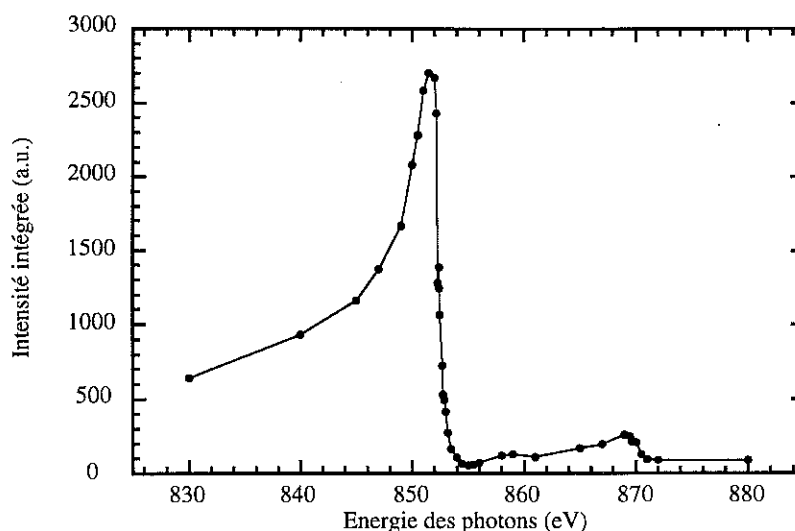


Figure 3.9 : Variation de l'intensité intégrée de la raie (001) pour la multicouche Ag/Ni

2.4.3 / Comparaison entre les valeurs mesurées de f'' (f'') et celles obtenues par la transformée par Kramers-Kronig de f'' (f'')

Afin de tester la cohérence entre ces deux déterminations de f' et f'' , les transformées de Kramers-Kronig (KK) et les transformée de Kramers-Kronig inverses (KKI) ont été utilisées. La méthode est celle décrite au chapitre II. Pour ce faire les spectres expérimentaux sont complétés par les tables de Henke [17] et de Sasaki [25] sur un domaine en énergie de 30 eV jusqu'à 124 keV. Ces valeurs limites sont en accord avec le critère de bornes d'intégration donné par Hoyt *et al* [26], bien que la limite basse en énergie soit un peu trop élevée (le critère donne pour la limite basse $E_s/50=16$ eV, où $E_s=853$ eV est le seuil considéré). La correction relativiste a été négligée puisqu'étant égale à $-8 \cdot 10^{-2}$ électron. La figure 3.10 montre les spectres obtenus par transformation KK et KKI des déterminations expérimentales, superposés à celles-ci.

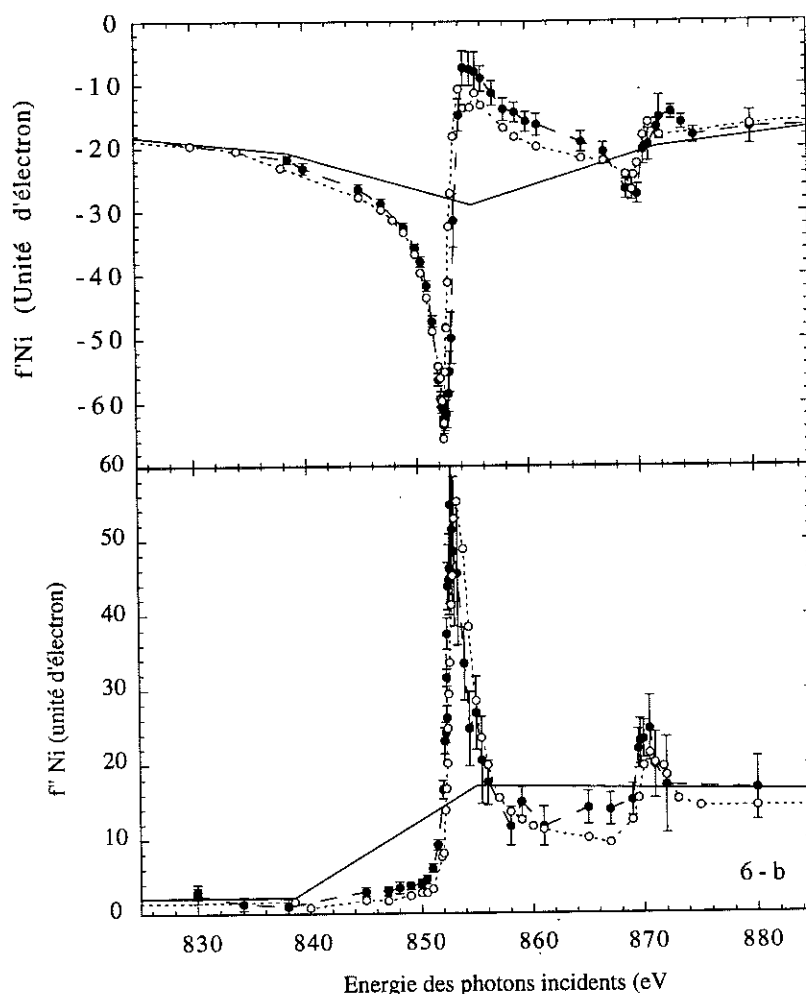


Figure 3.10 : Comparaison entre les spectres expérimentaux et leurs transformées KK et KKI

- : Spectres expérimentaux (pour f' et f'')
- : Spectres calculés par les relations KK et KKI
- : Valeurs tabulées de Henke

Les amplitudes des deux transformées sont comparables à celles mesurées. Cependant les courbes donnant les valeurs de f' et f'' calculées par KK semble décalées de 0.3 eV par rapport à celles mesurées, bien que la position et la largeur des pics de Bragg soient déterminées simultanément à partir de la même mesure. Les deux décalages sont de signes opposés pour f' et f'' . Ceci suggère que ce décalage apparent peut être attribué aux différences de largeur dans les deux déterminations dues aux incertitudes de la mesure (notamment dans la partie haute énergie du seuil L_{III}). Celles-ci sont amplifiées lors de la transformation de Kramers-Kronig qui s'apparente à une dérivation. Notons qu'on observe aussi une différence systématique entre les mesures directes et les calculs par KK et KK inverse dans la région entre les deux seuils L_{II} et L_{III} où la faible intensité diffractée rend les mesures difficiles.

D'autre part, même si la détermination de f' apparaît moins bruyante que celle de f'' , la transformation inverse KKI introduit une plus grande distorsion dans le spectre calculé que la transformée directe. Ces distorsions résultent de l'absence du terme supplémentaire en ω' présent dans l'équation définissant f' (équation I.23), et qui tend à atténuer les effets de divergences aux faibles valeurs de l'énergie.

Cette étude montre que l'utilisation de la correction à la loi de Bragg dans la gamme des X-mous permet la mesure de la partie réelle des facteurs de diffusion anomaux avec une précision satisfaisante. La détermination de f'' est toutefois beaucoup plus bruyante que celle de f' . Cependant, les divergences plus importantes introduites par la méthode d'intégration KKI, aux basses énergies, comparée à la méthode directe (KK) limitent la comparaison des deux composantes du facteur de diffusion.

2.4.4 / Comparaison avec d'autres déterminations de f'

La multicouche utilisée étant trop fortement oxydée pour permettre une mesure de l'absorption utilisant la détection des électrons secondaires (Total Electron Yield ou TEY), la comparaison s'effectuera avec un spectre obtenu pour du Nickel massif (100), ainsi qu'avec un spectre obtenu en mode de détection de fluorescence (FY) pour une multicouche similaire (multicouche Ag/NiFe), mais non identique.

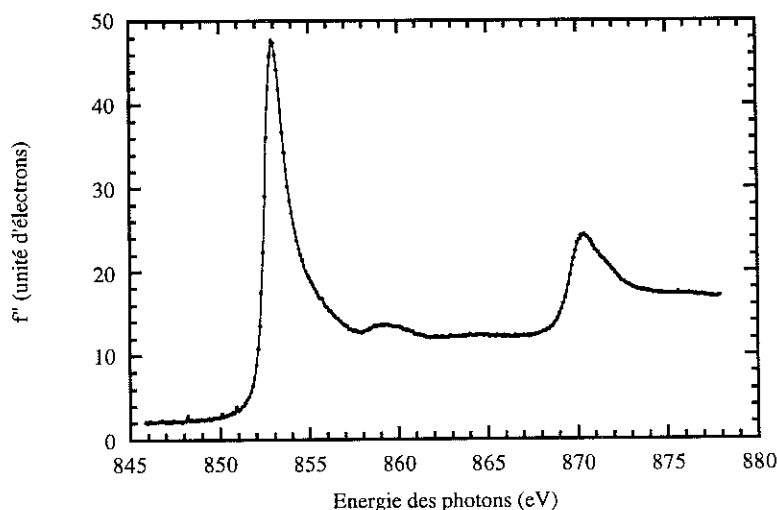


Figure 3.11 : Mesure de f' pour un échantillon de Ni (100) par détection d'électron

La première mesure en TEY sur un échantillon de Ni massif (Figure 3.11) provient de la ligne SU22 à Super ACO (LURE). Elle a été effectuée en polarisation circulaire, et nous n'utilisons ici que le spectre isotrope (non magnétique) [27]. L'étalonnage du spectre, en unités d'électron a été effectué par une calibration linéaire sur les valeurs des tables de Henke avant et après seuil, après division par l'énergie (transformation de μ en f'').

La deuxième mesure utilisée a été effectuée en mode de détection de fluorescence sur une multicouche $\text{Ag}_{11}/(\text{Ni}_{0.8}\text{Fe}_{0.2})_{13}$, proche de celle de l'expérience, sur la ligne SA32 à Super ACO, le faisceau faisant un angle de 45° en incidence et en émergence. La polarisation est perpendiculaire à la surface de l'échantillon. Le passage de l'intensité du spectre de fluorescence aux valeurs de f'' moyennées en fonction de la composition, puis à celles de f'' pour Ni, implique des corrections non triviales qu'il est nécessaire de discuter ici.

Les deux difficultés majeures sont d'une part la forte concentration en nickel, ce qui entraîne de forts effets d'absorption et d'autre part la présence, au delà du seuil L_{II} de deux émissions de fluorescence à 849 et 867.5 eV associées respectivement à chacun des deux seuils L_{III} et L_{II} . Ces deux raies de fluorescence correspondent aux désexcitations $L_{\alpha 2}$ et $L_{\beta 1}$ respectivement. Afin d'analyser ces données, la méthode décrite par Tröger *et al* [28] pour traiter la correction de réabsorption d'une raie de fluorescence a été étendue afin d'y inclure la correction de réabsorption au seuil L_{II} .

L'intensité des spectres d'absorption mesuré en mode de détection de fluorescence dépendent, dans le cas d'échantillons concentrés, de la géométrie définie par l'échantillon le faisceau incident et le détecteur. De manière générale, l'intensité de fluorescence pour une seule ligne de fluorescence est donnée par [29]:

$$\frac{I_f(E)}{I_o(E)} = f(E) \frac{\mu_{xh}(E)}{\mu_T(E) + \mu(E_f) \frac{\sin \phi}{\sin \theta}} \left[1 - \exp \left(- \left[\frac{\mu_T(E)}{\sin \phi} + \frac{\mu_T(E_f)}{\sin \theta} \right] d \right) \right] \quad [\text{III.13}]$$

où :

- $I_f(I_o)$: intensité de fluorescence (incidente).
- $f(E)$: fonction dépendante de l'énergie, décrivant notamment l'efficacité du détecteur, le rendement de fluorescence...
- d : épaisseur de l'échantillon.
- $\mu_T(E)$: coefficient d'absorption total à l'énergie E (incluant tous les constituants).
- $\mu_T(E_f)$: coefficient d'absorption total à l'énergie de fluorescence considérée.
- $\theta (\phi)$: angle d'incidence (émergence) = 45° .
- $\mu_{xh}(E) = \mu_x(E) - \mu_{x0}(E)$: contribution au coefficient d'absorption due uniquement au processus liés au seuil considéré pour l'atome x . μ_{x0} désigne l'ensemble des processus d'absorption autre que ceux liés au seuil considéré, μ_x désigne l'absorption totale de l'atome x .

Les coefficients d'absorption linéaire pour Ni sont typiquement de l'ordre de $1.6 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}$ pour des énergies inférieures au seuil L_{III} , et de l'ordre de quelque 10^5 cm^{-1} au seuil L_{III} . Ceci conduit à des longueurs d'absorption de l'ordre de 6000 Å avant seuil et de seulement 250 Å au seuil L_{III} (maximum de la raie blanche). Dans le cas de la multicouche Ag/NiFe (épaisseur totale de $0.5 \mu\text{m}$), le terme entre crochet dans III.13 peut donc être pris égal à 1. Dans ces conditions, la correction de réabsorption incluant les seuils L_{II} et L_{III} de Ni dans cette multicouche, est donnée par :

$$\frac{I_f(E)}{I_o(E)} = f^{L_{III}}(E) \frac{\mu_{xh}^{L_{III}}(E)}{\mu_T(E) + \mu_T(E_f^{L_{III}}) \frac{\sin \phi}{\sin \theta}} + f^{L_{II}}(E) \frac{\mu_{xh}^{L_{II}}(E)}{\mu_T(E) + \mu_T(E_f^{L_{II}}) \frac{\sin \phi}{\sin \theta}} + I_{bac}(E)$$

[III.14]

$f^{L_{III}}(E), f^{L_{II}}(E)$: fonctions dépendantes de l'énergie E des photons incidents.
 $I_{bac}(E)$: fond de fluorescence pour une énergie d'excitation E .

Nous supposons que les trois fonctions ($f^{L_{III}}, f^{L_{II}}, I_{bac}$) sont constantes sur le faible domaine en énergie de la mesure. Le calcul du coefficient d'absorption total inclut la contribution de chacun des éléments avec sa pondération respective (en épaisseur et en concentration). La multicouche est alors considérée comme un milieu homogène comportant la proportion adéquate d'atomes d'Argent, de Nickel et de Fer. Les valeurs nécessaires pour calculer les coefficients d'absorption du Fer et de l'Argent sont obtenues à partir des tables de Henke. L'énergie aux seuils L_{III} et L_{II} du nickel est suffisamment éloignée des seuils L du Fer pour qu'on puisse utiliser avec sécurité ces tables.

L'absorption totale μ_T est calculée à 830 eV choisie arbitrairement sous le seuil, à 864 eV (choisie entre les deux seuils de manière à éviter toute structure provenant du seuil L_{III}), ainsi qu'aux deux énergies de fluorescence. Elles permettent donc de calculer l'absorption $\mu_{xh}^{L_{III}}$ au seuil L_{III} , et l'absorption totale. Des mesures correspondantes de I_f/I_o , on peut donc déterminer les constantes $f^{L_{III}}$ et I_{bac} en ne considérant que la fluorescence provenant du seuil L_{III} (canal $L_{\beta 1}$), puisque celle dû au L_{II} (canal L_{α}) n'est pas excitée. Les valeurs de μ_{Ni} au seuil L_{III} (coefficient d'absorption correspondant aux excitations des niveaux $2p_{3/2}$) sont donc déterminées entre 830 et 864 eV , puis étendues au delà du seuil L_{II} . L'hypothèse sous-jacente est que la section efficace d'absorption et le rendement de fluorescence associés au seuil L_{III} ne sont pas affectés

par l'ouverture du canal associé au seuil L_{II} . La figure 3.12 montre la correction obtenue pour le canal L_{III} seul. On remarque les fortes valeurs du coefficient d'absorption exprimées en cm^{-1} : jusqu'à 510^5 cm^{-1} au seuil L_{III} et l'effet très fort de la correction.

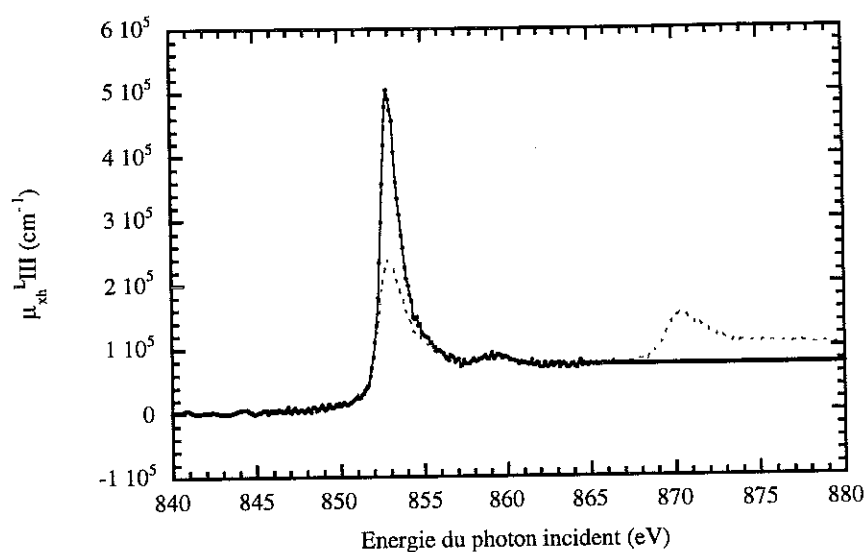


Figure 3.12 : Composante d'absorption linéaire $\mu_{x_{III}}$ au seuil L_{III} du Ni en cm^{-1} (trait plein)
 Trait pointillé : signal de fluorescence recalé sans correction de réabsorption

Le même traitement peut être appliqué dans une deuxième étape au seuil L_{II} . La valeur de f_{II}^L est déterminée en utilisant les valeurs données par les tables de Henke à 880 eV. La somme des deux contributions donne le coefficient d'absorption total (figure 3.13).

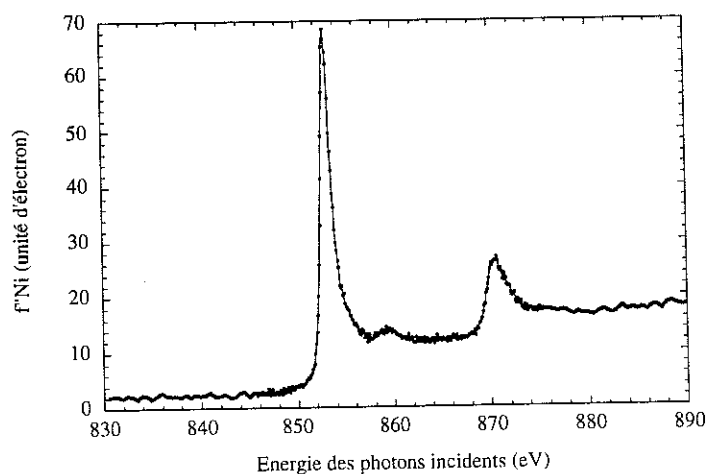


Figure 3.13 : f'' au seuil L_{II} et L_{III} du Ni mesuré par le rendement total de fluorescence pour une multicouche $\text{Ag}_{11} \text{Å} / (\text{Ni}_{0.8} \text{Fe}_{0.2})_{13} \text{Å}$.

La comparaison des quatres mesures expérimentales (f' et f'' à partir de la diffraction, f'' en TEY et f'' en fluorescence) et des transformées KK des valeurs de f'' obtenues en modes TEY et fluorescence est montrée sur la figure 3.13.

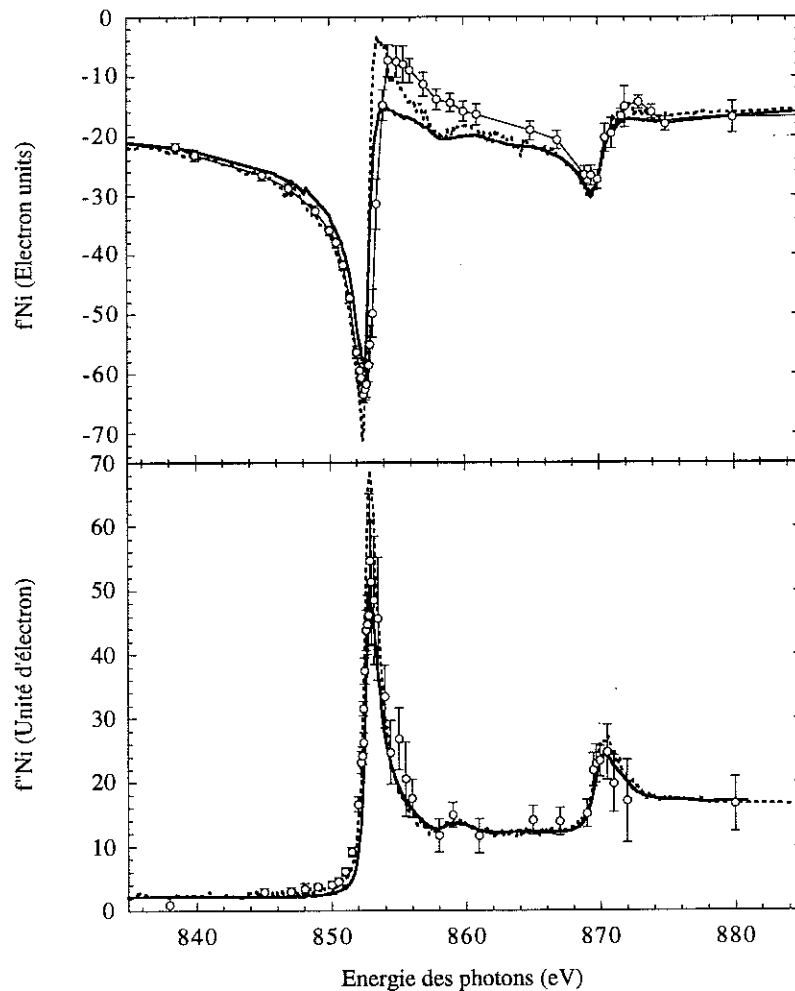


Figure 3.14 : Comparaison des spectres de f' et f'' aux seuil L_{II} et L_{III} du Ni, obtenus par différentes méthodes

- o : mesure en diffraction : f'' par la largeur à mi-hauteur des pics de Bragg (bas) et f' par la position des pics de Bragg (haut)
- : mesure de f'' en TEY (bas) et transformée KK (haut)
- : mesure de f'' en détection de fluorescence (bas) et transformée KK (haut)

On constate que les trois déterminations des facteurs de diffusion atomique f' et f'' sont en accord raisonnable. Elles présentent cependant des écarts d'amplitudes significatives pour la

raie blanche au seuil L_{III} . On observe aussi des différences systématiques pour les valeurs de f' dans la fenêtre en énergie entre les deux seuils.

Etant donné les incertitudes sur les spectres de f' et f'' déterminés par la méthode de diffraction, il ne nous est pas permis de conclure quand à une éventuelle modification de la raie blanche au seuil L_{III} de Ni par rapport au Ni massif liée à un effet de la réduction de la dimensionnalité de la couche de Ni.

Par la suite, nous utilisons les spectres déterminés expérimentalement à partir des pics de Bragg, ainsi que la détermination obtenue par détection d'électron (et son KK) pour analyser les données de XRMS. La détermination obtenue à partir des mesures de fluorescence n'a pas été retenue à cause de l'écart important obtenu pour la partie imaginaire du facteur de diffusion. La mesure en rendement total d'électron lui a été préférée, d'autant plus que, pour ce jeu de données, nous possédions le signal de dichroïsme, qui sera également utilisé par la suite.

2.5 / Détermination du taux de polarisation circulaire

Le taux de polarisation circulaire est déterminé en utilisant les deux mesures du rapport d'asymétrie effectuées à des hauteurs différentes distantes de 8.2 mm. En première approximation le terme magnétique pur au dénominateur peut être négligé devant celui non-magnétique (rapport de l'ordre de 1%). Dans ce cas, le rapport des rapports d'asymétrie pour deux mesures à la même énergie et avec des taux de polarisation circulaire différents se réduit à :

$$Rap(z_1, z_2) = \frac{Ra(z_1)}{Ra(z_2)} = \frac{\sqrt{I_{\sigma}^{z_1} I_{\pi}^{z_1}} \left(I_{\sigma}^{z_2} + I_{\pi}^{z_2} \cos^2(2\theta) \right)}{\sqrt{I_{\sigma}^{z_2} I_{\pi}^{z_2}} \left(I_{\sigma}^{z_1} + I_{\pi}^{z_1} \cos^2(2\theta) \right)} \quad [III.15]$$

où z_1 et z_2 sont les cotes par rapport à l'orbite synchrotron.

En posant $z_2 = z_1 + \delta z$, la courbe $Rap(z_1, \delta z = 8.2 \text{ mm})$ a été calculée en fonction de z_1 en utilisant les formules donnant les intensités σ et π du faisceau synchrotron présentées au chapitre précédent et en annexe 2. On tient compte de l'effet de polarisation du monochromateur à 2 cristaux de Béryl. Les cotes absolues n'étant pas déterminées de manière satisfaisante, il est en effet préférable de tracer $Rap(z)$ pour δz donné.

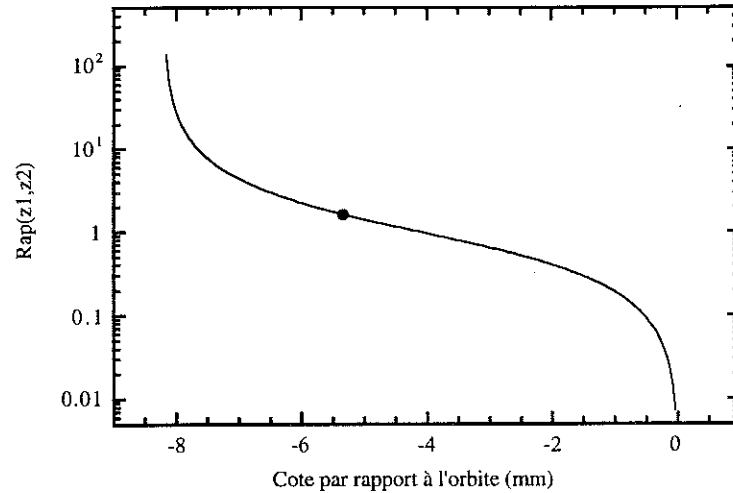


Figure 3.15 : $Rap(z)$ pour $\delta z = 8.2 \text{ mm}$
(le point correspond à la cote où ont été réalisées les mesures)

La comparaison du rapport calculé avec la valeur expérimentale $Rap_{exp} = 1.632 \pm 0.215$ détermine graphiquement la cote z_1 du diffractomètre par rapport au plan de l'orbite synchrotron. On peut donc ensuite calculer le taux de polarisation circulaire en z_1 (figure 3.15). Les barres d'erreur sur le taux de polarisation circulaire sont déterminées graphiquement, à partir des barres d'erreur sur le rapport expérimental.

$$z_1 = -5.33 \text{ mm} \pm 0.28 \text{ mm}$$

$$\text{Soit : } \tau_c = 0.83 \pm 0.02 \quad \text{Avant monochromateur}$$

$$\tau_c = 0.47 \pm 0.02 \quad \text{Après monochromateur}$$

Les valeurs pour les taux de polarisation circulaire sont en bon accord avec celles données par Saintavit et al [30], et Schillé [31] pour une double réflexion par des cristaux de Béryl aux seuils L du Ni. Le taux de polarisation ainsi obtenu sera utilisé dans le calcul du rapport d'asymétrie. Seule la mesure effectuée en $z = -5.33 \text{ mm}$ est utilisée par la suite du fait d'un plus grand nombre de point expérimentaux, et d'une meilleure statistique. Elle correspond donc à une polarisation circulaire gauche. Le rapport A_π/A_σ des amplitudes σ et π est alors de 0.25 après monochromateur (en considérant que la composante dépolarisée du faisceau est négligeable).

2.6 / Analyse du rapport d'asymétrie par des résonances lorentziennes

Une première approche possible pour calculer le rapport d'asymétrie est de supposer une forme lorentzienne pour les résonances. Cette approche a été utilisée par De Bergevin *et al* dans le cas de la résonance au seuil L_{II} du Platine dans le composé CoPt [12] pour analyser une expérience de diffraction résonante en polarisation linéaire.

Afin de tenir compte des différentes structures présentes dans le spectre de dichroïsme, y compris les deux satellites à plus haute énergie par rapport aux seuils (structures B et B' dans le tableau III.3) décrits par C.-T. Chen [23, 24], le facteur d'amplitude résonant est modélisé par 4 lorentziennes. La deuxième lorentzienne utilisée pour le satellite B au seuil L_{III} correspondant à une zone très bruyante du spectre de Ra, sa position en énergie n'a pas été affinée, mais imposée à +4 eV de la lorentzienne principale, en tenant compte des résultats de C.-T. Chen.

$$F_{res} = \sum_{j=1}^4 n_j \frac{x_j + i}{1 + x_j^2} \quad [III.16]$$

où j désigne chacune des 4 résonances (deux résonances principales et deux résonances satellites, B et B') décrites par leur amplitude n_j et la variable réduite $x_j = (E - E_j)/\Gamma_j$.

Les valeurs des facteurs anomaux non magnétiques f' et f'' sont celles déterminées précédemment à partir de la position et de la largeur du pic de Bragg. Une description du seuil d'absorption (et de dispersion) peut également être réalisée dans une approximation lorentzienne, suivant la procédure généralement utilisée pour la détermination de la valence aux seuils L de terres-rares [32]. Cependant dans le cas des éléments 3d, les résonances d'absorption aux seuils L présentent généralement une assez forte asymétrie du côté des hautes énergies, mal aisée à décrire dans une approche lorentzienne, ce qui nous fait préférer utiliser la détermination expérimentale. Cette asymétrie reste beaucoup plus faible dans le signal de dichroïsme magnétique ce qui justifie dans ce cas l'utilisation des lorentziennes.

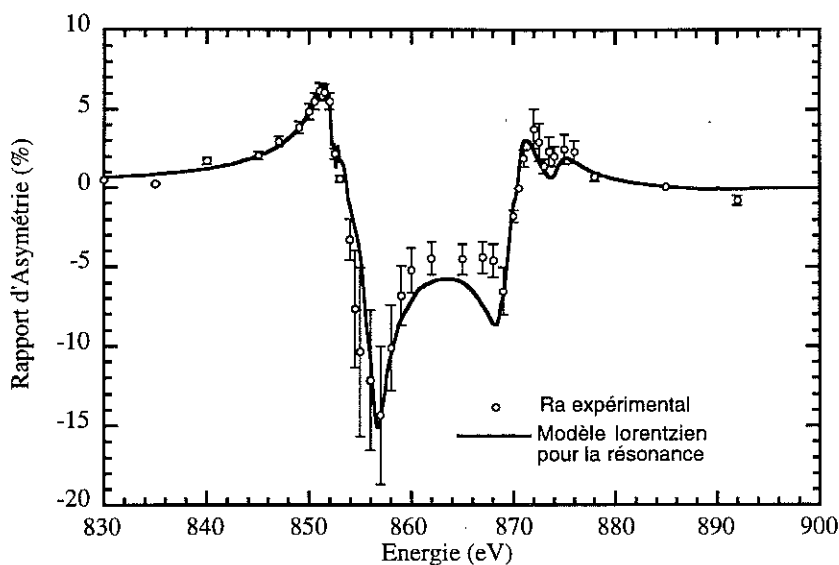


Figure 3.16 : Rapport d'asymétrie expérimental et calculé à partir des résultats de l'affinement par 4 lorentziennes

La figure 3.16 montre le résultat de l'affinement lorentzien, les paramètres correspondant sont donnés dans le tableau III.3. Les amplitudes des facteurs de diffusion sont données en unité d'électron. L'affinement a été réalisé avec FIT, le moteur moindres carrés du programme MXD, développé par P. Wolfers au Laboratoire de Cristallographie qui permet l'affinement de formules complexes [33]. L'affinement est correct, étant donné les incertitudes expérimentales importantes au-delà du seuil L_{III} . Un certain désaccord existe cependant entre les 2 seuils L_{II} et L_{III} .

	L_{III}	B	L_{II}	B'
$n_m(r_0)$	-7.85 ± 0.5	-0.75 ± 0.5	2.9 ± 0.4	0.33 ± 0.2
Γ (eV)	1.47 ± 0.3	1.5 ± 0.8	2 ± 0.3	2.1 ± 0.9
E_0 (eV)	852.6 ± 0.2	856.6	869.9 ± 0.2	874.6 ± 0.3

Tableau III.3 : Paramètres des lorentziennes obtenus lors de l'affinement du signal de rapport d'asymétrie ($\chi^2 = 9.1$)
 σ est la déviation standard donnée par le programme pour chacun des paramètres.

Les paramètres obtenus pour les lorentziennes sont en accord raisonnable avec ceux que l'on obtient par une analyse similaire (affinement lorentzien) du signal de dichroïsme mesuré aux seuils L du Ni massif (donnés au Tableau III.4 pour les deux résonances principales).

	Amplitude (r_0)	Γ	E_0
L_{III}	-9	0.95	852.7
L_{II}	2.6	1.8	870.4

Tableau III.4 : Paramètres des lorentziennes permettant d'affiner les signaux MCXD pour du Ni massif (100)

Bien que les incertitudes sur les paramètres obtenus à partir de la simulation du rapport d'asymétrie soient relativement larges, on observe cependant une réduction de l'amplitude aux seuils L_{III} pour la résonance principale, ainsi que des largeurs systématiquement plus grandes, notamment au seuil L_{III} . L'affinement par des lorentziennes semble donc insuffisant.

2.7 / Méthode Auto-cohérente

Afin d'aller plus avant dans la comparaison entre la diffusion magnétique résonante et le dichroïsme, nous avons développé une méthode autocohérente d'extraction directe du facteur de diffusion magnétique à partir du signal de rapport d'asymétrie et de l'utilisation de la transformée de Kramers-Kronig.

Le rapport d'asymétrie donné par l'équation III.5 s'écrit sous la forme abrégée suivante où A , B , C , F_r et F_i sont des quantités connues et les parties réelles et imaginaires du facteur de structure magnétique M_r et M_i sont à déterminer:

$$Ra = \frac{A[F_r M_r - F_i M_i]}{B|F|^2 + C|M|^2} \quad [III.17]$$

En supposant la partie imaginaire M_i connue à l'itération n , la partie réelle M_r peut être calculée à partir de la relation [III.17]. Par transformée inverse de Kramers-Kronig (KKI) de M_r , on obtient un nouveau jeu de valeurs pour M_i à l'itération $n+1$. On peut recommencer le cycle d'itération jusqu'à ce que les valeurs obtenues soient stables.

La convergence est estimée satisfaisante lorsque la différence entre les valeurs de la correction sur la partie imaginaire pour deux itérations successives est inférieure à 0.1 électron (pour toutes les énergies du spectres) :

$$|M_i^n(E) - M_i^{n-1}(E)| \leq 0.1 \quad \forall E \quad [\text{III.18}]$$

Cette méthode autocohérente implique la connaissance des facteurs de structure F_r et F_i . Ceux-ci sont calculés à partir des paramètres structuraux de la multicouche, ainsi que des facteurs anomaux précédemment déterminés. Afin de minimiser le nombre d'itérations, la partie imaginaire M_i^0 , pour l'itération 0, est choisie égale à une des valeurs du facteur de diffusion magnétique précédemment déterminées (résultat de l'approximation lorentzienne ou dans la mesure de dichroïsme). Afin de faciliter la convergence, le calcul itératif s'effectue alors, non plus sur la valeur totale de la partie imaginaire du facteur de diffusion magnétique, mais seulement sur une correction par rapport au spectre référence $M_i^n = M_i^0 + M_{i,c}^n$. Ceci est rendu possible par le caractère linéaire des transformée de Kramers-Kronig.

Un premier calcul a donc été effectué en utilisant comme point de départ l'approximation lorentzienne issue de l'affinement du rapport d'asymétrie, pour les valeurs du facteur de diffusion magnétique résonnant ainsi que les valeurs de f' et f'' déterminées grâce à l'expérience de diffraction. Un calcul similaire a été également réalisé en utilisant les valeurs de la partie imaginaire des facteurs de diffusion atomique issues de la mesure en détection d'électron pour Ni massif, ainsi que le signal de dichroïsme mesuré simultanément.

Dans le deuxième cas, nous avons de plus estimé les incertitudes en effectuant le calcul pour trois jeux de données correspondant à : $Ra+\sigma$, Ra , et $Ra-\sigma$, où σ est l'incertitude liée à la statistique. L'écart entre les valeurs des facteurs de diffusion extraites à partir des deux jeux de données $Ra+\sigma$ et $Ra-\sigma$ donne la barre d'erreur, qui est de l'ordre de quelques dixièmes d'électron (un électron au maximum de la résonance L_{III} , comme le montre la figure 3.17). Cette méthode d'extraction autocohérente est donc relativement précise.

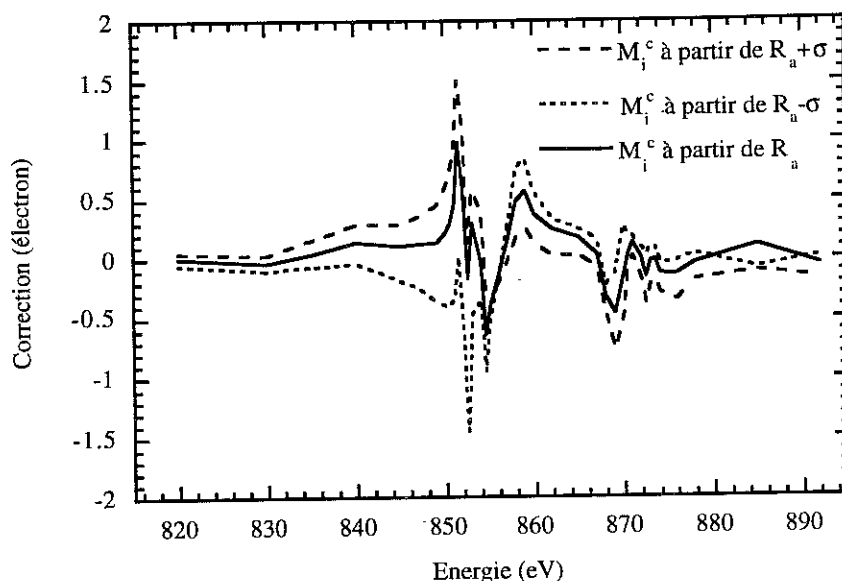


Figure 3.17 : Correction au signal de dichroïsme obtenue à partir des spectres R_a , $R_a + \sigma$ et $R_a - \sigma$ et des signaux mesurés en détection d'électron pour f'' et pour la partie imaginaire du facteur de diffusion magnétique (les parties réelles sont calculées par transformée de Kramers-Kronig).

La figure 3.18 compare la variation en énergie de la partie imaginaire du facteur de diffusion magnétique, obtenue par la méthode autocohérente en utilisant les deux jeux de données décrit ci-dessous, à la variation du facteur de diffusion magnétique directement dérivée de la mesure de dichroïsme circulaire des rayons X pour du Ni massif. Les deux jeux de données constituant les spectres de départ (itération 0) pour la méthode autocohérente sont :

- n°1- f'' et f' déterminés à partir des mesures de diffraction et résultat de l'affinement lorentzien du rapport d'asymétrie (§2.6) pour la partie magnétique.
- n°2- f'' déterminé à partir du spectre isotrope d'absorption mesuré en détection d'électrons, et f''_{mag} obtenu à partir du signal de dichroïsme (les parties réelles de chacun des facteurs de diffusion sont obtenues par transformée KK). Dans ce cas l'incertitude a en outre été déterminée à partir des spectres R_a , $R_a + \sigma$ et $R_a - \sigma$.

La figure 3.18 présente les déterminations autocohérentes du facteur de diffusion magnétique résonant obtenues à partir du rapport d'asymétrie en XRMS pour les deux jeux de données. Celles-ci sont comparées au facteur de diffusion magnétique résonant pour Ni massif, obtenu à partir du signal de dichroïsme circulaire magnétique.

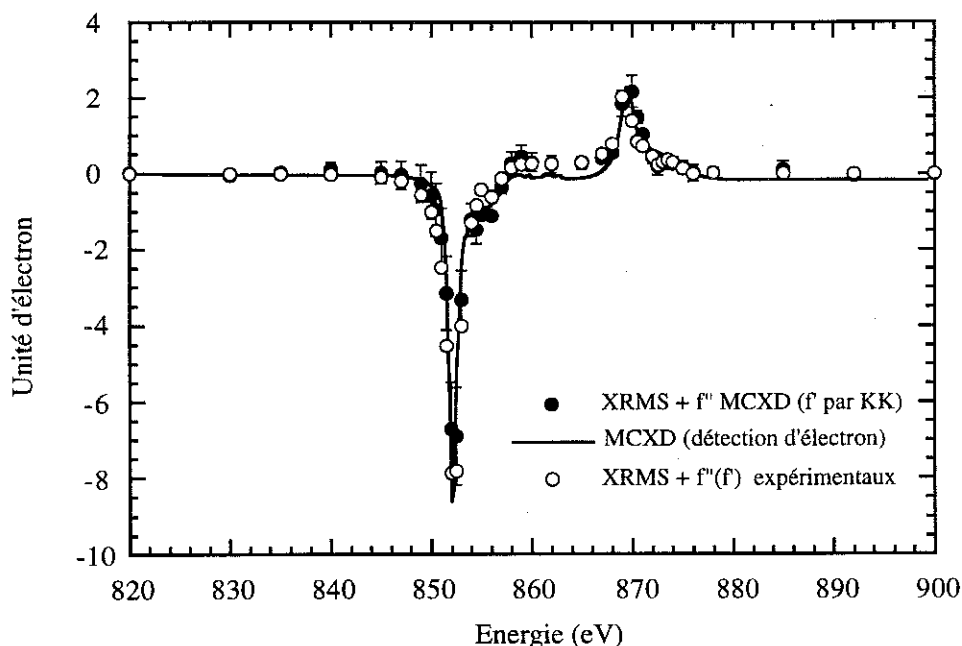


Figure 3.18 : Partie imaginaire du facteur de diffusion magnétique résultant du calcul autocohérent mené sur deux jeux de données différents comparés au signal de dichroïsme du Ni (100) mesuré en détection d'électrons.

- : jeu n°1 : données XRMS + f''_{Ni} et f''_{Ni} déterminé à partir de la mesure des pics de Bragg
- : jeu n°2 : données XRMS + f''_{Ni} déterminé à partir du signal d'absorption du Ni massif
- : Partie imaginaire du facteur de diffusion magnétique, déterminée directement à partir du signal de dichroïsme magnétique circulaire des rayons X mesuré en détection d'électron.

L'accord global entre les deux courbes extraites de l'expérience XRMS et celle mesurée par détection d'électrons est très satisfaisant. Cependant, deux différences importantes sont à souligner. D'une part, la réduction de l'amplitude de la résonance observée au seuil L_{III} lors de l'affinement lorentzien du rapport d'asymétrie XRMS se retrouve dans cette méthode d'extraction. D'autre part, le signal extrait de l'expérience de diffraction XRMS présente une composante positive systématique entre les deux résonances et ce pour les deux jeux de données. On peut noter qu'un comportement similaire, bien que de signe opposé, a déjà été observé en XMCD pour des échantillons de Ni et Co [34] et le signal négatif résiduel entre les deux seuils a été attribué à une contribution magnétique diffuse reliée aux niveaux électroniques 4s. Dans le cas présent, le signal résiduel obtenu étant positif cette explication ne semble pas raisonnable et il est préférable de l'attribuer aux limitations dues à l'incertitude présente dans les données qui sont de très faibles intensités dans cette zone.

Remarque : dans l'approche choisie, la contribution de l'absorption n'a pas été pris en compte de manière rigoureuse. L'effet d'une absorption dichroïque a principalement un effet

d'elliptisation de l'état de polarisation de l'onde électromagnétique. La prise en compte de cet effet dans une approche cinématique reste mal aisée.

2.8 / Application des règles de sommes

La qualité raisonnable de la détermination du facteur de diffusion magnétique à partir des données XRMS permet d'envisager les mêmes interprétations qu'en dichroïsme circulaire (XMCD), et en particulier l'utilisation des règles de somme.

Les règles de sommes sur le dichroïsme circulaire des rayons X ont été définies pour des seuils séparés par couplage spin-orbite comme les seuils L_{II} et L_{III} (ou M_{IV} et M_V) pour la première fois par P.Carra et B.T.Thole [35, 36]. Elles ont été confirmées expérimentalement [37] pour le Fe et le Co, par des mesures d'absorption en transmission très précises. Ces règles donnent accès, à partir du signal de dichroïsme et moyennant certaines approximations, aux projections L_z et S_z sur la direction d'aimantation des opérateurs L (moment orbital) et S (moment de spin) dans l'état initial de la couche électronique vers laquelle a lieu la transition électronique (ici l'état 3d). Pour les utiliser, il faut intégrer le signal de dichroïsme entre les deux seuils L_{II} (j_-) et L_{III} (j_+) séparés par l'interaction spin-orbite.

On considère des transitions électriques dipolaires $c_l^n \rightarrow c_{j-1}l^{n+1}$, où c et l représentent les nombres quantiques principaux associés respectivement aux niveaux de coeur et à la bande de valence où l'électron est excité. Dans notre cas $c=1$ et $l=2$.

Avec ces notations, les deux règles de sommes s'écrivent respectivement :

$$\frac{\int_{j_+ + j_-} [\mu^-(\omega) - \mu^+(\omega)] d\omega}{\int_{j_+ + j_-} [\mu^0(\omega) + \mu^-(\omega) + \mu^+(\omega)] d\omega} = \frac{l(l+1) + 2 - c(c+1)}{2l(l+1)} \frac{\langle L_z \rangle}{n_h} \quad [III.19]$$

$$\frac{\int_{j_+} [\mu^-(\omega) - \mu^+(\omega)] d\omega - \frac{c+1}{c} \int_{j_-} [\mu^-(\omega) - \mu^+(\omega)] d\omega}{\int_{j_+ + j_-} [\mu^0(\omega) + \mu^-(\omega) + \mu^+(\omega)] d\omega} = A \frac{\langle S_z \rangle}{n_h} + B \frac{\langle T_z \rangle}{n_h} \quad [III.20]$$

$$\text{avec } A = \frac{l(l+1) - 2 - c(c+1)}{3c} \quad [III.21]$$

$$\text{et } B = \frac{l(l+1)[l(l+1) + 2c(c+1) + 4] - 3(c-1)^2(c+2)^2}{6cl(l+1)} \quad [III.22]$$

Avec :

- $\mu+, \mu-$: absorption pour un photon dont l'hélicité est colinéaire ou anticolinéaire au champ magnétique appliqué.
- n_h : nombre de trous dans la bande 1 dans l'état initial de l'atome (avant photoabsorption et création du trou)
- ω : pulsation du rayonnement

$\langle T_z \rangle$ représente ici la valeur moyenne d'un opérateur s'apparentant à la projection sur la direction d'aimantation de l'opérateur dipolaire magnétique. La méconnaissance à priori de ce terme peut s'avérer être un obstacle à l'utilisation de la deuxième règle de somme et empêcher d'obtenir le moment de spin. Il a cependant été montré que ce terme reste faible pour une symétrie cubique [38, 39], et nous le négligeons donc. Ceci revient à négliger l'influence des brisures de symétrie aux interfaces avec l'Argent devant l'épaisseur de 7 couches de nickel. Moyennant cette approximation, et à condition de connaître le nombre de trous n_h dans la bande d - ce qui peut être une vraie limitation - on peut donc estimer L_z et S_z . La valeur de L_z/S_z peut par contre être déterminée sans avoir à utiliser la valeur de n_h .

De manière pratique, l'utilisation des règles de somme consiste en l'intégration des spectres définissant l'absorption isotrope et le MCXD. Une méthode a été proposée par Chen *et al.* [37] pour l'intégration des spectres d'absorption et de dichroïsme permettant une évaluation rapide des deux règles de somme.

Nous avons appliqué les règles de somme sur la partie imaginaire du facteur de diffusion afin d'obtenir une estimation du moment magnétique porté par le Ni. Préalablement à l'intégration, les valeurs des différents facteurs de diffusion sont convertis en unité du coefficient d'absorption en utilisant le théorème optique.

Un paramètre essentiel dans ce calcul est le nombre de trou n_h à considérer dans la bande 3d du Ni. La valeur utilisée de 1.6 trous est tirée de calculs théoriques de structure de bandes donnant le taux d'occupation de la bande 3d pour Ni fcc massif [39-41].

Les valeurs obtenues dans ces conditions sont $\langle L_z \rangle = 0.044 \pm 0.01$ et $2\langle S_z \rangle = 0.37 \pm 0.06$ soit un moment total 3d pour le Ni de $0.42 \pm 0.07 \mu_B$. L'incertitude est calculée à partir de l'incertitude sur la détermination des valeurs de f''_{mag} . Ces valeurs de moments sont comparées dans le tableau III.5 à celles obtenue par simulation du XMCD [42] ou par l'utilisation des règles de somme [43] pour Ni massif d'une part, et à la mesure d'aimantation sur une multicouche similaire d'autre part (épaisseurs de Ni et Ag semblables à celles de la couche que nous avons étudiée).

	MCXD * [42]	Règle de Somme * [43]	Aimantation [44] & [45]	Ce travail * [6]
	Ni (111)	Ni(110)	Ag/Ni (111)	Ag/Ni (111)
$\langle L_z \rangle$	0.05	0.06		0.044±0.01
$\langle S_z \rangle$	0.26	0.27		0.185±0.06
μ_T	0.57	0.6	0.49 ± 0.02	0.42 ± 0.07
L/S	0.19	0.22		0.24±0.08

Tableau III.5 : Comparaison des valeurs des différent moments pour Ni dans différents systèmes.
* : uniquement moment magnétique 3d.

On constate que l'application des règles de somme à la partie imaginaire du facteur de diffusion donne un résultat compatible avec les mesures d'aimantation effectuées sur ces mêmes systèmes multicouche Ag/Ni. Celles-ci montrent une réduction globale du moment magnétique porté par Ni en fonction de la réduction de l'épaisseur de la couche de Ni, conduisant à un moment de $0.55 \mu_B$ à 5K pour une épaisseur de 17.5 Å de Ni. La prise en compte de la réduction de la température de Curie conduit à extrapoler à une valeur de $0.49 \mu_B$ pour le moment porté par Ni dans cette multicouche à température ambiante. L'accord de la détermination par XRMS est donc en bon accord avec les mesures d'aimantation. Les contributions des électrons s et p ne sont toutefois pas prises en compte, et sont généralement de signe opposé à celui du moment 3d.

2.9 / Conclusions

Cette expérience de diffraction magnétique résonante des Rayons-X mous qui est, à notre connaissance, la première à avoir été effectuée a mis en évidence des effets magnétiques importants révélées par la valeur forte du rapport d'asymétrie, jusqu'à 15% d'asymétrie au seuil L_{III} de Ni.

Nous avons ainsi démontré la possibilité, et accessoirement les difficultés, de l'utilisation de la technique XRMS en polarisation circulaire, à l'étude du magnétisme dans des systèmes multicouches. Nous avons en particulier développé une méthode autocohérente d'inversion du signal XRMS, permettant d'obtenir les facteurs de diffusion dépendant de l'aimantation.

L'équivalence entre le signal XMCD et la partie imaginaire du facteur de diffusion atomique magnétique mesuré en XRMS, a ainsi été montrée expérimentalement. Enfin l'obtention de la contribution imaginaire au facteur de diffusion atomique, dépendante de

l'aimantation permet l'application des règles de somme comme en XMCD. Ceci nous a permis d'évaluer un moment magnétique 3d pour le Ni compatible avec des mesures d'aimantation à température ambiante sur ces mêmes systèmes.

Evidemment, l'utilisation du dichroïsme circulaire en absorption apparaît plus aisée et versatile quant à la mesure, et son analyse est beaucoup plus facile que celle de la diffraction, qui nécessite une manipulation des données afin d'obtenir la partie imaginaire du facteur de diffusion atomique magnétique. Cependant pour des multicouches préparées ex-situ qui présentent souvent une couche d'oxydation importante en surface, l'utilisation de la XRMS s'avère un outil judicieux parce qu'elle permet de s'affranchir de la sensibilité à la surface des techniques de détection par rendement d'électrons. Elle présente l'avantage, qui peut être également une limitation dans d'autre cas, de sonder les propriétés du "massif". Bien que les difficultés d'analyse soit réelles, la XRMS ne présente pas certaines limitations de la mesure en détection de fluorescence comme la difficulté d'un traitement correct des corrections de réabsorption pour des systèmes concentrés, et particulièrement lorsque plusieurs canaux de désexcitation par fluorescence sont ouverts. Dans ce cas l'équivalence du signal XMCD en détection de fluorescence et en détection d'électrons n'est pas évidente et fait l'objet d'un débat [46].

3. / Géométrie transverse : polarisation linéaire

Une autre géométrie peut être utilisée dans le cadre de la diffraction magnétique résonante : la géométrie transverse décrite au chapitre II. Celle-ci est la plus utilisée pour les expériences de DMRX dans la gamme des X-durs. Son avantage est surtout de permettre l'utilisation d'une polarisation linéaire, produite plus aisément par un rayonnement synchrotron qu'une polarisation elliptique, et avec en général des brillances supérieures (en particulier pour des onduleurs). Nous avons utilisé cette géométrie de diffraction [47-49] afin de la comparer à la géométrie longitudinale précédemment discutée.

3.1 / Rapport d'Asymétrie - Paramètres d'importance

La figure 3.19 représente schématiquement la géométrie utilisée. L'expression du rapport d'asymétrie a été donnée, pour cette géométrie, par Carra *et al.* [50] dans le cas d'un cristal et pour un état ferromagnétique. Dans le cas d'une multicouche, et comme pour le cas de la géométrie longitudinale, il faut intégrer à ce calcul le facteur de structure décrivant l'empilement des couches. Les mêmes notations que celles pour le cas longitudinal sont utilisées dans la suite (notamment la séparation du facteur de structure en deux composantes, une "magnétique" et une "non-magnétique").

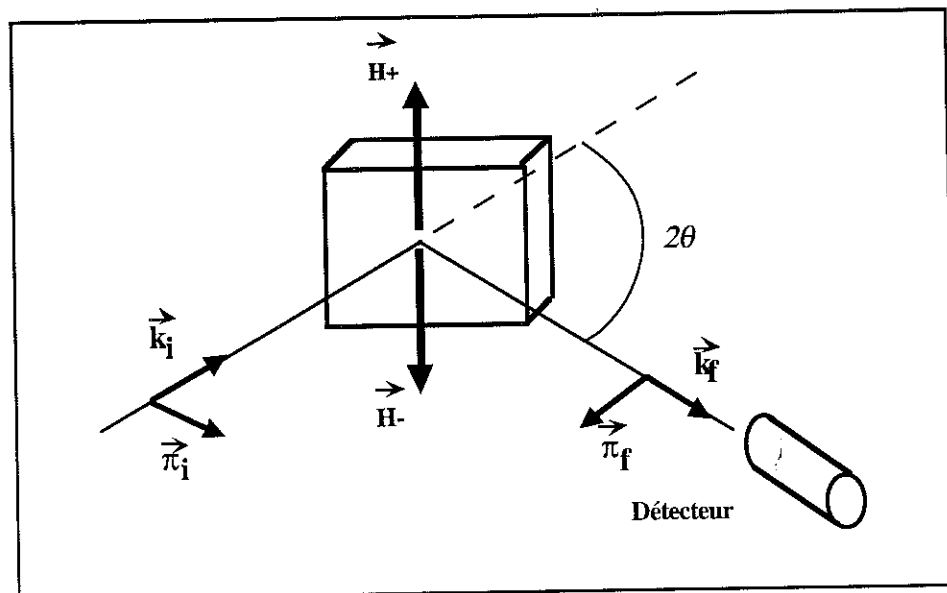


Figure 3.19 : Configuration pour la géométrie transverse en XRMS

Dans cette géométrie transverse (Figure 3.19), le transfert des états de polarisation est simplifié puisque la contribution dépendante du magnétisme et celle de charge donnent le même état de polarisation final (A_π). Le couplage des amplitudes d'origine magnétique et non-magnétique est donc direct.

$$\text{Charge : } \pi_i \rightarrow \pi_f$$

$$\text{Magnétisme : } \pi_i \rightarrow \pi_f$$

$$\text{d'où } I \propto |F + M|^2$$

Avec les notations du paragraphe précédent, le rapport d'asymétrie peut être développé sous une forme analytique (voir Annexe 4 pour le détail du calcul) :

$$R_a = \frac{-2 \tan(2\theta) [F_r M_i - F_i M_r]}{\left(1 + \frac{(1 - \tau_L)}{(1 + \tau_L) \cos^2(2\theta)}\right) (F_r^2 + F_i^2) + \tan^2(2\theta) (M_r^2 + M_i^2)} \quad [\text{III.23}]$$

où τ_L est le taux de polarisation linéaire

Une comparaison de cette formule avec celle obtenue dans le cas de la géométrie longitudinale (formule III.5) est intéressante. Un premier point à souligner est la différence dans les dépendances avec l'angle de diffraction θ . Le terme angulaire prépondérant est en $\cos^3(2\theta)$ en géométrie longitudinale (formule III.5), réduisant donc les effets magnétiques aux grands angles, alors qu'il est en $\tan(2\theta)$ en géométrie transverse (équation III.23), augmentant l'amplitude pour des angles proche de 45° , mais la diminuant fortement aux petits angles. Cependant, la dépolarisation du faisceau, c'est à dire le fait que le taux linéaire ne soit jamais égal strictement à 1, conduit à la réduction de l'amplitude du rapport d'asymétrie [50].

Le deuxième point à noter est la différence de forme du terme d'interférence figurant au numérateur dans chacune des expressions du rapport d'asymétrie. Dans la géométrie longitudinale, ce terme est en $F_r M_i + F_i M_r$ produit des parties réelles et imaginaires des facteurs de structure de charge et magnétique. Par contre, dans la géométrie transverse il est leur produit croisé (terme en $F_r M_i - F_i M_r$). Dans le cas des rayons X durs la partie F_r du facteur de structure est généralement dominante sur F_i , on s'attend donc à trouver, pour la dépendance en énergie

du rapport d'asymétrie, des formes de signal proches de celle d'une partie réelle et donc d'une dérivée de lorentzienne dans le cas longitudinal, et au contraire proche de celle d'une partie imaginaire donc d'une lorentzienne pour le cas transverse. Cependant, lorsque l'amplitude de résonance magnétique est forte comme c'est le cas pour les seuils L de métaux 3d tel que Fe, Co et Ni, la forme du signal d'asymétrie est plus complexe. Elle peut également prendre des formes de dérivée dans la géométrie transverse. Ceci est illustré par la suite par les différentes formes des rapports d'asymétrie mesurées aux seuil L de Fe, Co et Ni dans différentes multicouches.

3.2. Multicouche Cu/Co : influence des plans morts

3.2.1 : Expérience et Echantillon

Nous avons utilisé un échantillon multicouche $\text{Cu}_{50\text{\AA}}[\text{Cu}_{(16\text{\AA})}/\text{Co}_{(37\text{\AA})}]_{15}\text{Fe}_{50\text{\AA}}/\text{Si}$ orienté [111] afin d'étudier le signal de DMRX en géométrie transverse sur plusieurs ordres de diffraction de la multicouche et ce aux seuils L_{III} et L_{II} du Co (778 et 793 eV respectivement). Cet échantillon a été préparé par J.F. Bobo au Laboratoire de Physique des Matériaux de Nancy [51]. Le cuivre est déposé par pulvérisation DC magnétron, et le cobalt par RF magnétron sous une pression de base de 4×10^{-3} mBar. Les multicouches sont déposées sur un buffer de 50Å de Fer et protégées par une couche de cuivre de 50Å. Le procédé de dépôt permet d'obtenir des épaisseurs réelles des couches comparables aux valeurs nominales avec une bonne reproductibilité. Une caractérisation par réflectivité des rayons X permet d'apprécier la bonne qualité des ces couches. Sur une série d'échantillons du type $\text{Cu}_{60\text{\AA}}[\text{Co}_{12\text{\AA}}/\text{Cu}_{x\text{\AA}}]_{15}\text{Fe}_{50\text{\AA}}$ (où x varie), les affinements de spectres X aux petits angles donnent une rugosité de 1Å entre couches de Cobalt et de Cuivre.

Les paramètres de la multicouche que nous avons étudiée sont donnés dans le tableau III.6. Les paramètres cristallins (a) et les distances interplan (d_{111}) sont ceux du Co et du Cu massif en phase fcc.

	ρ (gr/cm ³)	a (Å)	d_{111} (Å)	σ (Å ⁻²)	e (Å)
Cu	8.96	3.615	2.086	0.1773	16
Co	8.9	3.544	2.016	0.1853	37

Tableau III.6 : paramètres structuraux de la multicouche Cu/Co

σ représente la densité atomique dans les plans (111), et e est l'épaisseur des couches.

Les expériences ont été réalisées sur la station U4B (ligne Dragon), au NSLS à Brookhaven. La monochromatisation du faisceau X est assurée par un réseau optique à 1200 traits/mm. La résolution en énergie est déterminée par la taille des fentes d'entrée et de sortie. Celles-ci ont été fixées à 60 μm , ce qui correspond à une résolution calculée de 460 meV au seuil du Co. L'intensité du faisceau est mesurée grâce au photocourant produit par une grille d'or. L'expérience est effectuée sur un goniomètre deux axes diffractant dans le plan horizontal (axes verticaux). Une bobine de type Bitter constituée par des plaques de cuivre est montée autour de l'échantillon de manière à produire un champ magnétique vertical pouvant délivrer 1400 Gauss. Le détecteur est un compteur proportionnel à gaz, situé derrière une paire de fentes définissant une ouverture de 1° .

Les spectres de diffraction ont été enregistrés aux seuils L_{II} et L_{III} du Co, pour les ordres 2 et 3 de diffraction (figure 3.20). L'ordre 1 n'a pu être mesuré, car il entraînait systématiquement la saturation du détecteur, bien que le flux incident soit réduit à son minimum, en fermant au maximum les fentes (problème spécifique de ce type de compteur proportionnel à gaz qui sature à 16000 cps environ).

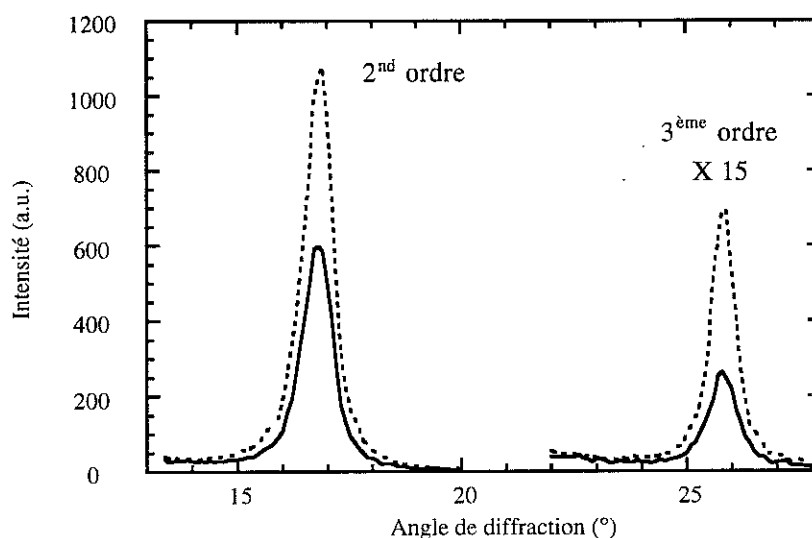


Figure 3.20 : Pics de Bragg de la multicouche Cu/Co d'ordres 2 et 3 pour des photons incidents de 779.5 eV et pour les deux orientations du champ magnétique appliqué.

La position des pics de Bragg en fonction de l'énergie donne une mesure de contrôle pour la période de la multicouche. Celle-ci est trouvée à 54.7 Å soit un écart de 1.7 Å par rapport à la valeur nominale. Nous avons supposé cette erreur équirépartie sur les couches de Co et de Cu. Les épaisseurs utilisées sont donc de 37.8 Å pour le Co et 16.9 Å pour le Cu.

3.2.2 : Mesure du Rapport d'asymétrie et simulation

Les spectres de diffraction ont été enregistrés pour différentes énergies dans la gamme des seuils L_{II} et L_{III} du Co. La procédure pour l'analyse est identique à celle décrite au paragraphe III.2.3 : affinement des pics de diffraction par un profil pseudo-voigt au moyen du programme ABFFit. Le coefficient de mélange se situe toujours dans la gamme 0.9-1 attestant du caractère principalement lorentzien de la forme du pic dominée par l'absorption.

Les rapports d'asymétrie déterminés à partir de l'intensité intégrée des pics de Bragg, ainsi que de leur amplitude au maximum sont calculés en utilisant les paramètres donnés par l'affinement lorentzien des pics de Bragg. La comparaison de ces deux mesures ne montre aucune différence quant à leur forme et amplitude (cf figure 3.21).

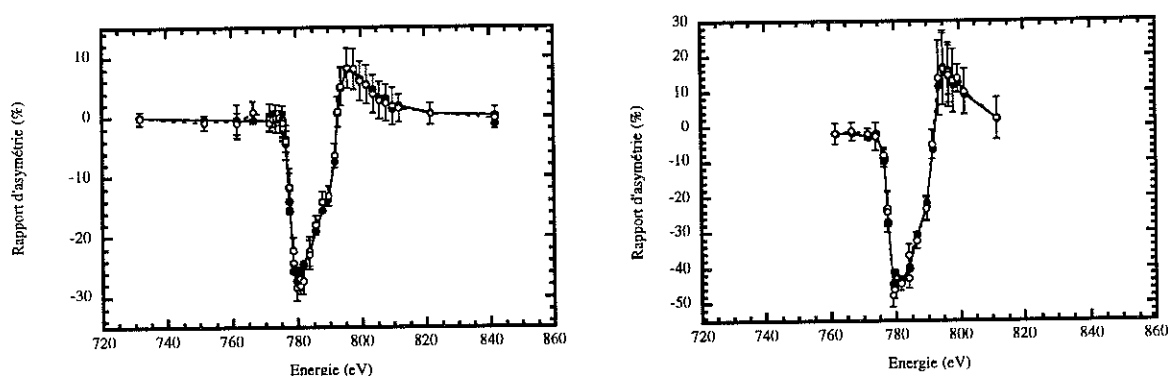


Figure 3.21 : Comparaison du rapport d'asymétrie obtenu sur l'intensité intégrée (•) et sur l'intensité au maximum du pic de Bragg (o), pour les pics de Bragg d'ordre 2 (figure de gauche) et d'ordre 3 (figure de droite), pour une multicouche Cu/Co

Le calcul cinématique de l'intensité diffractée par la multicouche conduit à un pic de forme lorentzienne dont la largeur à mi-hauteur est proportionnelle au coefficient d'absorption μ . Etant donnée l'utilisation de la polarisation linéaire, aucune absorption d'ordre magnétique ne se produit et aucune correction n'est à apporter à μ . La largeur des pics de Bragg qui est donnée par l'absorption est donc indépendante de l'aimantation des couches. Dans ces conditions, l'aire intégrée d'une raie lorentzienne, étant le produit de sa hauteur par sa largeur (à une constante de proportionnalité près) est donc directement proportionnelle à l'intensité au maximum du pic de Bragg. Ceci explique que les rapports d'asymétrie mesurés sont les mêmes que l'on considère l'amplitude ou l'intensité intégrée des pics. Dans la suite, nous utilisons le rapport d'asymétrie mesuré sur les intensités au maximum du pic de Bragg. Celles-ci pourront être simulées directement grâce au facteur de structure de la multicouche à $q=2\pi n/\Lambda$, où n est l'ordre de diffraction et Λ la période. Les barres d'erreurs données sur la figure 3.21 sont obtenues à

partir des intensités au maximum des pics en supposant une erreur statistique en $\frac{1}{\sqrt{N}}$ où N est le nombre de photons comptés.

Comme nous avons montré au paragraphe 2 l'équivalence entre le signal de dichroïsme et la partie imaginaire du facteur de diffusion magnétique résonant, cette dernière est calculée à partir du spectre d'absorption magnétique fournissant à la fois le facteur anormal f'' et sa partie magnétique (MCXD) en unités d'électron. Les parties réelles sont calculées par transformation de Kramers-Kronig. Les signaux de dichroïsme obtenus pour Co massif sont montrés sur la figure 3.22 pour les parties réelles et imaginaires [52]. Ces spectres correspondent à du Co portant un moment magnétique de $1.77 \mu_B$ pour le moment 3d.

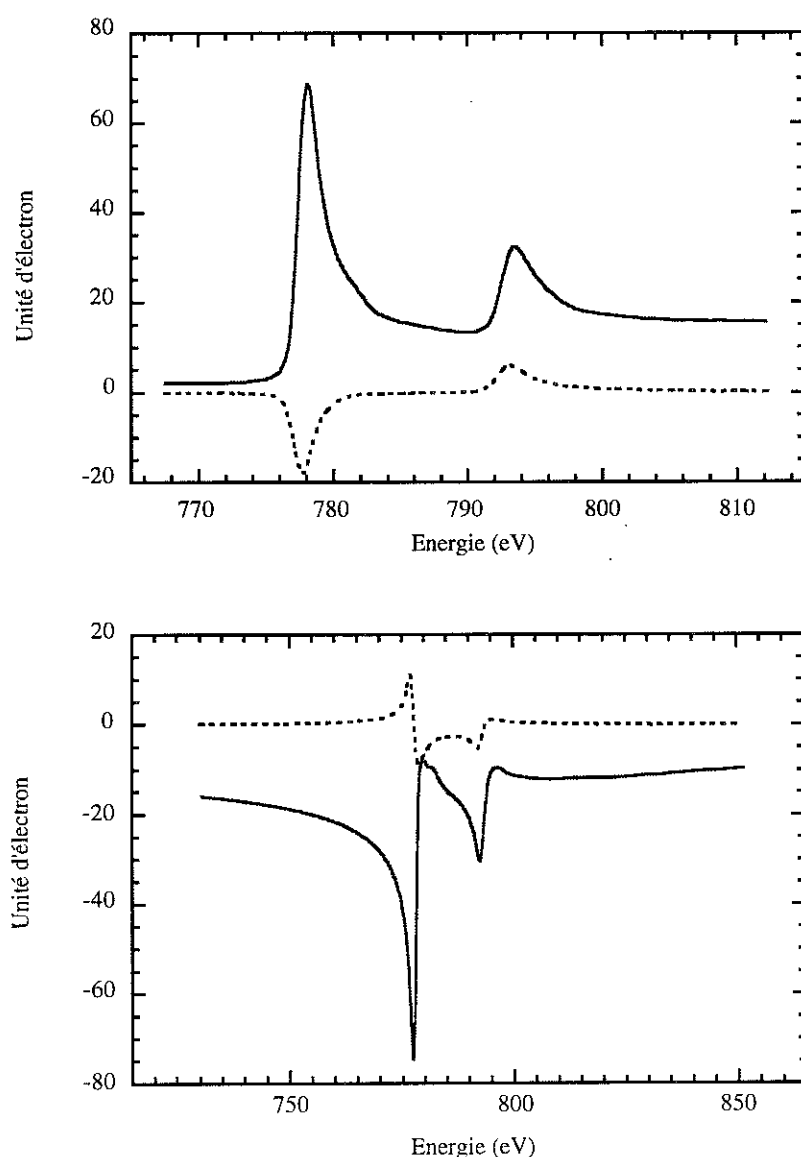


Figure 3.22 : Facteur anomaux non-magnétique (—) et magnétique (---) pour Co partie imaginaire (figure du haut) et partie réelle (figure du bas).

Le calcul dont le résultat est présenté figure 3.23 pour les deux ordres enregistrés, utilise les paramètres nominaux de la multicouche donné au tableau III.6, excepté une diminution de 10% sur la densité atomique du Co par rapport au Co massif qui est nécessaire afin de simuler correctement la forme du rapport d'asymétrie. Ce calcul est effectué en supposant l'absence complète de plan magnétiquement mort aux interfaces et en utilisant directement le dichroïsme du Co massif et sa transformée de Kramers-Kronig. Le taux de polarisation linéaire du faisceau incident est pris égal à 0.97 (valeur calculée au seuil du Co pour la ligne U4B).

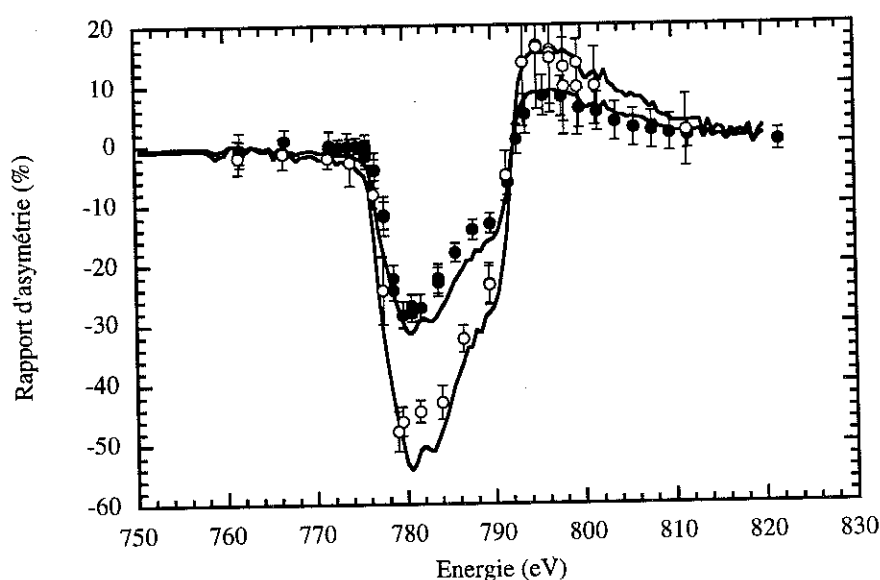


Figure 3.23 : Rapport d'asymétrie expérimental et simulé pour les ordres 2 (•) et 3 (o) de diffraction avec les paramètres nominaux de la multicouche Cu/Co.

Etant donnée l'incertitude sur les épaisseurs relatives des couches de Co et de Cu, l'évolution du rapport d'asymétrie calculé en fonction de l'épaisseur de Co a été simulée. Le résultat est que la variation de l'épaisseur de la couche de Co n'entraîne aucune variation ni de la forme, ni de l'amplitude du Ra pour des épaisseur de Co variant de $\pm 5 \text{ \AA}$ autour de la valeur attribuée.

Un paramètre important pour les propriétés magnétiques des couches minces et multicouches magnétiques est l'éventuelle présence de plans magnétiquement inertes aux interfaces et la quantification de leur nombre.

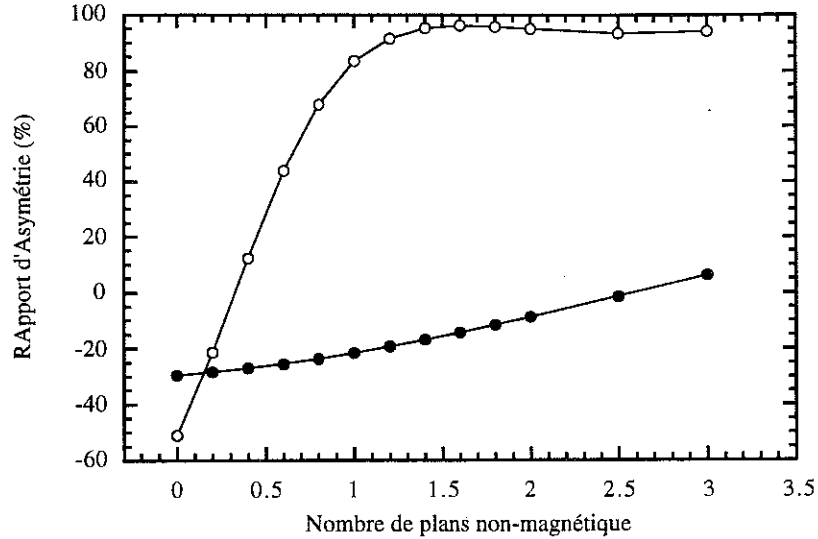


Figure 3.24 : Evolution du maximum du Ra en fonction du nombre de plans non magnétiques aux interfaces pour les ordres 2 (•) et 3 (o) de diffraction pour une multicouche Cu/Co

Cette contribution peut être prise en compte aisément dans le calcul de la diffraction magnétique des rayons X, en incluant à chaque interface, une couche d'une certaine épaisseur d'atomes de Co dont le facteur de diffusion magnétique est nul. L'évolution du rapport d'asymétrie avec l'épaisseur de la couche morte est montrée sur la figure 3.24 pour les ordres 2 et 3 de diffraction de la multicouche. Celle-ci est forte pour les deux ordres et plus particulièrement pour le 3^e ordre de diffraction avec un changement de signe à moins d'un plan mort à chaque interface. On constate aussi une grande différence de comportement entre les deux ordres. Ces simulations montrent la très grande sensibilité du rapport d'asymétrie à la structure magnétique, avec des comportements très différents selon les ordres de diffraction.

En première approximation, l'amplitude du rapport d'asymétrie est en effet reliée au moment porté par l'atome magnétique (n_m), ainsi qu'à l'épaisseur de la couche magnétique donnée par $(n-2n_o)d$, où n est le nombre de plan de Co dans une couche et n_o le nombre de plans magnétiquement inertes à chaque interface, $n-2n_o$ est donc le nombre de plans d'atomes magnétiques et d la distance interplans. A l'ordre l de diffraction (angle de diffraction θ_l) elle s'écrit :

$$Ra \propto n_m \tan(2\theta_l) \sin\left(\frac{\pi(n-2n_o)d}{\Lambda}\right)$$

Cette relation montre que l'amplitude de diffusion et l'épaisseur de la couche magnétique peuvent être décorrélées par la mesure du rapport d'asymétrie sur deux ordres de diffraction. Dans le cas des couches Cu/Co, la réponse est donc sans ambiguïté. Le rapport de 1.7 entre les amplitudes du Ra aux 3° et au 2° ordre, et leur même signe implique l'absence complète de plans magnétiquement morts.

3.2.3 : Conclusion

Cette première expérience en géométrie linéaire a montré des amplitudes d'effets de diffraction magnétique résonante importants : jusqu'à 55% d'asymétrie sur l'ordre 3 de diffraction au seuil L_{III} de Co à 780 eV. Elle montre en outre la grande sensibilité aux interfaces entre couches magnétiques et non-magnétiques, qui pourrait être mise à profit pour la mesure quantitative de l'épaisseur d'une éventuelle couche morte aux interfaces ayant une aimantation différente de celle de l'intérieure des couches. Outre le taux de polarisation linéaire du faisceau (paramètre qui peut être déterminé facilement), deux paramètres sont cependant corrélés quant à l'amplitude du rapport d'asymétrie : l'amplitude du moment magnétique reliée à celle du facteur f''_{mag} et l'épaisseur non magnétique totale. Nous avons montré qu'il est possible de décorréler ces deux paramètres par la mesure de 2 ou plusieurs ordres de diffraction.

Le Co dans cette multicouche présente donc un moment magnétique d'origine 3d de 1.77 μ_B comme Co massif (donné par les règles de somme appliquée à la partie imaginaire du facteur de diffusion magnétique), sans indication forte pour la présence de plans morts aux interfaces. Etant donné la variation de l'amplitude du Ra en fonction du nombre de plans morts, la présence de 1 plan mort (2Å) à chaque interface produirait une variation importante sur l'ordre 3 (avec un changement de signe).

Une tentative de mesure aux seuils $L_{II,III}$ du Cu a montré un très faible rapport d'asymétrie au seuil L_{III} de Cu suggérant une polarisation magnétique induite des électrons 3d de Cu. Cependant le signal reste très faible (moins de 0.5% d'asymétrie) et le signal sur bruit obtenu ne permet pas une étude plus approfondie.

3.3 / Multicouche Ag/NiFe : Séparation des contributions magnétiques des composants d'un alliage

3.3.1 : Expérience et échantillon

L'échantillon choisi pour cette étude est une multicouche Ag/NiFe (ANF137D2) préparée selon les mêmes conditions que la multicouche Ag/Ni précédemment utilisée. Le dépôt s'effectue par pulvérisation cathodique à 100 K, à partir d'une cible d'Ag et d'une cible de permalloy de composition 81% en Ni et 19% en Fe. L'épaisseur de la multicouche déposée est de l'ordre de 0.5 μm . La direction de croissance est [111], comme pour les multicouches Ag/Ni.

Ces multicouches à base de permalloy présentent des propriétés intéressantes de couplage magnétique (couplage antiferromagnétique et couplage biquadratique entre couches ferromagnétiques, selon les épaisseurs des sous-couches [53]), ainsi que des magnétorésistances suffisamment importantes pour envisager leur utilisation industrielle dans des têtes d'enregistrement et de lecture magnétiques [54, 55]. L'aimantation se situe dans le plan des couches de permalloy. L'application d'un champ magnétique faible (300 Oe) permet de les coupler ferromagnétiquement.

La multicouche choisie pour cette étude présente une période de 24 Å et un état de couplage antiferromagnétique à température ambiante et sous champ nul. Le premier ordre de diffraction à $q=0.26 \text{ Å}^{-1}$ donne un pic à $\theta=17.6^\circ$ au seuil L_{III} de Ni (853 eV) et $\theta=21^\circ$ à celui de Fe (707 eV).

Les distances entre plans d_{111} pour les couches NiFe sont obtenues par extrapolation à partir des valeurs d_{111} du Ni massif, du Ni dans Ag/Ni [10], et du NiFe massif. σ représente la densité atomique surfacique dans le plan des couches et e l'épaisseur de chacune des sous-couches (tableau III.7). n est le nombre de plans atomiques pour chacune des sous-couches.

	$d \text{ (Å)}$	$\sigma \text{ (Å}^{-2}\text{)}$	n	$e \text{ (Å)}$
Ag	2.377	0.1394	4.63	11
NiFe	2.059	0.1876	6.33	13

Tableau III.7 : Paramètres de la multicouche Ag/NiFe (Echantillon ANF137D2)

Les expériences ont été réalisées elles aussi sur la station expérimentale U4B, décrite précédemment. Le monochromateur permet de travailler aussi bien aux seuils $L_{II,III}$ du Ni qu'à ceux du Fe, tout en conservant une bonne résolution en énergie. L'ouverture des fentes du monochromateur a été fixées à 10 μm aux seuils du Ni et 5 μm aux seuils du Fe, ce qui correspond à une résolution de 160 meV et 90 meV respectivement.

Les spectres de diffraction (figure 3.25) ont été enregistrés aux seuils L_{II} et L_{III} du Ni et du Fe. La figure 3.25 montre le 1^{er} pic de diffraction enregistré au seuil L_{III} de Fe en renversant le sens du champ magnétique appliqué dans le plan des couches pour les coupler ferromagnétiquement.

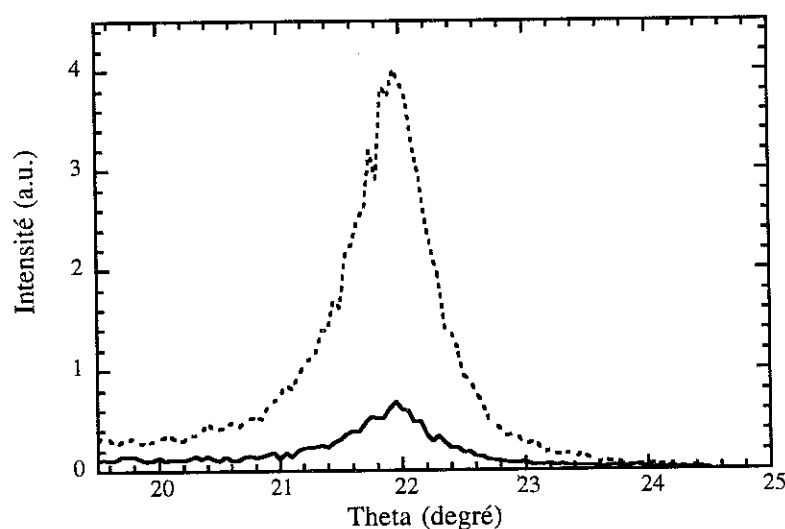


Figure 3.25 : 1^{er} ordre de Bragg de l'empilement multicouche Ag/NiFe à 707.5 eV (seuil L_{III} du Fer : 707 eV). Les deux courbes sont obtenues en renversant l'aimantation

La figure 3.25 met en évidence des effets magnétiques résonants extrêmement forts au seuil L du Fer. Le pic présente en effet un rapport d'asymétrie de 75%. Ceci implique que le terme de charge et le terme dépendant du magnétisme soient du même ordre de grandeur.

3.3.2 : Mesure du Rapport d'asymétrie et simulation.

La procédure d'analyse est la même que celle utilisée pour l'expérience précédente. L'affinement de la position des pics de Bragg en fonction de la longueur d'onde (figure 3.26) donne une mesure de contrôle pour la période de la multicouche. Un affinement linéaire loin des seuils donne une période $\Lambda=24.19$ Å au seuil du Ni et $\Lambda=23.97$ Å au seuil du Fe, soit une période moyenne de 24.07 ± 0.12 Å.

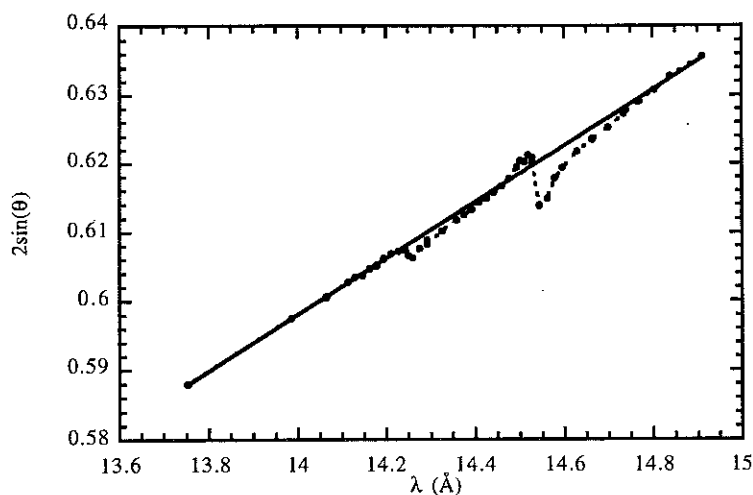


Figure 3.26 : Variation de la position du pic de Bragg de premier ordre en fonction de la longueur d'onde incidente aux seuils L du Ni.

Les deux mesures du rapport d'asymétrie calculé à partir des intensités au maximum du pic de Bragg d'ordre 1 et des intensités intégrées montrent des résonances importantes au seuil L_{III} du Ni (25% à comparer aux 15% obtenus en géométrie longitudinale, cf §3.2) et extrêmement forte au seuil du Fe (jusqu'à 75%). La forme des rapports d'asymétrie est totalement différente pour les deux seuils : forme proche de celle du signal XMCD pour le Ni et plus proche de sa dérivée dans le cas du Fer, donc ressemblant plutôt à la partie réelle du facteur de diffusion magnétique (Figure 3.27).

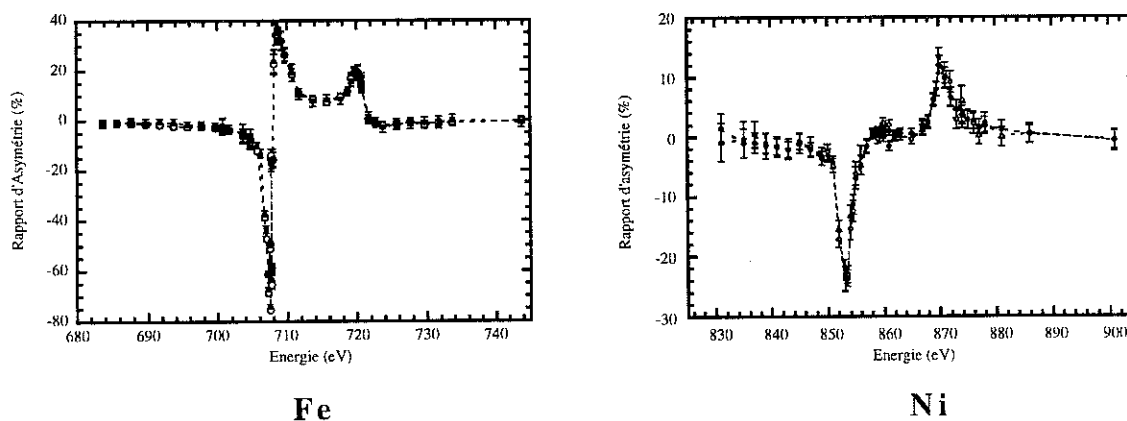


Figure 3.27 : Comparaison des rapports d'asymétrie obtenus pour une multicouche Ag/NiFe en utilisant l'intensité intégrée (•) et l'intensité au maximum (o) du pic de Bragg pour les seuils L_{II} et L_{III} du Fer (figure de gauche) et du Ni (figure de droite)

Comme nous l'avons déjà observé dans le cas du Cobalt dans la multicouche Cu/Co, les rapports d'asymétrie mesurés au maximum du pic de Bragg et à partir des intensités intégrées ont les mêmes valeurs. Ceci est confirmé par le fait que les largeurs à mi-hauteur du pic sont les mêmes pour les deux orientations opposées de l'aimantation (Figure 3.28).

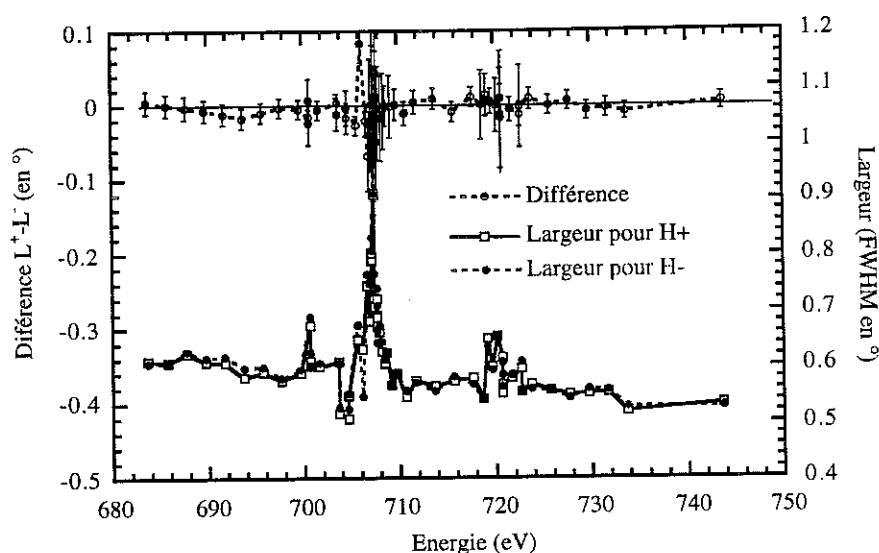


Figure 3.28 : Largeurs à mi-hauteur en degré pour les deux orientations de l'aimantation et leur différence

Dans la simulation des rapports d'asymétrie, les facteurs de diffusion magnétique utilisés sont tirés de mesures de dichroïsme en absorption sur du Fer (bcc) et du Ni (fcc) massifs [52], représentées sur la figure 3.29.

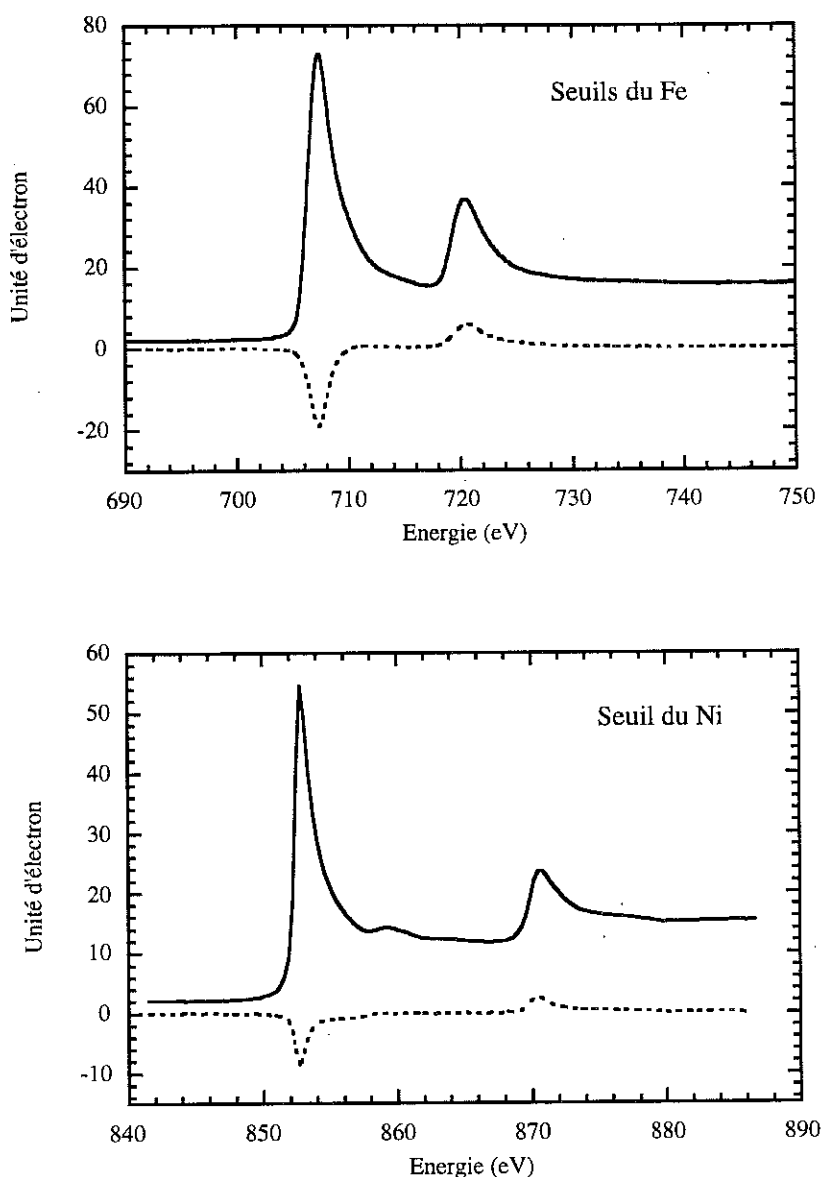


Figure 3.29 : Spectres d'absorption isotrope (—) et de dichroïsme (-----) du Fer et du Ni utilisés lors du calcul de Ra
Figure du haut : Fe, Figure du bas : Ni

Les spectres de rapports d'asymétrie calculés pour les seuils L_{II} et L_{III} , pour le maximum du pic de Bragg (figures 3.30 et 3.31) sont en très bon accord avec l'expérience, pour ce qui est de la forme et des amplitudes en particulier aux seuils du Fer pour lesquels l'accord est excellent. On note cependant un excès de largeur pour le calcul au seuil L_{III} du Ni, dont l'origine n'est pas aisée à attribuer.

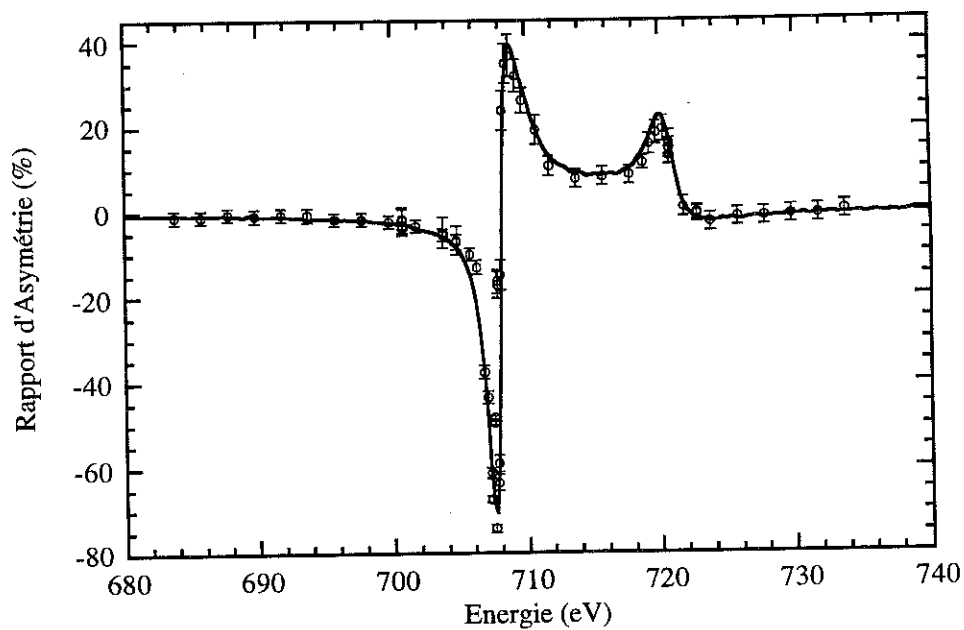


Figure 3.30 : Calcul du rapport d'asymétrie aux seuils L du Fe en polarisation linéaire et en utilisant le signal XMCD du fer bcc massif

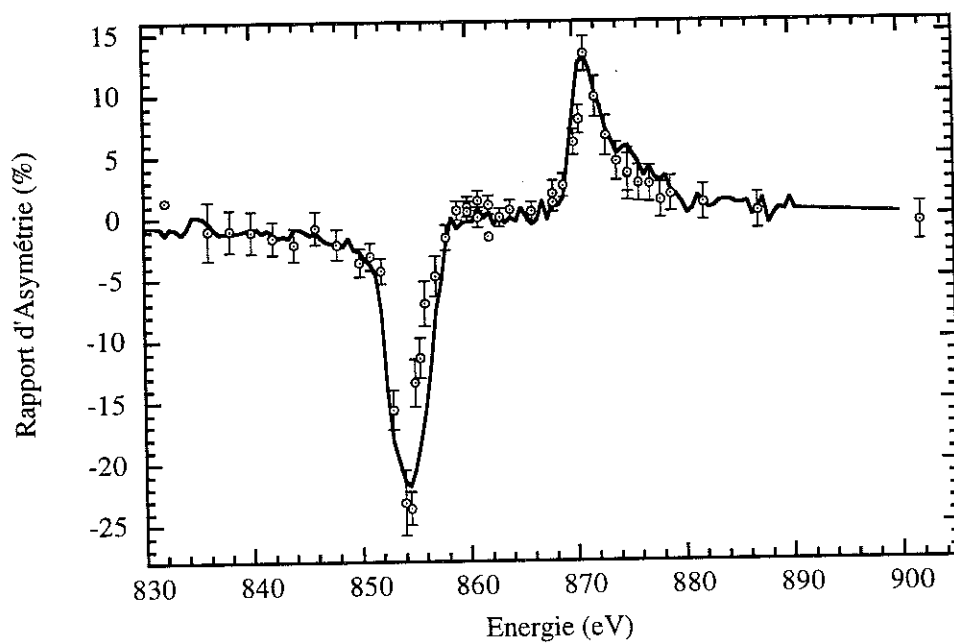


Figure 3.31 : Calcul du rapport d'asymétrie aux seuils L du Ni en polarisation linéaire et en utilisant les signaux de dichroïsme circulaire de Ni massif fcc.

Comme il a été précisé précédemment, le taux de polarisation linéaire du faisceau est un paramètre important pour l'amplitude du rapport d'asymétrie. Afin de cerner son importance, le rapport d'asymétrie a été calculé à plusieurs énergies en fonction du taux de polarisation linéaire. La variation du maximum du rapport d'asymétrie au seuil L_{III} du Fer est tracée en fonction du taux de polarisation linéaire sur la figure 3.32. Dans le cas de la ligne Dragon, ce taux, calculé au centre de l'orbite synchrotron, est calculé à une valeur de 97 %, pour une énergie correspondant au seuil du Fer, conduisant à une réduction maximum du rapport d'asymétrie de 2 à 3 % selon l'énergie. Les calculs de Ra présentés figure 3.30 et 3.31 ont été effectués avec un taux de polarisation linéaire égal à 0.97.

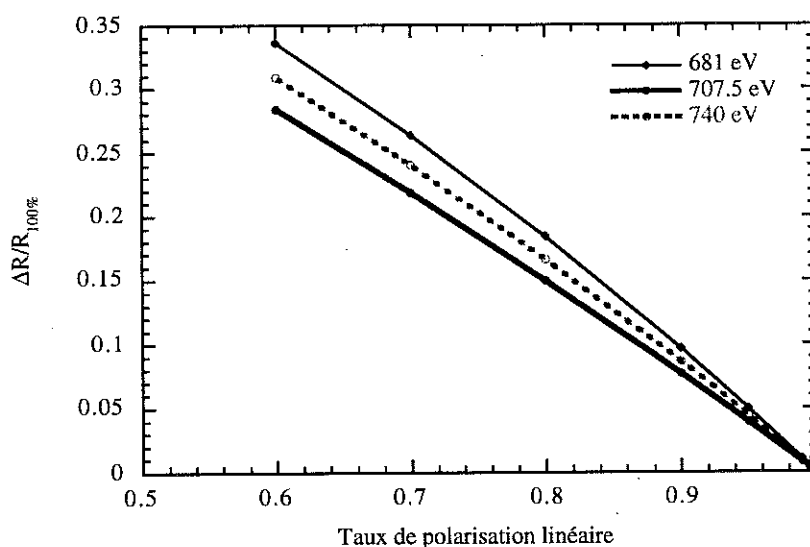


Figure 3.32 : Variation du rapport d'asymétrie en fonction du taux de polarisation linéaire à différentes énergies incidentes

Un essai pour déterminer directement les signaux dichroïques du Fer et du Ni utilisant la méthode auto-cohérente décrite dans le cas longitudinal (§2.7) a été entrepris. Aucune solution stable n'a pu être obtenue. Cet échec nous semble lié à la forme de la dépendance en énergie des rapports d'asymétrie qui s'annulent très rapidement en dehors des 2 résonances : le signal en dehors des résonances étant faible, l'erreur introduit dans la méthode de calcul est importante, d'autant plus que les relations de Kramers-Kronig amplifient ces incertitudes.

Les simulations effectuées précédemment ont été réalisées à partir des spectres de dichroïsme du Fer et du Ni massif. L'application des règles de somme au dichroïsme du Fer bcc conduit à un moment 3d porté par le Fer de $2.06 \mu_B$ [37], faible par rapport à la valeur attendue pour du Fer dans le permalloy. Pour du permalloy massif, et à basse température, le

moment du Fer est en effet estimé de l'ordre de $2.8 \mu_B$. Ce résultat à priori surprenant nous a conduit à craindre une séparation de phase dans la couche.

Il nous est donc apparu nécessaire de s'assurer de la structure et surtout de l'homogénéité de répartition de l'alliage dans cette multicouche, pour être sûr qu'il n'y a pas une démixtion locale en zones riches en Fer (cc) et zones riches en Ni (cfc). La structure et les environnements locaux du Fer et du Ni ont donc été caractérisés au moyen de mesures XANES et d'EXAFS aux seuils K de chacun des éléments.

3.3.3 : Etude X.A.F.S. au seuil K du Ni et du Fe dans Ag/NiFe

3.3.3.1. / Introduction :

Pourquoi ces mesures de X.A.S (X-ray Absorption Spectroscopy)? Celles-ci se sont avérées nécessaires afin d'une part de s'assurer de l'environnement local des atomes de Fe et de Ni dans la multicouche, et d'autre part d'essayer de quantifier une éventuelle inhomogénéité des distributions des atomes de Fe et de Ni aux interfaces. Les mesures de X.A.N.E.S (X-Ray Absorption Near Edge Structure) donnent directement des renseignements sur la symétrie et la nature de l'environnement local des atomes de Fe et de Ni par comparaison à des spectres des mêmes atomes dans des environnements de références (cfc et cc). Les oscillations E.X.A.F.S donnent quant à elles des renseignements quantitatifs sur les distances interatomiques ainsi que sur le nombre de voisins pour chacun des éléments considérés.

Ces expériences ont été réalisées sur la multicouche Ag/FeNi étudiée en diffraction magnétique des rayons-X, ainsi que sur une autre couche de mêmes épaisseurs nominales de couches et préparée simultanément, mais ayant subi un recuit thermique à 250° . Une augmentation, puis une chute brutal du signal de magnétorésistance est en effet observée dans ces échantillons après recuit [55], d'ou l'intérêt de cette expérience d'EXAFS pour essayer de caractériser l'évolution des interfaces et d'aider à la compréhension de cette variation de la magnétorésistance.

3.3.3.2. / Rappels sur la spectroscopie d'absorption X.

Mesure du coefficient d'absorption

La spectroscopie d'absorption X consiste à mesurer la variation du coefficient d'absorption dans un domaine en énergie proche d'un seuil caractéristique d'une transition électronique d'un des éléments constituant le matériau. Au niveau du seuil d'absorption, se produit une discontinuité correspondant à l'augmentation de la section efficace d'absorption. La mesure expérimentale de cette section efficace peut s'effectuer de différentes manières :

- En transmission. Dans ce cas l'intensité transmise est liée à l'intensité incidente par la loi de Beer-Lambert: $I = I_0 e^{-\mu(E)t}$, où $\mu(E)$ est le coefficient d'absorption linéaire à l'énergie E.
- En mode de détection de fluorescence. Dans ce cas l'intensité de fluorescence est reliée au coefficient d'absorption par des relations plus complexes, faisant intervenir les phénomènes de réabsorption du faisceau incident et émergent. (voir paragraphe 2.4 de ce chapitre)
- En mode de détection des électrons secondaires (rendement total). Dans ce cas, l'intensité mesurée est directement proportionnelle au coefficient d'absorption. Le faible libre parcours moyen des électrons permet de sonder la proche surface. La profondeur typique de pénétration est de l'ordre de 100 angströms.

Dans le cas des multicouches, les mesures ont été effectuées en mode de détection du rendement total d'électrons (TEY = total electron yield), aux seuils K de Fe (7112 eV) et de Ni (8333 eV). Ce choix se justifie par le fait que, d'une part, elles sont déposées sur un substrat de Silicium trop épais pour permettre des mesures en transmission, et que d'autre part, il s'agit d'échantillons concentrés pour lesquels les corrections de réabsorption sont compliquées à mettre en oeuvre dans le cas de la mesure de fluorescence et limitent la précision des données.

Le X.A.N.E.S

La région dite de X.A.N.E.S s'étend sur un domaine en énergie de 30 à 40 eV au delà du seuil d'absorption. Dans cette région le photoélectron possède une faible énergie et donc un fort libre parcours moyen, d'où la sensibilité du XANES à l'ordre à moyenne distance. Dans ces conditions, il convient de tenir compte de la structure électronique au voisinage du seuil, et de la diffusion multiple du photoélectron dans l'état final pour interpréter quantitativement ces structures XANES à plus haute énergie. Des informations peuvent cependant être obtenues par

simple comparaison avec des références, notamment la valence de l'atome absorbeur par la position du seuil et la coordination et la géométrie du site de l'atome absorbeur.

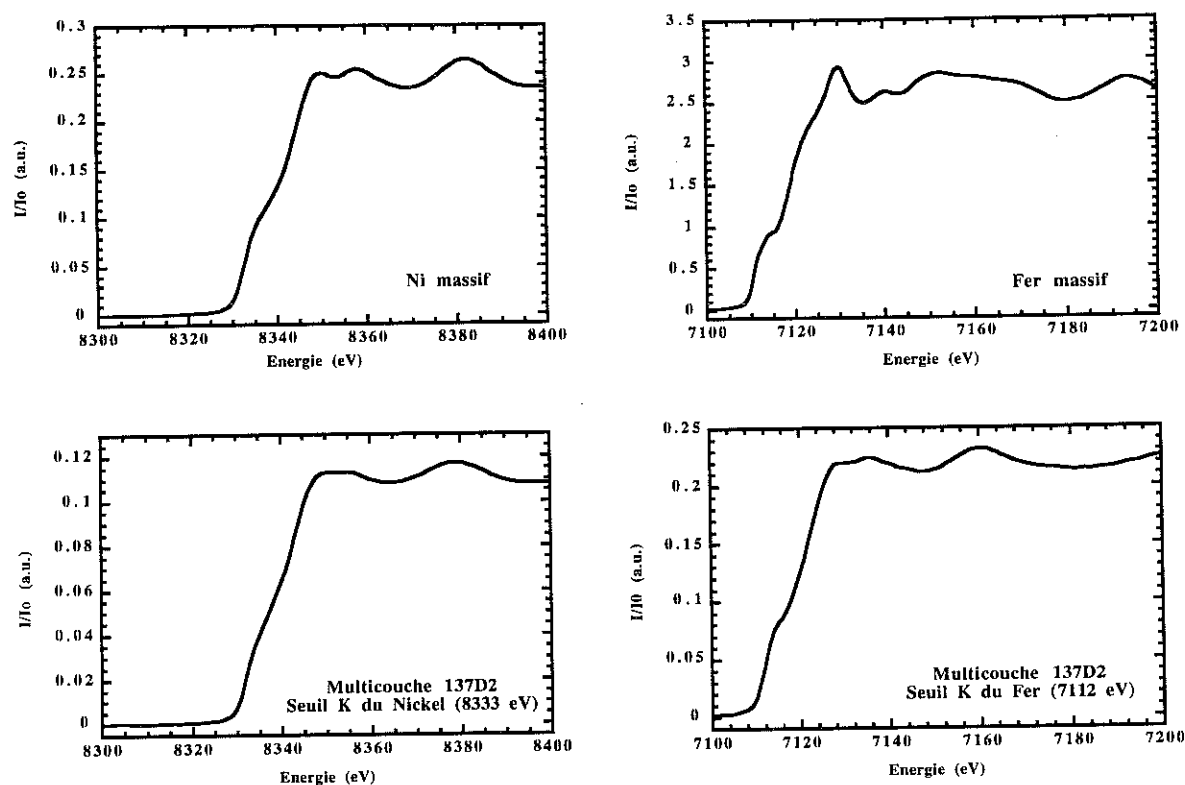


Figure 3.33 : Comparaison des signaux XANES aux seuils K du Ni massif (fcc) et du Fer massif (bcc) avec les seuils du Ni et du Fe pour la multicouche 137D2

Dans ces conditions, la comparaison directe de spectres du composé dont la symétrie est à identifier, avec ceux de composés modèles donne aisément des informations qualitatives sur le type d'environnement de l'élément considéré. Il est en effet connu que les métaux tel que Cr et Fe présentent dans leur état massif un spectre XANES caractéristique de la structure bcc, alors que Co, Ni, Cu présentent un spectre XANES caractéristique d'un empilement compact fcc ou hcp.

Cette approche simple a été utilisée pour s'assurer du type d'environnement local des atomes de Fer et de Nickel dans les deux multicouches. Les spectres XANES mesurés aux seuils K du Fer et du Ni dans la multicouche 137D2 sont présentés sur la figure 3.33, en comparaison à ceux obtenus pour du Ni (fcc) et du Fer (bcc) massif.

La conclusion directe de ces comparaisons est que le Fer et le Ni se trouvent effectivement dans un environnement fcc pour les multicouches, puisque les spectres XANES correspondants

présentent les mêmes signatures que celles du Ni massif fcc. De plus, les mêmes spectres sont obtenus pour les deux orientations du champ électrique parallèle et perpendiculaire aux plans des couches, ne montrant pas d'anisotropie structurale. Cette simple mesure nous permet donc d'une part de rejeter l'hypothèse de la formation de clusters d'atomes de Fer dans une structure bcc à l'intérieur de la couche de NiFe, et d'autre part de conclure à l'isotropie de l'empilement compact dans cet échantillon.

3.3.3.3 / Formalisme de l'E.X.A.F.S

Dans la partie du seuil d'absorption située au-delà de 40 eV se produisent des oscillations dans le coefficient d'absorption d'un élément inclus dans un composé (par opposition au cas d'un atome libre). Ces oscillations, appelées E.X.A.F.S (Extended X-ray Absorption Fine Structure), sont dues aux interférences entre l'onde électronique émise par l'atome absorbant et celles qui sont rétrodiffusées par les atomes voisins (Figure 3.34).

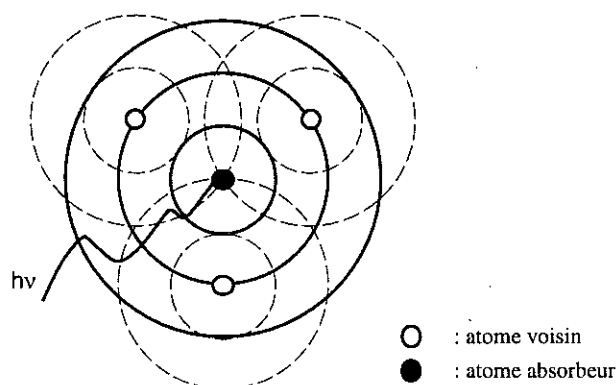


Figure 3.34 : Illustration du phénomène d'interférences entre l'onde émise (—) par l'atome absorbant et l'onde rétrodiffusée (- -) par les atomes voisins

Dans ces conditions, les modulations du spectre EXAFS $\chi(k)$, où k est le vecteur de diffusion du photoélectron sont données en fonction du coefficient d'absorption $\mu(k)$ par :

$$\mu(k) = \mu_0(k) (1 + \chi(k)) \quad [\text{III.24}]$$

μ_0 est le coefficient d'absorption pour un atome isolé.

Dans le cadre d'un modèle de diffusion simple du photoélectron et pour un seuil K, les oscillations peuvent donc être exprimées par la fonction d'interférence $\chi(k)$ telle que :

$$\chi(k) = \frac{\mu - \mu_0}{\mu_0} = -\frac{|f_i(\pi, k)|}{kr_i^2} \sin(2kr_i + \phi) \quad [\text{III.25}]$$

où $f_i(\pi, k)$ est l'amplitude de rétrodiffusion du photoélectron par l'atome voisin i , ϕ est le déphasage total (atome central plus rétrodiffuseur) et r_i est la distance entre l'atome central et son voisin i .

A cette fonction d'interférence viennent s'ajouter des termes correctifs :

- un terme décrivant les pertes inélastiques des photoélectrons à l'extérieur de l'atome central en fonction du libre parcours moyen $\lambda(k)$ du photoélectron : $e^{(-2R_i/\lambda(k))}$

$$\text{avec } \lambda(k) = \frac{1}{\Gamma} \left[\left(\frac{\eta}{k} \right)^4 + k \right] \quad [\text{III.26}]$$

- un terme d'amplitude, noté habituellement S_o^2 , décrivant l'amortissement des oscillations dû aux pertes inélastiques dans l'atome central (pris classiquement égal à 0.8).

- un terme décrivant l'amortissement des oscillations dues à la distribution des distances entre atomes diffuseur et rétrodiffuseur, appelé Debye-Waller. Dans l'approximation d'une distribution gaussienne étroite, il s'écrit : $\exp(-2\sigma_i^2 k^2)$

En fin de compte, la formule décrivant les oscillations E.X.A.F.S s'écrit [56]:

$$\chi(k) = -S_o^2 \sum_i \left(\sum_j 3 \cos^2 \theta_i^j \right) \frac{|f(\pi, k)|}{kr_i^2} e^{(-2\sigma_i^2 k^2)} e^{(-2R_i/\lambda(k))} \sin(2kR_i + \phi_i(\pi, k) + 2\delta_1)$$

[III.27]

avec :

- i : numéro de la couche considérée
- j : $j^{\text{ème}}$ voisin dans la couche i .

- k : vecteur d'onde du photoélectron = $\sqrt{\frac{2m(E - E_o)}{\hbar^2}}$
- S_o^2 : terme d'amplitude due aux effets multiélectroniques
- $|\phi(\pi, k)|$: amplitude de rétrodiffusion par l'atome i
- $\phi + 2\delta$: déphasage total (déphasage dans l'atome central et de l'atome rétrodiffuseur)
- σ : terme Debye Waller.
- λ : libre parcours moyen des électrons
- $N_i = \left(\sum_j 3 \cos^2 \theta_i^j \right)$: nombre de voisins apparents dans la couche i. Cette formulation n'est valable que pour les seuils K. Dans le cas des seuils L des termes additionnels sont à prendre en compte.

θ_i^j est l'angle entre le vecteur champ électrique du rayonnement incident et le rayon vecteur reliant l'atome central au voisin j. Dans le cas d'un rayonnement polarisé linéairement et d'un matériau isotrope, la sommation sur toutes les directions donne le nombre de voisins réel N_i . En revanche, si l'on considère un matériau non isotrope, il faut tenir compte d'un nombre de voisins apparent qui est donné par cette formule. En général, les divers programmes d'analyse EXAFS disponibles ne tiennent pas compte de ce terme et fournissent le nombre de voisins apparent [57].

3.3.3.4 . / Méthode d'analyse des données.

De nombreux ouvrages [56-59] décrivent les méthodes usuelles d'extraction du signal EXAFS; Nous n'en rappelons ici que les étapes principales.

La première étape consiste à extraire les oscillations EXAFS du spectre d'absorption mesuré. Elle s'effectue en modélisant le seuil d'absorption par rapport au spectre de l'atome isolé. Après avoir déterminé la valeur de E_o de la position du seuil en utilisant le maximum de la dérivée du spectre, la courbe d'absorption en fonction de l'énergie E du photoélectron est approchée avant seuil par une droite ou un polynôme de bas degré, et après seuil par une fonction spline permettant de lisser les oscillations. Cette partie du traitement est la plus critique puisqu'il faut prendre garde à ne pas soustraire une partie des oscillations. Le spectre est ensuite normalisé à l'absorption atomique partielle associée à la transition électronique considérée, en utilisant la méthode de Lengeler [60].

Ces étapes ont été réalisées en utilisant le programme de D. Aberdam : PREP contenu dans l'ensemble SEDEM [61]. Il permet l'utilisation de plusieurs fonctions pour l'interpolation du spectre après seuil : polynôme, fonction spline, moyenne mobile. Les meilleurs résultats ont été obtenus avec la fonction spline.

Finalement, après normalisation, le spectre $\chi(k)$ est pondéré par un facteur k^n . Dans le programme n peut prendre les valeurs 1, 2 ou 3. Cette pondération permet d'augmenter la contribution des zones du spectre où la statistique est la plus fiable, ou bien où l'information est la plus intéressante. Dans notre cas, nous avons choisi une pondération en k^2 afin de donner plus de poids à la zone où l'influence de l'Argent se fait sentir.

La pseudo-fonction radiale $F(r)$ est obtenue par transformée de Fourier du spectre $k^n \chi(k)$. Le spectre n'étant pas accessible sur un domaine en k infini, la transformée de Fourier présente des lobes de troncature (ou lobes secondaires). Une fenêtre d'apodisation $U(k)$ est utilisée pour réduire ces effets de coupure. Cette fenêtre est nulle en dehors de deux bornes extrêmes $k_{\min}$ et $k_{\max}$. Dans ces conditions, la pseudo-fonction de distribution radiale s'écrit :

$$F(r) = \text{Im} \left(\int_{k_{\min}}^{k_{\max}} k^n \chi(k) U(k) e^{-2ikr} dk \right) \quad [\text{III.28}]$$

Les fenêtres utilisées peuvent être de plusieurs type : Hamming, Kaiser ou Kaiser avec plateau. Dans ces deux dernier cas, un paramètre τ détermine la forme de la fenêtre. Pour τ tendant vers 0, on retrouve une fonction porte qui induit beaucoup d'oscillations. Le paramètre τ doit donc avoir une valeur assez élevée, que l'on prend généralement égale à 2.5, valeur pour laquelle le compromis entre présence de lobes secondaires et distorsion du spectre est le meilleur. De plus, les points de coupure $k_{\min}$ et $k_{\max}$ sont choisis sur des noeuds de l'oscillation EXAFS afin de minimiser les effets de coupure.

Le traitement consiste ensuite à sélectionner un ou plusieurs pics de la fonction de distribution radiale et à effectuer une transformée de Fourier inverse. Cette opération revient à filtrer en fréquence le spectre des oscillations EXAFS en ne gardant qu'une seule composante ou couche. Dans l'espace des k , on obtient alors une sinusoïde amortie dont les paramètres peuvent être affinés au moyen de la formule EXAFS standard. L'amplitude de l'enveloppe est reliée à la nature et au nombre de voisins ainsi qu'aux facteurs Debye-Waller des distributions de distances. Ces divers paramètres sont donc plus ou moins corrélés entre eux, et ce d'autant plus que le domaine d'analyse en k est plus restreint. La période est, quant à elle, reliée aux distances entre voisins et à la position du seuil en énergie. Cette opération a été effectuée au moyen du programme FITT de l'ensemble SEDEM [61].

Les incertitudes sur les données en $k^2\chi(k)$ dues au bruit sont estimées à partir de la fonction de distribution radiale en procédant à une transformée inverse de la partie à grandes valeurs de R ($>10\text{\AA}$). Cette opération fournit une courbe du bruit statistique $\sigma(k)$ qui, lors des optimisations, est utilisée comme incertitude sur les données.

Les termes électroniques de déphasage et d'amplitude de rétrodiffusion sont extraits soit à partir de composés références pour lesquels la structure est connue, soit à partir de tables théoriques telles que celles de Mac Kale [62, 63]. On suppose alors que ces phases et amplitudes ont un caractère de transférabilité et se conservent pour le système étudié.

Toutes ces étapes sont illustrées sur la figure 3.35 pour le spectre d'absorption d'une feuille de Ni métallique (une de nos références).

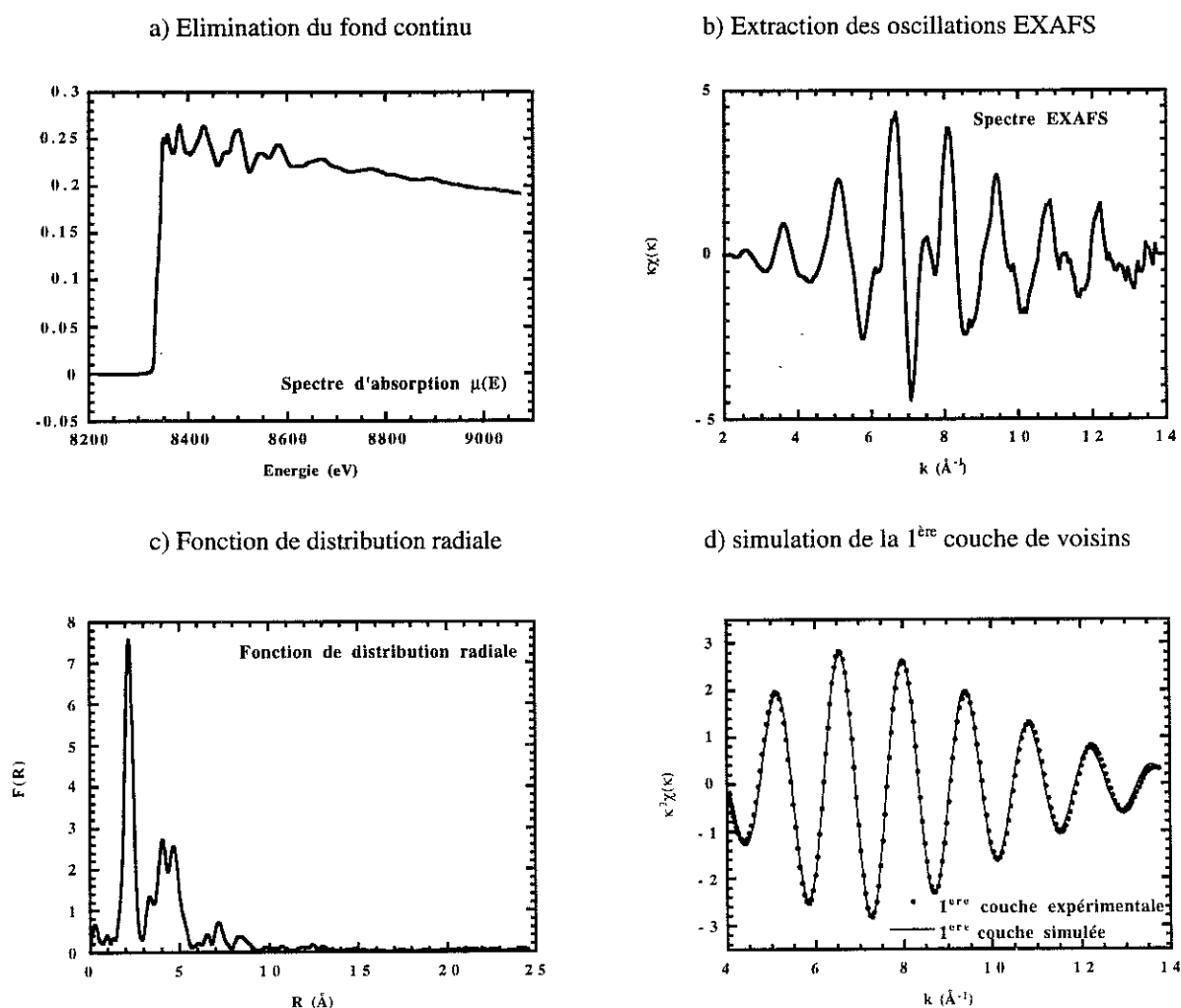


Figure 3.35 : Analyse d'un spectre d'absorption X. Exemple du Ni métallique.

3.3.3.5. / Mesure d'absorption X

Les expériences ont été réalisées sur le spectromètre d'absorption X de la ligne CRG IF, en utilisant le rayonnement synchrotron issu de l'anneau de stockage de l'ESRF. L'utilisation de cette ligne de lumière permet de bénéficier d'un haut flux de photons incident, nécessaire pour les mesures au seuil du Fer (la multicouche ne contient que 10% de Fer en volume). De plus les mesures ont été effectuées pour deux orientations du champ électrique incident : perpendiculaire et parallèle à la surface. Comme nous le verrons, cette méthode permet d'augmenter la sensibilité aux interfaces.

Les échantillons sont placés dans un cryostat à circulation d'hélium. La mesure du rendement total d'électrons s'effectue en mesurant le courant échantillon ; à cet effet une électrode est placée juste au dessus de l'échantillon afin de capter les électrons émis. Le courant mesuré est proportionnel au coefficient d'absorption. Un dysfonctionnement du cryostat ne nous a pas permis de réaliser les mesures à basse température. Il se produisait en effet une dégradation du signal mesuré avec le temps que nous avons attribuée à une condensation d'eau sur les échantillons. Les mesures ont donc été effectuées à la température ambiante, sous un flux d'hélium.

Les échantillons sur lesquels ont été effectuées les mesures sont :

- Référence de Ni : feuille métallique standard
- Référence de $\text{Ni}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}$: une couche de 1000 Å déposé sur substrat de Si.
- Multicouche **137D2** : Structure cfc. Orientation [111]
 Période 24 Å
 11 Å d'Ag
 13 Å de $\text{Ni}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}$
- Multicouche **137B1** : Structure cfc. Orientation [111]
 Période 24 Å
 11 Å d'Ag
 13 Å de $\text{Ni}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}$
 Recuit à 250°C pendant 10 minutes.

Les mesures en champ électrique perpendiculaire et parallèle sont obtenues en tournant manuellement l'échantillon de 90° par rapport au faisceau incident (la direction de polarisation du champ électrique étant dans le plan de l'orbite de l'anneau de stockage). La dénomination **champ perpendiculaire** s'entend comme perpendiculaire à la surface et donc en fait parallèle à la direction [111] des échantillons.

Les spectres d'absorption sont obtenus par un balayage de l'énergie des photons incidents de 7 à 7.9 keV et de 8.2 à 9.1 keV respectivement pour les seuils K de Fe et le Ni. La monochromatisation est réalisée par un cristal de Silicium en réflexion orienté [111]. Le pas en énergie ainsi que la durée de comptage sont adaptés en fonction de la zone mesurée : pas plus petit (0.25 eV) et temps de comptage plus faible dans la zone du XANES ; pas plus large (3 eV) et temps de comptage dépendant de l'énergie dans la zone EXAFS afin d'augmenter la statistique aux grandes valeurs de k. Le temps typique de comptage varie entre 1 et 5 secondes par point. Pour un même échantillon et un même seuil, plusieurs balayages ont été effectués afin d'augmenter la statistique.

Des oscillations périodiques parasites sont apparues sur les intensités mesurées, notamment au seuil du Fer. Elles ont leur origine dans le procédé de focalisation sagittale dynamique utilisé au niveau du monochromateur. Bien qu'elles polluent le spectre d'absorption brut en ne disparaissant pas dans le rapport I/I_0 , elles sont parfaitement éliminées par un filtrage lors des transformations de Fourier car leur période (8 eV) est très différentes de celle des oscillation EXAFS (environ 40 eV). Elles ne constituent donc pas une gêne trop importante.

3.3.3.6. / Résultats et discussion

Références

Un point important dans l'analyse EXAFS est le choix des amplitudes et phases utilisées dans l'optimisation de la simulation des courbes expérimentales. Une méthode consiste à utiliser les phases et amplitudes extraites à partir de composés références. Dans notre cas, l'absence de composé cristallin Ni-Ag dans le diagramme de phase [64] ne nous a pas permis d'obtenir les phases et amplitudes expérimentales associées à ces paires. Nous avons donc utilisé les valeurs tabulées par Mac Kale. Par souci de cohérence, ces tables ont été utilisées pour toutes les couches analysées. La figure ci-dessous montre les phases et amplitudes de Mac Kale pour les trois éléments. On notera les inversions dans les amplitudes dans la zone entre 5 et 8 Å⁻¹ entre l'Argent d'une part, le Nickel et le Fer d'autre part, ainsi que la grande similitude des paramètres pour Ni et Fe qui les rendent pratiquement indiscernables. De plus les phases

comparées pour les paires Ni-Ni et Ni-Fe, d'une part, et Ni-Ag d'autre part présentent un décalage correspondant environ à π au delà de $8 \text{ \AA}^{-1}$.

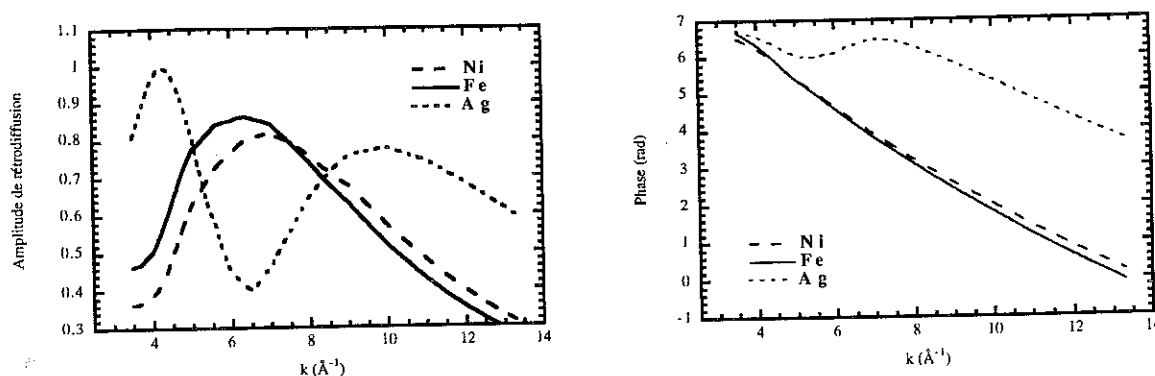


Figure 3.36 : Amplitudes (à gauche) et phases (à droite) de rétrodiffusion tabulées par Mac Kale pour les paires Ni-Fe, le Ni-Ni et Ni-Ag.

Afin de préciser certains paramètres et de valider l'utilisation de ces tables, le spectre EXAFS du Ni métallique (présenté comme illustration de la technique sur la figure 3.35) a été analysé. Les paramètres Γ et η définissant le libre parcours moyen et le terme de Debye-Waller qui sont corrélés, sont affinés sur cette référence, en supposant le nombre de voisins fixé à 12. La valeur obtenue pour le libre parcours moyen est par la suite utilisée lors des affinements pour nos multicouches.

La distance interatomique Ni-Ni est également affinée ainsi que le décalage en énergie ΔE_0 , afin de quantifier l'erreur commise sur la distance interatomique par l'utilisation des tables de Mac Kale. La comparaison s'effectue avec la valeur donnée par les tables PDF : $2.492 \text{ \AA}$.

Avec les paramètres de Mc Kale, l'affinement du spectre EXAFS du Nickel métallique donne :

$$R = 2.481 \text{ \AA} \text{ et } \sigma = 0.0827 \text{ \AA}^{-2}$$

$$\Gamma = 0.676 \text{ et } \eta = 5.502.$$

$$\Delta E_0 = 6.76 \text{ eV}$$

L'erreur systématique sur les distances est donc de $-0.011 \text{ \AA}$.

L'étape suivante consiste à utiliser les mesures sur la couche mince de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ afin de montrer que les contributions du Ni et du Fe en tant qu'atome rétrodiffuseur sont indiscernables. Les affinements du spectre $k^2\chi(k)$ avec une couche constituée de 80% de Ni et

20 % de Fe, une couche constituée de Ni seul (Figure 3.37), et une couche constituée de Fe seul, donnent des résultats pratiquement identiques pour ce qui est des distances et des facteurs de Debye-Waller. Le tableau III.8 qui récapitule les diverses valeurs obtenues au seuil K de Ni montre les faibles écarts correspondant à ces trois hypothèses. Une même vérification a été effectuée au seuil du Fe dans cette même couche de NiFe. Par la suite nous avons donc considéré le rétrodiffuseur $\text{Ni}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}$ comme étant du Ni pur.

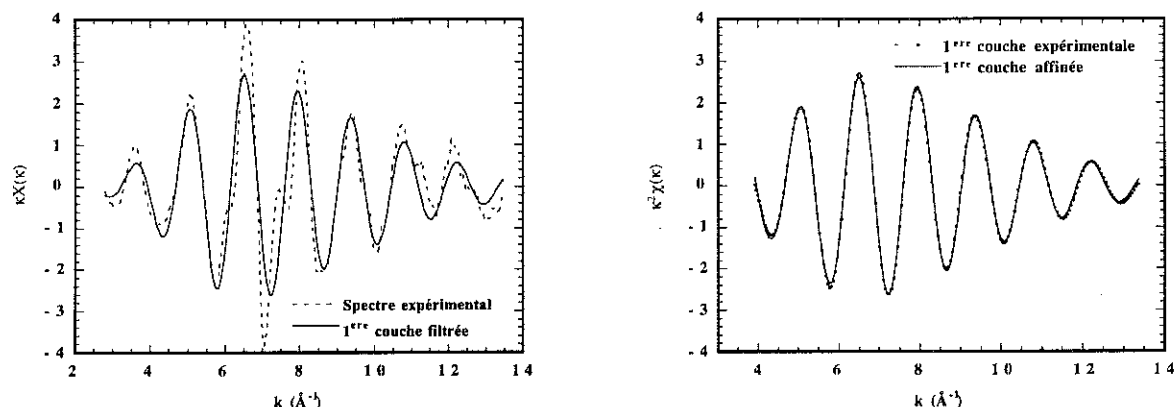


Figure 3.37 : Spectre EXAFS en $k^2\chi(k)$ obtenu pour la multicouche et simulation de la première couche Ni-Ni

	$R_{\text{Ni-Ni(Fe)}}$	N_{Ni}	N_{Fe}	σ ($\text{\AA}^{-2}$)	ΔE (eV)
1 couche : Ni	2.49	12	0	0.0877	5.27
1 couche : Fe	2.50	0	12	0.0767	6.91
1 couche : 80% Ni, 20% Fe	2.49	9.6	2.4	0.0876	5.61

Tableau III.8 : Paramètres obtenus dans l'analyse EXAFS au seuil K de Ni pour le film mince NiFe selon que l'on ne considère que des voisins Ni ou Fe ou un mélange des deux.

Mesure sur les multicouches

Les deux multicouches (137D1 et 137D2) ont été analysées pour les deux orientations (perpendiculaire et parallèle) du champ électrique aux seuils K du Ni et du Fe.

Présence de l'Argent

Le premier point à mettre en exergue est la présence ou non d'une contribution *visible* des atomes d'argent dans le spectre EXAFS. Afin d'en démontrer l'existence, nous avons comparé les phases et amplitudes extraites des mesures au seuil du Ni sur la multicouche 137D2 pour les deux orientations de champ (0 et 90°). La sensibilité aux atomes d'Argent est évidemment

augmentée lorsque le champ électrique est perpendiculaire à l'interface entre les couches NiFe et Ag. La différence des amplitudes entre les deux orientations est montrée dans la figure 3.38. Les deux pics observés à 5 et 11 $\text{\AA}^{-1}$ correspondent aux extrema présents dans l'amplitude de rétrodiffusion de l'Argent (figure 3.38 à comparer à la figure 3.36). Ceci permet donc de visualiser la contribution d'atomes d'argent au spectre EXAFS.

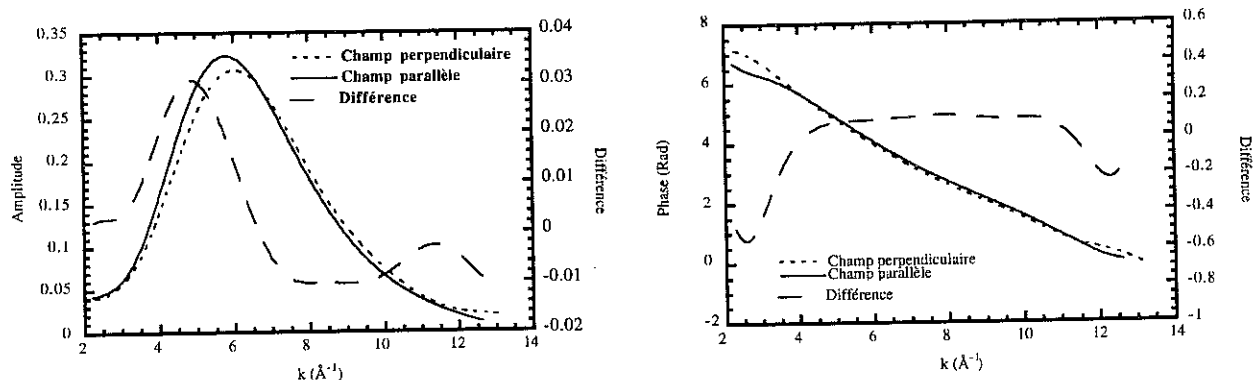


Figure 3.38 : Amplitude (à gauche) et phase (à droite) extraites à partir du spectre EXAFS au seuil du Ni sur l'échantillon 137D2, et pour les deux orientations du champ électrique. Les paramètres utilisés sont : $\Delta E=0$, $\sigma=0$; $\Gamma=0.676$ et $\eta=5.502$

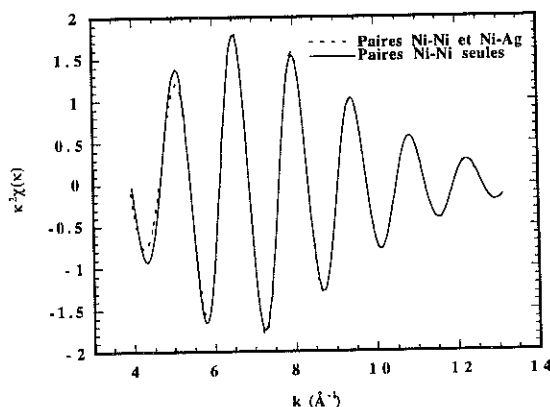


Figure 3.39 : Spectre EXAFS simulé, au seuil du Ni et en champ perpendiculaire sur l'échantillon 137 D2.

D'autre part, nous avons comparé le spectre $k^2\chi(k)$ calculé à partir des paramètres affinés en considérant deux couches (Ni-Ni et Ni-Ag), à celui obtenu en supprimant la contribution de la couche d'Argent constituée de 2.9 paires Ni-Ag (figure 3.39). Les paramètres de la simulation sont ceux donnés au tableau III.9. Comme le montre la figure 3.39, la contribution de

l'Argent est très faible et s'observe essentiellement à 4 et 6 $\text{\AA}^{-1}$ où elle se traduit par un léger changement d'amplitude. La différence est très faible au delà de 6 $\text{\AA}^{-1}$ ce qui est dû principalement au fort coefficient Debye-Waller pour les paires Ni-Ag qui diminue fortement leur contribution.

Dans ces conditions, un affinement conjoint des paires Ni-Ni et Ni-Ag s'avère très difficile, et la stabilité des paramètres obtenus pour les paires Ni-Ag relativement mauvaise par rapport à celle des paramètres des paires Ni-Ni. **L'optimisation des paramètres a donc été contrainte en imposant un nombre total de voisins à 12 (structure fcc).** L'affinement de la contribution Argent se fait donc en corrélation avec celle des paires Ni(Fe)-NiFe, dont la détermination est plus facile. La détermination des paires Ni(Fe)-NiFe impose le nombre de voisins Ag.

Résultats des affinements

Pour tous les seuils, la fonction de distribution radiale (Fig 3.40) obtenue par transformée de Fourier présente un premier pic à 2.19 $\text{\AA}$. Aucune différence n'est à priori visible entre les spectres mesurés aux seuils du Ni et du Fe. La seconde couche apparaît beaucoup plus faible et semble composée de 3 contributions non séparables. Cette deuxième couche n'a pas été interprétée.

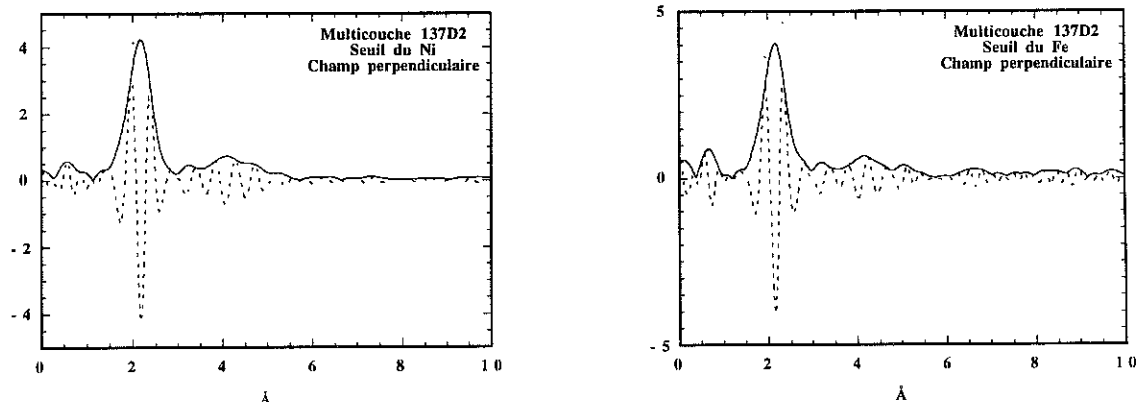


Figure 3.40 : Fonction de distribution radiale obtenues aux seuils du Ni et du Fe pour la multicouche 137D2

Les spectres EXAFS filtrés pour la première couche ont été affinés en considérant deux contributions : des paires Ni-NiFe et Ni-Ag au seuil du Ni, respectivement Fe-NiFe et Fe-Ag au seuil du Fe. Les résultats des affinements pour la multicouche 137D2 sont montrés sur la figure 3.41.

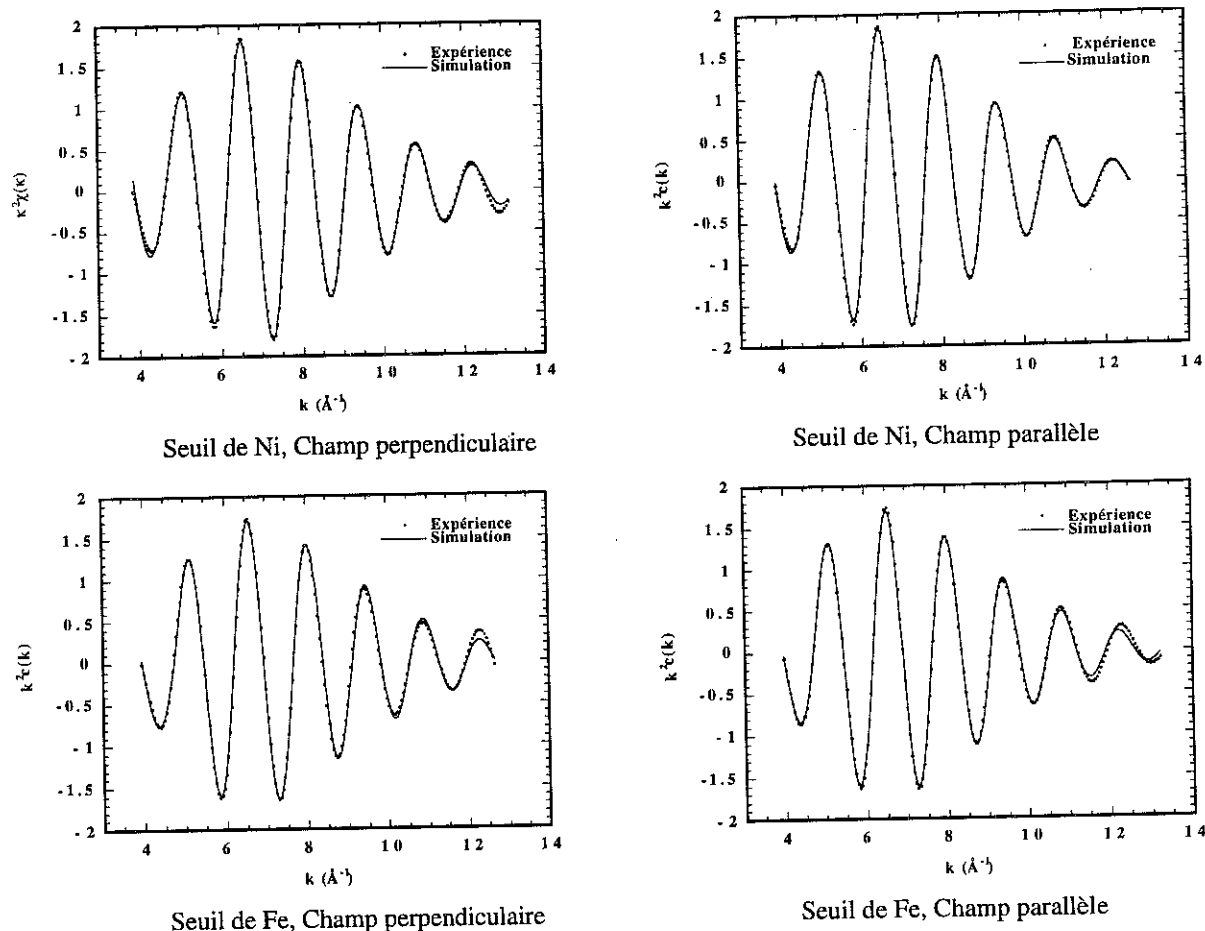


Figure 3.41 : Simulation de la première couche pour l'échantillon 137D2 pour les seuils de Ni et de Fe et pour les deux orientations du champ électrique.

Les paramètres imposés lors de ces affinements sont ceux définissant les libres parcours moyens (pour l'Argent les valeurs standard $\Gamma = 0.7$ et $\eta = 3.1$ ont été utilisées).

Les décalages en énergie ont également été affinés. Ils se situent tous dans la gamme : 4.1 - 5.4 eV, qui est généralement obtenue pour l'utilisation des tables de Mac Kale.

Le nombre total de paires de premiers voisins est bloqué à 12. On détermine donc 6 paramètres au total : R_1 , N_1 , σ_1 , R_2 , N_2 , σ_2 , E_0 , ce qui est raisonnable pour un spectre s'étendant sur $9 \text{ \AA}^{-1}$ (nombre de paramètres affinables = $2\Delta r\Delta k / \pi$, où Δr est la largeur du pic isolé dans l'espace des distances, soit environ $1.5 \text{ \AA}$ pour le premier pic et $\Delta k \approx 9 \text{ \AA}^{-1}$ pour le spectre $k^2\chi(k)$). Les résultats quantitatifs sont résumés sur les tableaux suivants (tableaux III.9 à III.12).

Résultats quantitatifs

Les valeurs des distances présentées ont été augmentées de 0.01Å pour tenir compte de l'écart de -0.01Å introduit dans leur détermination par l'utilisation des tables de Mac Kale. Les barres d'erreurs (δ) sur l'évaluation de chacun des paramètres ainsi que l'orientation du champ électrique sont précisés.

Echantillon 137D2 (brut)

Seuil	Orient.	$R_{\text{Ni(Fe)-NiFe}} (\text{\AA})$	δR	$N_{\text{Ni(Fe)-NiFe}}$	δN	$\sigma (\text{\AA})$	$\delta \sigma$
Ni	$\perp$	2.48(8)	0.002	9.1	0.2	0.093	0.001
Ni	//	2.48(9)	0.002	10.1	0.25	0.100	0.002
Fe	$\perp$	2.49(1)	0.007	8.8	0.4	0.096	0.004
Fe	//	2.50(3)	0.003	9.4	0.25	0.099	0.002

Tableau III.9 : Paires Ni(Fe)-NiFe

Seuil	Orient.	$R_{\text{Ni(Fe)-Ag}} (\text{\AA})$	δR	$N_{\text{Ni(Fe)-Ag}}$	δN	$\sigma (\text{\AA})$	$\delta \sigma$
Ni	$\perp$	2.72(8)	0.02	2.9	0.2	0.160	0.009
Ni	//	2.75	0.02	1.9	0.25	0.153	0.013
Fe	$\perp$	2.81	0.04	3.2	0.4	0.189	0.029
Fe	//	2.82	0.04	2.6	0.25	0.210	0.022

Tableau III.10 : Paires Ni(Fe)-Ag

Echantillon 137B1 (recuit)

Seuil	Orient.	$R_{\text{Ni(Fe)-NiFe}} (\text{\AA})$	δR	$N_{\text{Ni(Fe)-NiFe}}$	δN	$\sigma (\text{\AA})$	$\delta \sigma$
Ni	$\perp$	2.48(6)	0.006	10.4	0.35	0.100	0.002
Ni	//	2.50(4)	0.006	11	0.4	0.102	0.002
Fe	$\perp$	2.49(8)	0.006	10.6	0.4	0.100	0.002
Fe	//	2.51(0)	0.004	11	0.4	0.100	0.002

Tableau III.11 : Paires Ni(Fe)-NiFe

Seuil	Orient.	$R_{\text{Ni(Fe)-Ag}} (\text{\AA})$	δR	$N_{\text{Ni(Fe)-Ag}}$	δN	$\sigma (\text{\AA})$	$\delta \sigma$
Ni	$\perp$	2.70	0.02	1.6	0.35	0.097	0.012
Ni	//	2.75	0.05	1	0.4	0.109	0.028
Fe	$\perp$	2.74	0.03	1.4	0.4	0.108	0.018
Fe	//	2.80	0.03	1	0.4	0.130	0.034

Tableau III.12 : Paires Ni(Fe)-Ag

Quelques remarques peuvent être faites à ce stade. Les valeurs des distances Ni(Fe)-NiFe sont très peu différentes de celle du Ni massif (2.492 Å). Les termes de Debye- Waller pour les paires Ni(Fe)-NiFe sont légèrement plus forts que celui obtenu pour le Ni massif ($\sigma=0.0844$ Å) ce qui suggère un faible désordre statique et une bonne qualité cristalline des couches. Par contre, les facteurs Debye-Waller sont relativement forts pour les paires Ni(Fe)-Ag. Dans ce cas l'approximation harmonique, qui suppose gaussienne la distribution de distances, est probablement en défaut. C'est en particulier le cas pour l'échantillon non recuit (137D2). Une valeur pour le terme de Debye-Waller de 0.15 Å peut en effet être prise comme limite pour la validité de l'approximation harmonique. Son utilisation semble donc raisonnable pour l'échantillon recuit. Cependant, dans le cas de l'échantillon non recuit, où l'on souhaiterait sortir de cette approximation, le nombre de paramètres indépendants affinables et surtout la faiblesse de la contribution des paires Ni(Fe)-Ag ne nous permettent pas d'entreprendre une analyse anharmonique.

Il est à noter toutefois que les barres d'erreurs obtenues sur les nombres des premiers voisins sont dans l'ensemble très bonnes (elles se situent dans la fourchette 2,5% - 4%). Ces incertitudes (δ) ont été calculées en tenant compte du bruit des spectres $k^2\chi(k)$, mais également des corrélations entre les paramètres, principalement données par les couples de variables : N et σ d'une part, R et ΔE_0 d'autre part.

3.3.3.7. / Modèle structural simple

Afin d'interpréter les valeurs obtenues pour les nombres de premiers voisins, nous présentons ici des modèles simples de la multicouche permettant de les quantifier dans différentes hypothèses. Les multicouches sont modélisées par des plan atomiques discrets. Nous ne nous intéressons qu'à la couche de NiFe. Celle-ci est représentée par 6 plans de NiFe entourés par deux plans d'Argent de chaque côté. Cette description est en accord avec l'épaisseur de permalloy de 13 Å et le paramètre de distance $d_{111}=2.054$ Å mesuré en diffraction X ainsi qu'avec les distances Ni-NiFe et Fe-NiFe obtenues par EXAFS, $R \approx 2.50$ Å, ce qui correspond à un d_{111} de 2.04 Å.

La variation du poids effectif d'un voisin en fonction de l'orientation du champ électrique, par rapport au plan de croissance, est montrée sur le tableau III.13, dans le cas d'un empilement compact selon la direction [111].

	Contribution des voisins situés dans le plan	Contribution des voisins situés hors du plan
Isotrope	1	1
Champ perpendiculaire au plan	0	2
Champ parallèle au plan	3/2	1/2

Tableau III.13 : Contribution effective des premiers voisins selon leurs orientations par rapport au champ électrique

En tenant compte de ces différents poids pour les paires de premier voisins selon leurs orientations, il est aisé de calculer le nombre de paires apparentes dans certaines hypothèses simples pour la structure de la couche de NiFe et en particulier dans cette couche d'une inhomogénéité de distribution des atomes de Fe à l'interface des couches d'Ag. Le tableau III.14 récapitule les valeurs obtenues dans les 5 hypothèses énumérées ci-dessous.

Hypothèses :

- 1 : Distribution homogène du Fe et du Ni
- 2 : Pas de Fer sur le plan d'interface (déplétion), soit
0% sur les 2 plans d'interfaces et en conséquence 30% de Fer dans les 4 plans de "volume" à l'intérieur de la couche de NiFe.
- 3 : Tout le Fer sur les interfaces (enrichissement)
60% sur les interfaces et 0% sur les plans de "volume"
- 4 : Distribution homogène de NiFe sur 5 plans + un 1/2 plan interdiffusé avec l'Argent à chaque interface de composition mixte NiFe 50% et Ag 50% avec une répartition alternée des atomes de NiFe et d'Ag sur ce 1/2 plan. Ce modèle consiste à considérer un alternance de rangées atomiques d'Ag et de NiFe, chaque atome ayant alors 2 voisins de même nature et 4 voisins d'une nature différente.
- 5 : idem hypothèse 4, mais en considérant 4 plans homogènes de NiFe + 2 1/2 plans à chaque interface de la couche de NiFe (même hypothèse quant à la répartition des atomes dans ces plans interdiffusés).

Hypothèse	Orientation de E	Paires Ni-NiFe	Paires Ni-Ag	Paires Fe-NiFe	Paires Fe-Ag
1	$\perp$	10	2	10	2
	//	11.5	0.5	11.5	0.5
2	$\perp$	9.5	2.5	12	0
	//	11.4	0.6	12	0
3	$\perp$	11	1	6	6
	//	11.75	0.25	10.5	1.5
4	$\perp$	10	2	10	2
	//	10.4	1.6	10.4	1.6
5	$\perp$	10	2	10	2
	//	9.6	2.4	9.6	2.4

Tableau III.14 : Nombre de paires apparentes pour les deux géométries (champ perpendiculaire et champ parallèle aux couches) pour les hypothèses simples d'inhomogénéité de la multicouche et de ces interfaces.

Par la comparaison entre les simulations du tableau III.14 et les résultats expérimentaux (tableau III.13), l'hypothèse n°3 peut être exclue, étant donné le nombre de paires Fe-NiFe et Fe-Ag qu'elle implique pour la géométrie où le champ est perpendiculaire. L'hypothèse n°2 est à rejeter également puisque les mesures ne donnent pas 12 paires Fe-NiFe.

Le même type de calcul pour le nombre de premiers voisins, dans le cas où l'on considère 1/2 plan à chaque interface afin de tenir compte de l'interdiffusion, conduit, selon la manière de distribuer les atomes, à une sensibilité uniquement dans la géométrie où le champ électrique est parallèle à la surface. Dans ce cas le nombre de voisins Ag varie de 0.5 à 2.5 pour un diffuseur NiFe distribué isotropiquement dans ce plan. Le nombre de voisins dans la géométrie perpendiculaire reste inchangé (hypothèses 4 et 5).

L'hypothèse n°5 semble bien expliquer les valeurs observées pour le nombre de voisins dans le cas de la couche 137D2 (non recuite). Pour le cas de l'échantillon recuit (137D1), il faut envisager une structure de couche se situant entre celle donnée par une couche parfaite (hypothèse n°1), et celle donnée par la présence d'un plan interdiffusé d'atome d'Ag et de NiFe à l'interface, sur un plan atomique.

3.3.3.8. / Conclusion sur les expériences d'EXAFS

Plusieurs conclusions peuvent être tirées de cette expérience d'EXAFS :

- Les distances Ni(Fe)-NiFe sont compatibles avec celles obtenues par diffraction X, bien que systématiquement un peu plus faibles : les mesures par diffraction conduisent à $R = 2.53 \text{ \AA}$ pour les premiers voisins.

- Les distances Ni-Ag sont systématiquement plus grandes que la distance Ni-Ag obtenue à partir de la moyenne des distance Ag-Ag et Ni-Ni (2.69Å).
- Pour l'échantillon 137D2 non recuit, on note un nombre de paire Fe-Ag systématiquement plus élevé que pour celui des paires Ni-Ag, bien que la différence soit dans les barres d'erreurs. Les valeurs obtenues pour le nombre de paires Ni-Ag ou Fe-Ag sont de manière systématique plus élevées que celles calculées dans un modèle simple de couche de solution solide NiFe homogène avec des interfaces sans rugosité avec les couches d'Ag. Ceci est certainement dû à une rugosité d'interface due à l'interdiffusion qui augmente le nombre moyen de paires Ni-Ag et Fe-Ag, comme cela a été montré dans l'hypothèse n°5. Ces mesures permettent aussi de conclure qu'il n'y a pas d'inhomogénéité appréciable entre le Fe et le Ni dans la multicouche. **La sous-couche de FeNi peut donc être considérée comme une solution solide homogène.**
- Pour l'échantillon 137D1, recuit à 250° C, les mêmes caractéristiques sont observées : contribution similaire des paires Ni-Ag et Fe-Ag. Le point à souligner est la forte diminution du nombre de voisins Ag à la fois au seuil du Ni et à celui du Fe. Ceci traduit une mise en ordre des interfaces, en accord avec l'hypothèse 4, et donc une diminution de rugosité (ou d'interdiffusion). La mise en ordre est confirmée par la diminution des facteurs de Debye-Waller par rapport à l'échantillon 137D2 non recuit.

3.3.4 : Conclusions sur la multicouche Ag/NiFe

Dans cette gamme de concentration, pour le permalloy (Ni 80%, Fe 20%) le moment magnétique moyen varie linéairement avec la concentration en fer. Il est donc possible d'appliquer une extrapolation linéaire de la variation du moment moyen pour obtenir les moments de Ni et de Fe [65]. Les valeurs données par la littérature sont respectivement : 2.6 μ_B pour le Fer et 0.6 μ_B pour le Ni [66-68], pour des concentration similaires à celle de nos couches (Ni 75%, Fe 25%).

D'autre part, des calculs théoriques de structure de bandes [69, 70] considérant du Fer en impureté dans une matrice fcc de Ni donnent un nombre de trous de 3.57 et montrent qu'il n'y a

pas de modification notable à ce niveau par rapport au Fer bcc (modification de la valeur du moment de l'ordre de 5% seulement). Ces valeurs ont été utilisées avec succès pour analyser le dichroïsme magnétique aux seuils $L_{II,III}$ de métaux de transition de la première série en impureté dans une matrice de Ni [71]. Des mesures de dichroïsme sur du Fer en impureté dans le Ni montrent que les modifications de la raie blanche et du signal de dichroïsme par rapport au fer massif restent faibles [72].

Les résultats de l'expérience de XRMS précédemment décrite aux seuils L_{II} et L_{III} de Ni et Fe, nous permettent d'évaluer le moment magnétique porté par chacun des types d'atomes. Considérant que le nombre de trous dans la bande 3d varie peu pour le Ni et pour le Fe, nous utilisons les valeurs des moments déterminées par C.T. Chen *et al* [37] à partir des spectres de dichroïsme. Cette utilisation est bien justifiée car ce sont ces spectres qui nous ont servi pour le calcul des facteurs de diffusion magnétique pour Ni et Fe et pour simuler nos mesures de rapport d'asymétrie :

$$\begin{aligned}\mu_{Fe}^{3d} &= 2.065 \mu_B \text{ avec un nombre de trous de 3.4} \\ \mu_{Ni}^{3d} &= 0.57 \mu_B \text{ avec un nombre de trous de 1.4}\end{aligned}$$

soit un moment 3d total de $0.85 \mu_B$

Nous notons premièrement que le moment total ainsi évalué est compatible avec des mesures en diffraction des neutrons [53] sur une multicouche $Ag_{(11\text{\AA})}/NiFe_{(12\text{\AA})}$. Le moment calculé à partir de l'intensité de la raie due au couplage antiferromagnétique des couches de NiFe donne un moment total de $0.86 \mu_B$ à température ambiante, en excellent accord avec notre estimation, et de $1.01 \mu_B$ à $4.2^\circ K$, soit une réduction de 15 %. La diminution observée est compatible avec des mesures d'aimantation donnant une réduction de 24 % entre 4.2 K et 300 K [54].

D'autre part, des mesures de spectroscopie Mössbauer [73] ont montré une réduction du champ hyperfin du Fer dans ces multicouches $Ag/FeNi$ à $300^\circ K$ de l'ordre de 22% par rapport à celui du FeNi massif de même concentration. Une réduction de 22% du moment du Fer ($2.6 \mu_B$ dans le permalloy massif) donne $2.03 \mu_B$ ce qui se compare bien au moment de $2.06 \mu_B$ pour le moment 3d estimé en DMRX.

Finalement, en combinant la valeur du moment total du FeNi mesurée en diffraction de neutrons, et celle mesurée par Mössbauer pour le moment du Fer, on peut estimer le moment du Ni à $0.585 \mu_B$. Cette valeur se compare bien à celle utilisée pour le calcul du rapport d'asymétrie en DMRX ($\mu_{Ni}^{3d} = 0.57 \mu_B$). Cette discussion montre la cohérence de nos résultats avec ceux

obtenus par diverses techniques. Elle suggère que dans ces couches le moment du Fer soit réduit de 22% par rapport au permalloy massif sans que celui du Ni le soit.

Les expériences de Mössbauer ont montré l'absence de plan de Fer mort magnétiquement. Nos expériences de DMRX confirment ce résultat et montrent aussi l'absence de plan mort pour le Nickel. Une simulation a en effet été faite pour tester l'influence de ce paramètre sur le calcul du rapport d'asymétrie, selon la description donnée lors de l'expérience au seuil du Cobalt (§3.2.2). Ainsi, pour obtenir un moment du Fer égal à $2.67 \mu_B$ tout en conservant l'amplitude du rapport d'asymétrie, il convient d'introduire 1.36 plans morts à chaque interface soit près de la moitié de la couche de FeNi de 6 plans d'épaisseur. Etant donné que l'homogénéité structurale de la couche de NiFe a été démontrée par l'analyse EXAFS, il est difficile d'imaginer que les atomes de Nickel ne soient pas aussi magnétiquement morts dans ces couches aux interfaces avec Ag. Dans ce cas, pour conserver le rapport d'asymétrie observé au seuil de Ni, il conviendrait également d'augmenter le moment du Ni, qui deviendrait $0.7 \mu_B$, valeur beaucoup trop élevée. Nos résultats semblent donc exclure l'existence de couches mortes. Ils ne permettent par contre pas de comprendre l'origine des comportements différents du Fer et du Nickel dans ces couches. Notons que cette discussion démontre à nouveau la forte sensibilité directe de la DMRX à la présence de plans morts.

En conclusion, l'utilisation de la DMRX en géométrie transverse sur une multicouche Ag/NiFe a permis de mettre en évidence des effets magnétiques encore plus importants que pour la géométrie longitudinale. Un calcul utilisant le dichroïsme du Fer bcc et du Nickel fcc massifs permet de reproduire le rapport d'asymétrie et donc d'estimer indirectement le moment porté par chacun des atomes. Les moments obtenus sont en accord avec des mesures d'aimantation, de diffraction des neutrons et de spectroscopie Mössbauer.

La méthode suivie pour l'évaluation des moments magnétiques dans un alliage par comparaison avec des références (Fe et Ni massif dans notre cas) présente toutefois certaines difficultés spécifiques à l'utilisation de la DMRX. En particulier, le rapport d'asymétrie étant très sensible aux facteurs de structure de la multicouche il est nécessaire de bien les connaître, ce qui implique une étude structurale préalable détaillée.

Enfin, il apparaît que trois paramètres sont indirectement corrélés quant à l'amplitude du rapport d'asymétrie : l'amplitude du facteur de diffusion magnétique ou du signal de dichroïsme, le taux de polarisation linéaire et le nombre de plan magnétiquement morts. Le taux de polarisation linéaire peut être calculé avec une précision raisonnable (de l'ordre de quelques %), ou être mesuré expérimentalement [74]. Sa connaissance n'est donc pas à priori limitante pour l'évaluation des moments à partir de la DMRX. L'influence du nombre de plans

magnétiquement morts peut être plus importante. Cependant, il est possible de le décorréler de l'amplitude diffusion magnétique en mesurant plusieurs pics de Bragg à plusieurs énergies, comme nous l'avons montré au paragraphe précédent pour le cas des multicouches Cu/Co.

4. / Couplages antiferromagnétiques dans des multicouches

4.1 /Introduction

Les techniques utilisées pour l'observation de tels couplages (notamment dans le cas antiferromagnétique) sont souvent indirectes : mesure de la magnétorésistance, mesure de courbes d'aimantation pour différents échantillons. Par contre la diffraction magnétique neutronique constitue un outil puissant pour la détermination de l'ordre et des corrélations magnétiques entre couches magnétiques. L'apparition d'ordres demi-entiers de diffraction est la signature directe d'un couplage antiferromagnétique [21, 75]. La diffraction neutronique permet en outre la mesure quantitative du moment magnétique moyen porté par les atomes de la couche magnétique. Elles ne permet cependant pas la mesure directe des moments associés à chacun des composants dans une couche d'alliage, ni la séparation des moments de spin et d'orbite

Cette section présente l'utilisation de la diffraction magnétique des rayons X mous pour la mise en évidence de couplages antiferromagnétiques, ainsi que la caractérisation de ces couplages.

4.2./ Géométrie et montages expérimentaux.

De manière tout à fait phénoménologique, et de même que pour la diffraction magnétique des neutrons, si il existe, pour les rayons X, une interaction sensible à l'aimantation et si il existe une surstructure magnétique dans l'échantillon, alors il est possible d'observer des pics de surstructure magnétique. C'est le cas notamment pour les couplages antiferromagnétiques (AF) dans les multicouches, qui entraîne l'apparition d'une période magnétique double de la période cristallographique (figure 3.42). Le couplage AF produit donc un pic de surstructure à $q_{\text{mag}} = q_c/2$, où q_c est le vecteur d'onde correspondant à une raie de Bragg de l'empilement multicouche.

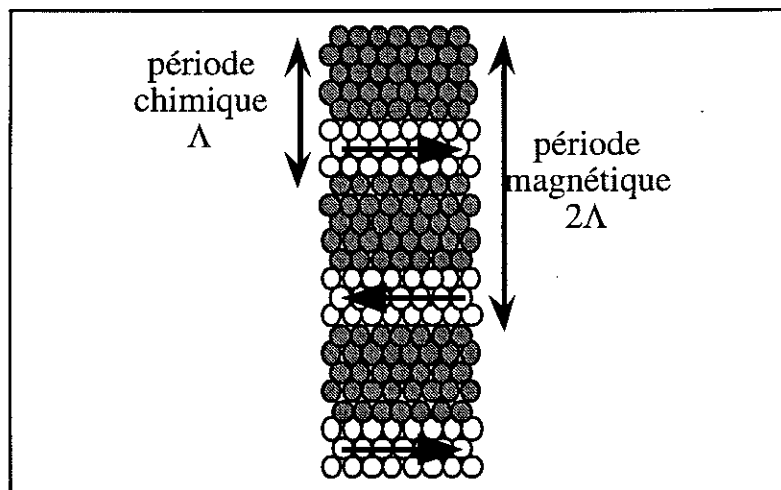


Figure 3.42 : Représentation d'une multicouche magnétique avec couplage antiferromagnétique entre couches.

Dans le cas de la diffraction magnétique résonante des rayons X, deux géométries sont possibles pour l'observation de tels pics AF : géométrie de diffraction verticale et polarisation incidente horizontale σ , géométrie horizontale et polarisation incidente π . Les expériences et les résultats présentés par la suite ont été obtenus sur trois lignes de lumière différentes : SB3, SU7 et SU23 à SACO (L.U.R.E). Les trois sources fournissent, dans le plan de l'orbite synchrotron, de la lumière polarisée linéairement, avec un bon taux de polarisation linéaire : 99 % dans le cas de la ligne sur aimant de courbure SB3 (calculé grâce aux équations de l'annexe 2) et 99 % dans le cas des lignes sur onduleurs de SU7 et SU23.

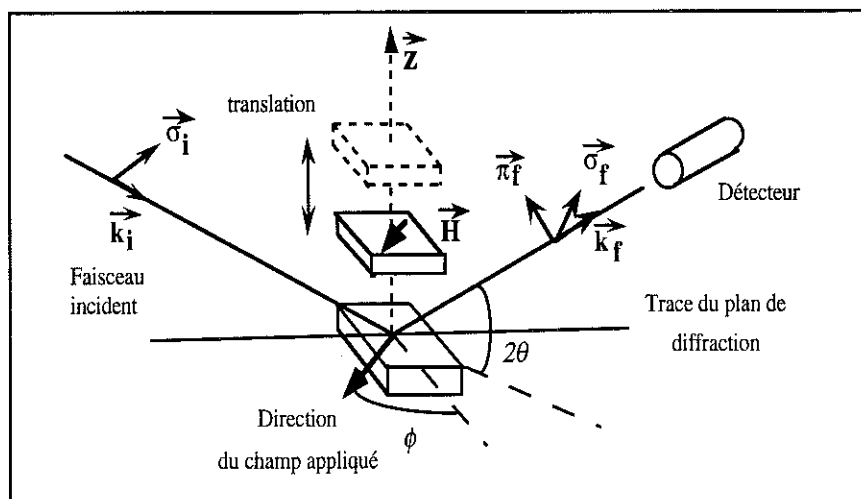


Figure 3.43 : Géométrie de diffraction en polarisation σ ($\perp$ au plan d'incidence)

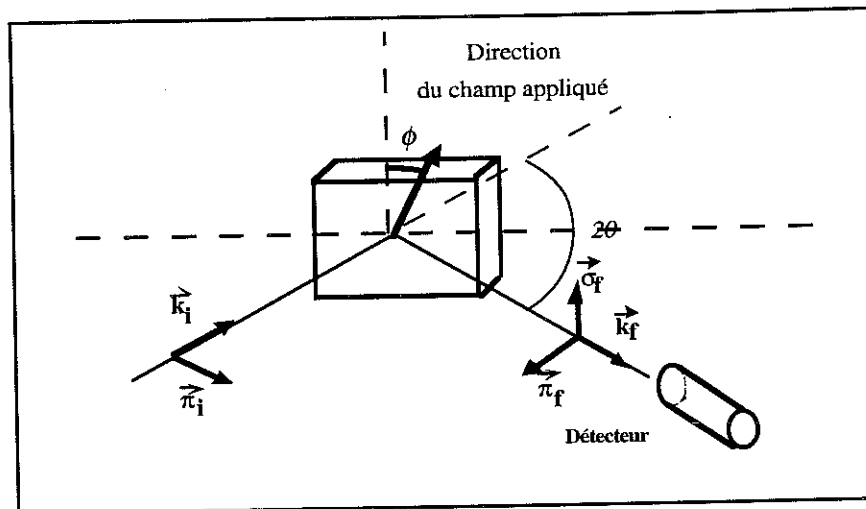


Figure 3.44 : Géométrie de diffraction en polarisation π ($//$ au plan d'incidence)

Les deux géométries de diffraction utilisées sont décrites par les figures 3.43 et 3.44. Les caractéristiques principales sont les suivantes :

- Géométrie σ : Le plan de reflexion est le plan vertical. Utilisation de la polarisation incidente horizontale σ : le faisceau est donc diffracté sur les deux états de polarisation linéaires finaux σ (pour la partie de charge) et π (pour la partie magnétique).
- Géométrie π : Le plan de reflexion est le plan horizontal, le même que celui de l'orbite synchrotron. Utilisation de la polarisation incidente π , le faisceau est donc diffracté sur le seul état de polarisation linéaire final π (les composantes de charge et magnétique sont donc couplées sur le même état de polarisation).

Pour les deux géométries de diffraction, le champ magnétique est appliqué, et est repéré par l'angle ϕ dans le plan des couches par rapport à la normale au plan de diffraction.

4.3 / Multicouche Cu/Co

Plusieurs groupes ont observé un couplage antiferromagnétique (AF) entre couches de Co dans des systèmes Cu/Co [51, 75], en particulier par l'observation de pics AF mesurés par diffraction neutronique. Nous avons donc utilisé un de ces systèmes pour montrer la possibilité d'utiliser le rayonnement synchrotron, et la diffraction magnétique résonante, afin d'étudier les couplages macroscopiques. Les multicouches et superréseaux comprenant des métaux nobles sont particulièrement adaptés puisque leurs seuils d'intérêt, à savoir les seuils L, se situent dans une gamme en énergie ne permettant pas l'utilisation de cristaux conventionnels (longueur d'onde trop grande), mais permettant d'obtenir des pics de Bragg dus à l'empilement multicouche. Dans le cas du Cobalt, les seuils L_{III} et L_{II} s'observent à 778 et 793 eV, respectivement, ce qui correspond à des longueurs d'ondes de 15.9Å et 15.6Å, respectivement.

Nous avons utilisé une multicouche Cu/Co similaire à celle présentée au paragraphe précédent (§3.2). L'échantillon a également été préparé par J.F. Bobo (Laboratoire de physique des matériaux de Nancy). Le couplage oscillant entre les couches de Cobalt, dans ces multicouches a été mis en évidence par l'étude de la variation de la magnétorésistance en fonction de l'épaisseur de Cuivre, à 300° K et à 4.2° K. Le couplage antiferromagnétique a aussi été mis en évidence en utilisant la diffraction neutronique sur un échantillon de 8Å d'épaisseur en Cu [76].

Nous avons utilisé un échantillon très similaire : $[Cu_{(8.8Å)}/Co_{(13.2Å)}]_{15}$ présentant un couplage antiferromagnétique, ainsi qu'une magnétorésistance de l'ordre de 40%. Les mesures ont été réalisées sur la ligne SU7 à Super ACO au LURE. La géométrie de diffraction utilisée est la géométrie σ décrite par la figure 3.43.

	ρ (gr/cm ³)	a (Å)	d (Å)	s (Å ⁻²)	n	e (Å)
Cu	8.96	3.615	2.086	0.1773	4.22	8.8
Co	8.9	3.544	2.016	0.1853	6.48	13.2

Tableau III.15 : paramètres structuraux de la multicouche Cu/Co

La période de l'échantillon est de 22Å et produit donc un pic de diffraction à $k=0.285\text{Å}^{-1}$. Un pic signature du couplage antiferromagnétique devrait apparaître à $k = 0.142\text{Å}^{-1}$. L'enregistrement d'un spectre de diffraction au seuil L_{III} du Co à 778 eV ne nous a pas permis d'observer un tel pic antiferromagnétique (Figure 3.45). Ceci est en partie dû à la faible épaisseur de l'échantillon qui donne naissance à des franges d'interférences dites franges de

Kiessig. Elles proviennent des interférences entre les faisceaux réfléchis à la surface de l'échantillon et sur la surface du substrat. Elles sont d'autant plus intenses que l'échantillon est peu épais. Dans le cas présent où l'épaisseur totale est de 330 Å, ces franges cachent la contribution plus faible du pic de surstructure magnétique.

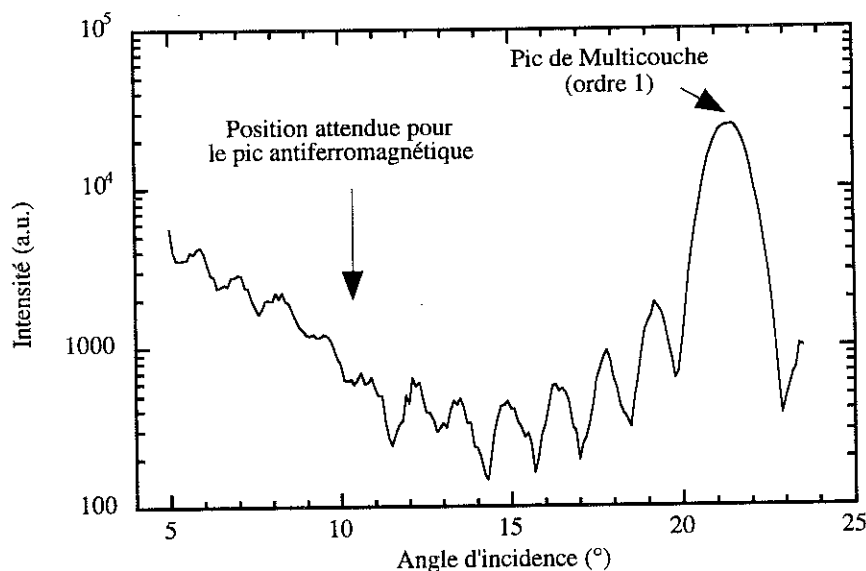


Figure 3.45 : Spectre de diffraction à 776 eV pour multicouche $[Cu_{(8.8Å)}/Co_{(13.2Å)}]_{15}$

Afin de s'affranchir des franges d'interférences et de mettre en évidence un pic de diffraction antiferromagnétique, nous avons utilisé la possibilité de faire varier l'intensité de diffusion magnétique résonante avec la direction d'aimantation. Dans la géométrie σ utilisée, l'intensité diffractée est maximale lorsque le moment magnétique est parallèle au plan de réflexion, et minimale lorsqu'il lui est perpendiculaire. Le champ magnétique est créé au moyen d'un aimant permanent de type SmCo installé à une distance fixe de 3,5 mm de la surface de la multicouche, comme il est montré sur la figure 3.43. L'adaptation de l'enceinte de diffraction que nous avons réalisée pour effectuer ces expériences de XRMS, ne permettait pas la translation de l'aimant par rapport à l'échantillon depuis l'extérieur de la chambre du goniomètre. En revanche la rotation pouvait être pilotée de l'extérieur.

Le champ ainsi appliqué de 500 Gauss est suffisamment faible pour ne pas saturer ferromagnétiquement le couplage entre les couches de Co. Le champ à saturation de la couche est en effet de l'ordre de 1000 Gauss. Deux spectres de diffraction peuvent alors être mesurés, pour les deux orientations de champ parallèle et perpendiculaire à la polarisation incidente. Leur différence permet de mettre en évidence l'existence d'un pic antiferromagnétique, et donc d'un

couplage antiferromagnétique. Le résultat est remarquable comme on peut le voir sur la Figure 3.46. Cette méthode de différence permet clairement de s'affranchir des interférences ainsi que de la queue de réflectivité, pour faire ressortir le pic attendu. De plus l'utilisation de cette méthode montre également que le pic à $q_{1/2}$ n'est pas dû à une éventuelle harmonique d'ordre 2 de la longueur d'onde, puisqu'il disparaît lorsque le champ magnétique est perpendiculaire à la direction de propagation du faisceau et parallèle à sa polarisation..

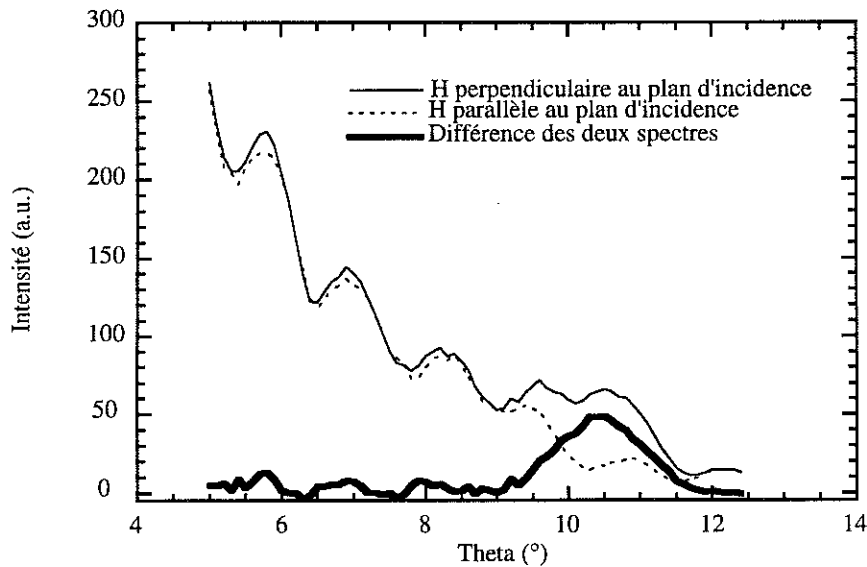


Figure 3.46 : Mise en évidence d'un pic antiferromagnétique à 776 eV dans la multicouche $[Cu_{(8.8\text{\AA})}/Co_{(13.2\text{\AA})}]_{15}$. La légende est donnée pour le champ H appliqué.

Les spectres de diffraction ont été mesurés à plusieurs énergies dans une gamme englobant les seuils L_{III} et L_{II} du Cobalt. La variation de l'intensité intégrée des pics antiferromagnétiques obtenus par soustraction de 2 mesures avec l'aimantation parallèle ou perpendiculaire, est présentée sur la figure 3.47 en fonction de l'énergie des photons incidents.

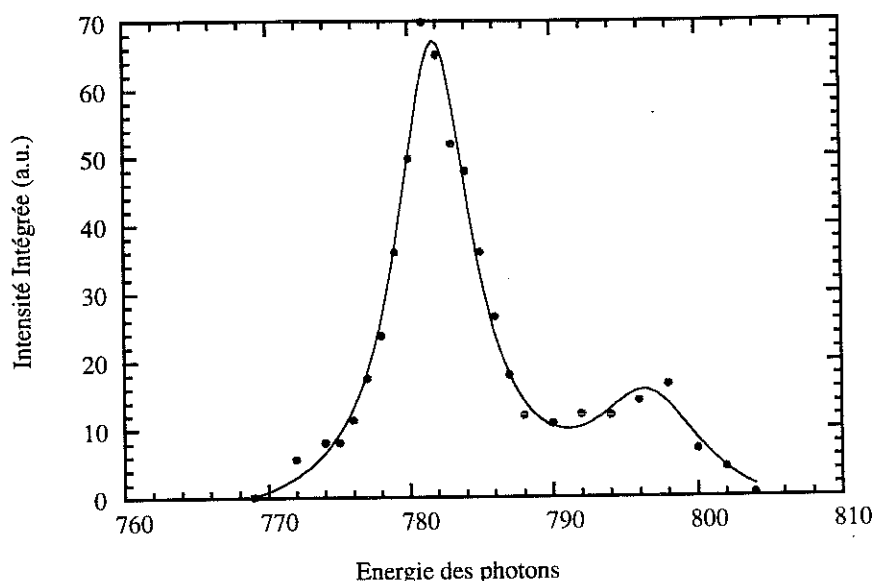


Figure 3.47 : Variation de l'intensité intégrée des pics AF (●) aux seuils L_{III} et L_{II} du Co dans une multicouche $[Cu_{(8.8Å)}/Co_{(13.2Å)}]_{15}$ et affinement lorentzien (---)

Les deux seuils L_{II} et L_{III} sont clairement mis en évidence, bien que l'intensité au seuil L_{II} soit beaucoup plus faible qu'au L_{III} . Le résultat d'un affinement lorentzien pour les deux résonances est donné dans le tableau III.16. Un décalage de 1.2 eV et 1.4 eV est observé pour la position des résonances par rapport aux valeurs des seuils d'absorption du Cobalt. De plus, on notera la largeur importante des lorentziennes : celle-ci est due à la faible résolution du monochromateur de la ligne SU7 dans cette gamme d'énergie.

	E_0 (eV)	Γ (eV)
L_{III}	776.8 ± 0.09	6.475 ± 0.41
L_{II}	791.6 ± 0.6	9.25 ± 2.5

Tableau III.16 : Paramètres des lorentziennes permettant de décrire la variation de l'intensité diffractée en fonction de l'énergie : E_0 position et Γ largeur (en eV).

Afin de simuler l'intensité intégrée aux seuils L_{II} et L_{III} du Cobalt, la théorie cinématique a été utilisée suivant la description présentée au chapitre précédent. Les spectres de dichroïsme [24] servant à évaluer le facteur de diffusion magnétique utilisé dans ce calcul ont été mesurés avec une meilleure résolution. Ils ont donc été convolués par une gaussienne de 3.6 eV, afin de tenir compte de la faible résolution du monochromateur. Cette valeur de l'élargissement

gaussien est déterminée en convoluant de la même manière le spectre d'absorption isotrope, et en le comparant avec celui enregistré lors de l'expérience sur SU7 (figure 3.48).

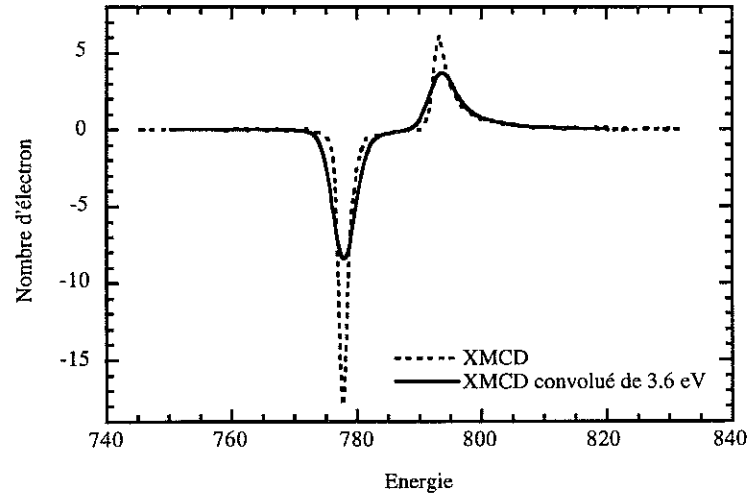


Figure 3.48 : Partie imaginaire du facteur de diffusion magnétique après convolution par une Gaussienne de 3.6 eV.

La multicouche est décrite par un empilement de plans atomiques A et B à une seule dimension. Chaque plan est caractérisé par :

- σ_p^j : concentration en espèce i sur le plan j
- ϵ_p : direction du moment magnétique porté par l'atome i
- f_p : facteur de diffusion anormale de l'espèce i incluant le facteur de diffusion magnétique $F_{res,p}$
- z_p : cote du plan z_j

$$f_p = -(\hat{e}'^* \cdot \hat{e}) (f_{o,p} + f_p' - if_p'') - i \epsilon_p (\hat{e}'^* \times \hat{e}) F_{res}^p \quad [\text{III.29}]$$

Avec ces notations le facteur de structure total peut s'écrire :

$$F(\mathbf{k}, \hat{e}', \hat{e}, E) = \sum_{j=1}^{N_{plans}} \sum_{p=A}^B \sigma_p^j f_p(\mathbf{k}, \hat{e}', \hat{e}, E) e^{ikz_p} \quad [\text{III.30}]$$

Dans cette sommation, et compte tenu de la géométrie utilisée, le facteur de structure contenant la partie classique de la diffraction, dite de charge, et celui contenant la diffraction

magnétique peuvent être séparés sur des états de polarisation finals différents. Seul le calcul pour la partie magnétique à été effectué puisque la contribution du facteur de charge au pic de surstructure est nulle. Les concentrations sont calculées plan par plan. Le couplage antiferromagnétique est décrit en affectant une direction d'aimantation pour les atomes de Co alternativement positive ou négative selon les couches successives de Co. Les amplitudes des pics antiferromagnétiques sont calculées numériquement en fonction de k , puis intégrées selon la même procédure que pour l'expérience.

La figure 3.49 compare les intensités intégrées mesurées et calculées. Un facteur de normalisation a été appliqué aux valeurs calculées.

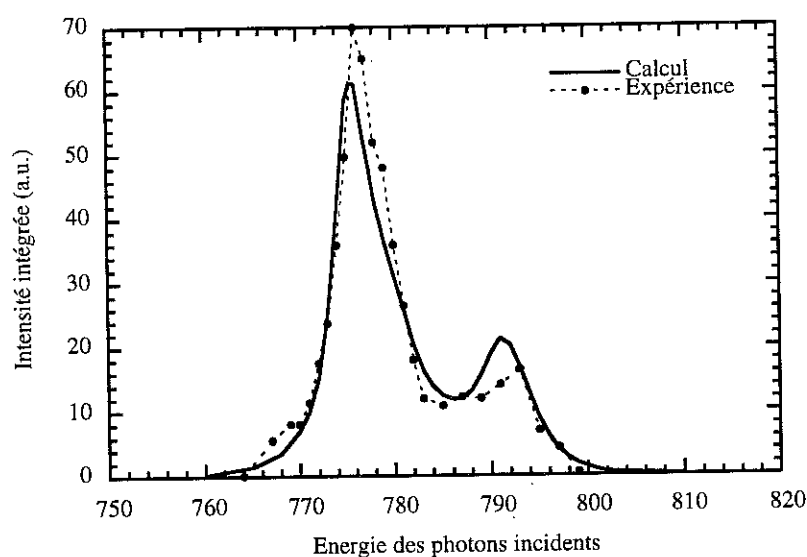


Figure 3.49 : Courbe expérimentale et calculée pour l'intensité intégrée du pic AF en fonction de l'énergie dans un modèle cinématique

On constate que le calcul reproduit bien le décalage de 1 eV observé expérimentalement entre les énergies aux maxima des résonances et celles des seuils d'absorption. Celui-ci est principalement dû aux facteurs de Lorentz (correction de l'angle de Bragg comprenant la correction due à l'indice) et d'absorption, qui déforment la résonance en énergie, en amplifiant le signal aux basses énergies, et en le diminuant fortement à la résonance. L'accord semble cependant moins bon que dans le cas simple de l'affinement par deux lorentziennes.

4.4 / Multicouche Ag/Ni

Nous avons réalisé le même type de mesure sur le système multicouche à base d'Ag et de Ni étudié dans le cas du couplage ferromagnétique induit par un champ en géométrie

longitudinale. Dans ce cas la multicouche étudiée est très épaisse (de l'ordre de 0.5 μm) et ne présente donc pas de franges d'interférences. L'utilisation d'un champ magnétique appliqué n'est pas nécessaire pour faire ressortir le pic AF. Les caractéristiques de la multicouche sont celles explicitées au paragraphe III.2.2.

La géométrie utilisée dans cette mesure est la géométrie σ , décrite sur la figure 3.43. La mesure des spectres de diffraction a été réalisée dans la gamme d'énergie des seuils L_{II} (870.5 eV) et L_{III} du Ni (852.9 eV). Les spectres de diffraction sont présentés sur la figure 3.50. Les spectres de diffraction du pic AF et du pic de la multicouche ont été enregistrés simultanément. Ceci permet donc d'effectuer une analyse quantitative en comparant l'intensité du pic de surstructure à celle du pic de modulation chimique.

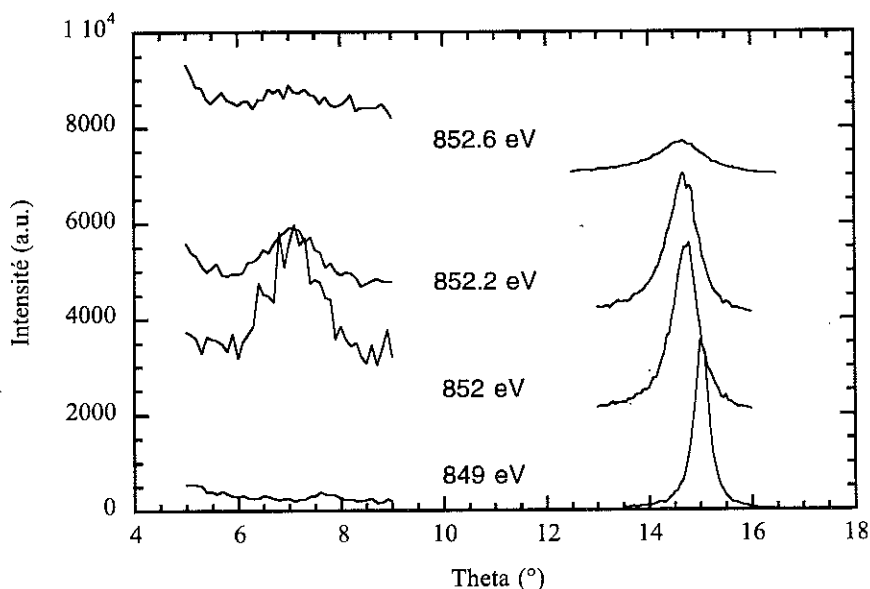


Figure 3.50 : Evolution du pic AF et du pic de modulation chimique en fonction de l'énergie des photons incidents.

Chaque pic de Bragg est affiné, au moyen du programme ABFFit, en considérant qu'il présente une forme Lorentzienne. Le fonds de réflectivité sous-jacent est affiné par un polynôme d'ordre 2. Des essais d'affinement en tenant compte d'une forme pseudo-voigt donnent des résultats très similaires, avec des coefficients lorentziens supérieurs à 0.95.

Le résultat de cette intégration fournit une courbe résonante au seuil L_{III} similaire à celle décrite pour le cas du système Cu/Co. La deuxième résonance au seuil L_{II} n'est toutefois pas observée, car à ces énergies l'intensité du pic AF diminue fortement, et le fonds de réflectivité

augmente fortement d'où une qualité de signal insuffisante. Un affinement lorentzien de la résonance au seuil L_{III} est présenté sur la figure 3.51, et les paramètres de la lorentzienne sont donnés dans le tableau III.17. On constate que la résonance magnétique se produit à 1 eV au dessous du seuil du Ni qui est à 852.9 eV, au maximum de la raie blanche, ce qui est en accord avec l'observation similaire faite pour la multicouche Cu/Co.

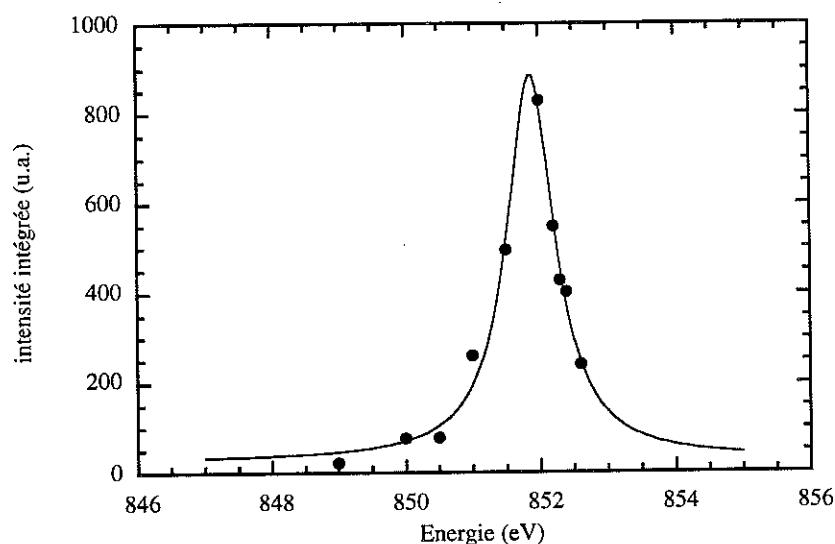


Figure 3.51 : Intensité intégrée du pic AF en fonction de l'énergie au seuil L_{III} de Ni dans une multicouche Ag/Ni. (la courbe est un affinement Lorentzien des données)

	E_0	Γ
Valeur	851.9	0.86
Erreur	0.02	0.1

Tableau III.17 : Affinement lorentzien de la forme de la résonance

Afin d'obtenir une description quantitative de la résonance, le modèle cinématique exposé précédemment est développé sous une forme analytique compacte. On suppose dans ce calcul que la multicouche peut être décrite par un empilement périodique parfait. Le développement de la formule du paragraphe 4.3 conduit à l'expression suivante pour le rapport des intensité de la raie antiferromagnétique à la raie de Bragg de superréseau :

$$\frac{I_{AF}}{I_F} = \frac{1}{2} \frac{n_m^2}{(1+x^2)} \frac{\cos^2(\theta_{AF}) F_{Ni\ mag}^2}{F_r^2 + F_l^2} \text{CorrL.CorrM} \quad [III.31]$$

où :

n_m	: amplitude de la résonance magnétique lorentzienne au seuil L_m en unités d'électron.
x	: énergie réduite décrivant la résonance lorentzienne, $x=(E-E_0)/\Gamma$
$\cos^2(\theta_{AF})$	: terme provenant du produit vectoriel des polarisations qui est lié à la géométrie de diffraction.
F_{ni}^{mag}	: facteur de structure magnétique dû à l'empilement antiferromagnétique.
CorrL	: Correction de Lorentz décrite ci-après.
CorrM	: Correction pour l'aimantation moyenne.
Fr et Fi	: parties réelle et imaginaire du facteur de structure non magnétique

L'utilisation de ce rapport permet de s'affranchir des corrections d'absorption, puisque, dans le cas d'un échantillon infiniment épais elles ne dépendent pas de k et sont les mêmes pour les deux ordres de diffraction. La correction de Lorentz est donnée simplement par :

$$\text{CorrL} = \frac{\sin(2\theta_F)}{\sin(2\theta_{AF})} \quad [\text{III.32}]$$

La multicouche n'étant pas saturée par un champ magnétique extérieur, seuls les domaines magnétiques pour lesquels l'aimantation dans le plan des couches a une composante parallèle au plan d'incidence participent à l'intensité du pic AF. Si l'on suppose que ces domaines ont des orientations aléatoires dans le plan de la multicouche, la correction pour l'aimantation peut s'écrire comme la valeur moyenne :

$$\text{CorrM} = \langle \cos^2 \phi_n \rangle \quad [\text{III.33}]$$

où ϕ est l'angle entre l'aimantation et la normale au plan de diffraction.

Dans le cas où l'orientation des domaines est distribuée uniformément en fonction de l'angle ϕ , cette correction vaut 1/2.

L'affinement des données permet alors de déterminer les paramètres de la résonance magnétique lorentzienne. Les valeurs obtenues pour la raie antiferromagnétique sont données dans le tableau III.18:

	E_0	n_m	Γ
Pic de sur structure	852.8	7.53	1.2
Rapport d'asymétrie	852.6	7.85	1.47

Tableau III.18 : Comparaison des paramètres de la lorentzienne décrivant la résonance magnétique au seuil L_{III} de Ni pour une multicouche Ag/Ni

Comme le montre le tableau III.18, ces valeurs très semblables à celles obtenues lors de la mesure du rapport d'asymétrie sur le même échantillon(cf §2.6). Elles sont aussi comparables avec les valeurs de position et de largeur du signal de XMCD pour du Ni massif. Les écarts observés sur la position et la largeur par rapport à l'affinement lorentzien s'expliquent comme dans le cas précédent, par l'élimination des effets de la correction d'absorption dans le rapport I_{AF}/I_F .

4.5 / Multicouche Ag/NiFe détermination des couplages bilinéaire et biquadratique entre couches

Dans ce dernier paragraphe, nous souhaitons montrer qu'il est possible de déterminer le couplage de chacun des éléments constituant l'une des sous-couches et de suivre leur évolution avec le champ magnétique appliqué. Cette étude a été effectuée sur la multicouche Ag/NiFe utilisée lors de l'expérience de XRMS en polarisation linéaire. Les pics de surstructure antiferromagnétiques et les pics de la modulation chimique ont été mesurés à la fois aux seuils de Ni et de Fe. La figure 3.52 montre les variations d'intensité observées au voisinage du seuil L_{III} de Fe. Nous avons pu déterminer les paramètres de la résonance magnétique associés aux seuils L_{III} du Fer, en la supposant lorentzienne. Cependant, la forte absorption aux seuils L du Ni, due à l'absorption par le Fer, ne nous a pas permis d'effectuer une analyse quantitative des données.

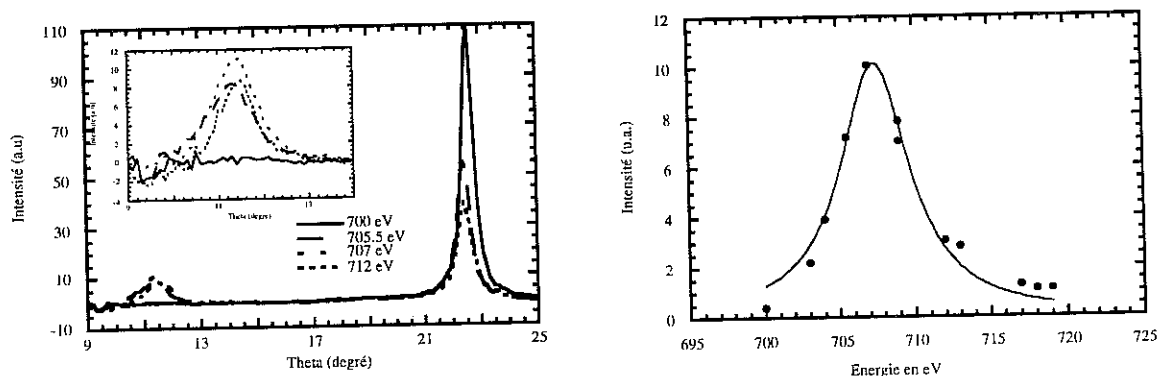


Figure 3.52 : Pic de surstructure antiferromagnétique et pic de structure pour la multicouche Ag/NiFe et pour différentes énergies au voisinage du seuil L_{III} du Fer (à droite) et résonance en énergie au seuil L_{III} de Fe pour l'intensité intégrée du pic AF (à gauche).

L'analyse quantitative des données est compliquée par le fait de la faible résolution en énergie de la ligne de lumière SU7. L'estimation de la résolution se fait par comparaison de la largeur de la résonance du pic antiferromagnétique (4.7 eV) par rapport à celle du signal de dichroïsme du Fer (2.8 eV). Ceci donne une résolution de 4.15 eV au seuil L_{III} du Fer (707 eV).

Nous avons donc dû convoluer les valeurs des facteurs de diffusion anormale de Ni et Fe présentés au paragraphe 3.3.2 par cet élargissement. Une fois les valeurs des facteurs anormaux convoluées, le même type d'analyse que celui explicité pour le cas de la couche Ag/Ni est effectuée. On obtient finalement les aires intégrées du pic de surstructure dont la dépendance en fonction de l'énergie est représentée sur la figure 3.52. Elle peut être simulée par une lorentzienne avec une amplitude de résonance de $8.5 \pm 1.5 r_o$, et une largeur de 4.7 eV, soit une aire intégrée de 39.95 r_o eV. Le même calcul effectué au seuil L_{III} sur le dichroïsme du Fer massif donne 37.8 r_o eV. On retrouve donc ici, assez directement un signal magnétique pour le Fer dans ces multicouches comparable à celui du Fer massif bcc. Ceci confirme l'évaluation du moment magnétique du fer dans ces couches obtenu par l'interprétation du rapport d'asymétrie dans le cas du couplage ferromagnétique induit par un champ de saturation (paragraphe 3.3).

Variation du couplage entre couches de permalloy avec le champ magnétique appliqué.

Jusqu'à présent nous avons considéré que le couplage de couche à couche était parfaitement antiferromagnétique. Nous avons aussi supposé que l'orientation de l'aimantation était homogène dans un domaine ferromagnétique, mais que les orientations fluctuaient aléatoirement d'un domaine à l'autre en restant dans le plan des couches. En réalité Rodmacq *et al* [53] ont observé que pour une épaisseur de la couche séparatrice d'Argent dans laquelle la force du couplage devient faible, les fluctuations d'échange pouvaient stabiliser un autre type d'arrangement. Dans ce cas les moments dans une couche de permalloy tendent à s'orienter à 90° de ceux des deux couches magnétiques adjacentes. Ce couplage peut être décrit phénoménologiquement en tenant compte d'un terme d'énergie de couplage biquadratique (B) outre le terme conventionnel bilinéaire (J) qui rend compte du couplage antiferromagnétique. L'aimantation résultante n'est plus antiparallèle entre couches magnétiques successives. Dans une couche donnée elle présente une certaine désorientation par rapport à la direction du couplage antiparallèle.

Considérons le modèle dans lequel le champ magnétique est appliqué dans le plan des couches selon un angle ϕ par rapport à la normale au plan de diffraction. On suppose de plus que l'aimantation se situe dans le plan des couches, et qu'elle oscille de couche à couche en faisant un angle, alternativement $+\alpha$ et $-\alpha$ avec le champ appliqué (figure 3.53).

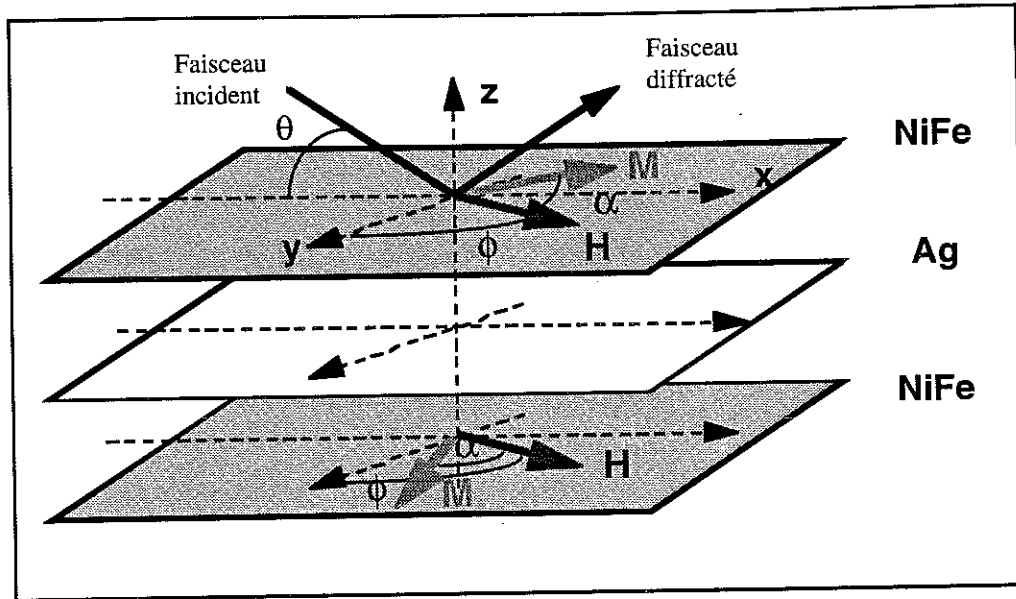


Figure 3.53 : Modèle pour le couplage antiferromagnétique dans une multicouche Ag/NiFe en fonction de l'orientation du champ magnétique appliqué (dans le plan xOy). L'aimantation de chaque couche est désorientée alternativement d'un angle $+\alpha$ et $-\alpha$ par rapport à la direction du champ.

Avec ces notations, l'énergie totale du système peut s'écrire :

$$E = JM_s^2(1 - \cos(2\alpha)) + BM_s^2(1 - \cos 4\alpha) - HM_s t \cos(\alpha) \quad [\text{III.34}]$$

où J et B sont les constantes de couplage bilinéaire et biquadratique, M_s est l'aimantation spontanée dépendante de la température dans chaque couche de NiFe ayant une épaisseur t . H est le champ appliqué.

En champ nul, la minimisation de l'énergie par rapport à α , qui implique $\sin 2\alpha(J + 4B \cos 2\alpha) = 0$, correspond à $\alpha = 90^\circ$ lorsque $J/4B > 1$ (couplage antiparallèle ou antiferromagnétique) et à $\alpha = 0$ lorsque $J/4B < -1$ (couplage parallèle ou ferromagnétique) alors qu'un état canté est stabilisé pour $-1 < J/4B < 1$. Dans l'état canté, l'angle d'équilibre $2\alpha_0$ entre deux couches successives est donné par $\cos 2\alpha_0 = -J/4B$.

Pour un champ appliqué inférieur au champ de saturation H_s , la minimisation de l'énergie donnée par l'équation III.34 conduit à la relation suivante :

$$M_s = \left(\frac{Ht}{4}\right) \frac{1}{[(4B - J)\cos\alpha - 8B\cos^3\alpha]} \quad [\text{III.35}]$$

De cette relation on peut tirer la dépendance en champ de l'aimantation nette $M = M_s \cos(\alpha)$ pour $H < H_s$ et la comparer à la dépendance expérimentale [53].

Pour les multicouches Ag/NiFe préparées par sputtering, il a été observé [54] à basse température des courbes d'aimantation non linéaires, avec une composante non nulle en champ nul, contrairement au cas des Ag/Ni [21]. Une étude en diffraction de neutrons a aussi été réalisée, pour une épaisseur d'Ag correspondant au maximum de magnétorésistance. On observe un bon accord des mesures d'aimantation, de magnétorésistance et de diffraction de neutrons avec un modèle incluant à la fois des contributions bilinéaire et biquadratique à l'énergie totale [53, 77].

Etude en XRMS

En reprenant les équations de la XRMS, on peut décrire la dépendance de l'intensité diffractée à l'ordre 1/2 de la multicouche (pic d'origine magnétique) en fonction des termes de polarisation du faisceau et de la direction d'aimantation dans chacune des 2 couches de permalloy qui forment une maille magnétique double de la maille chimique. Si l'on considère que l'amplitude du moment magnétique porté par Fe n'est pas affectée par l'application d'un champ magnétique, ce qui est satisfait puisque le permalloy a une faible anisotropie, alors les contributions des 2 couches magnétiques au facteur de structure magnétique ont la même amplitude. Seule reste la dépendance du facteur de structure en fonction de la direction de l'aimantation z_i par rapport au produit vectoriel des polarisations. On peut donc écrire, en développant le facteur de structure sur deux types de couches magnétiques différentes (1 et 2) par l'orientation de leur moment magnétique :

$$M^2 \propto |(\mathbf{e}_f \times \mathbf{e}_i)z_1 + e^{iq\Lambda}(\mathbf{e}_f \times \mathbf{e}_i)z_2|^2 \quad [\text{III.36}]$$

L'expression III.36 permet de retrouver le fait que pour un couplage antiferromagnétique avec $z_1 = -z_2$ il apparaît un pic de diffraction magnétique pour $q = (2n+1)\pi/\Lambda$, alors que la contribution est nulle en $q = 2n\pi/\Lambda$ pour le pic de surstructure chimique.

En tenant compte des deux "désorientations" magnétiques, angle de rotation de l'aimantation ϕ par rapport à la normale au plan de diffraction et angle de fermeture des

moments α par rapport à l'aimantation donnés sur la figure 3.53, il vient pour l'intensité du pic AF (à $q = \pi/\Lambda$) dans chacune des géométries (voir figure 3.43 et 3.44) :

Géométrie σ (plan de diffraction vertical) : [III.37]

$$M^2 \propto \cos^2 \theta [\sin(\alpha - \phi) + \sin(\alpha + \phi)]^2$$

Géométrie π (plan de diffraction horizontale) : [III.38]

$$M^2 \propto \sin^2 2\theta [\cos(\alpha - \phi) - \cos(\alpha + \phi)]^2 + [\cos \theta (\sin(\alpha - \phi) + \sin(\alpha + \phi)) - \sin \theta (\cos(\alpha - \phi) - \cos(\alpha + \phi))]^2$$

Dans la géométrie de la diffraction dans le plan vertical (géométrie σ), et pour un champ magnétique appliqué suffisamment faible pour ne pas refermer les moments sur la direction du champ (i.e. $\alpha = \pi/2$), la dépendance en fonction de l'orientation du champ magnétique par rapport au faisceau se réduit à : $M^2 \propto \cos^2 \theta \cos^2 \phi$. L'intensité du pic de surstructure magnétique doit varier avec le $\cos^2$ de l'angle que fait le champ avec la normale au plan de diffraction ce qui est bien observé expérimentalement comme le montre la figure 3.54.

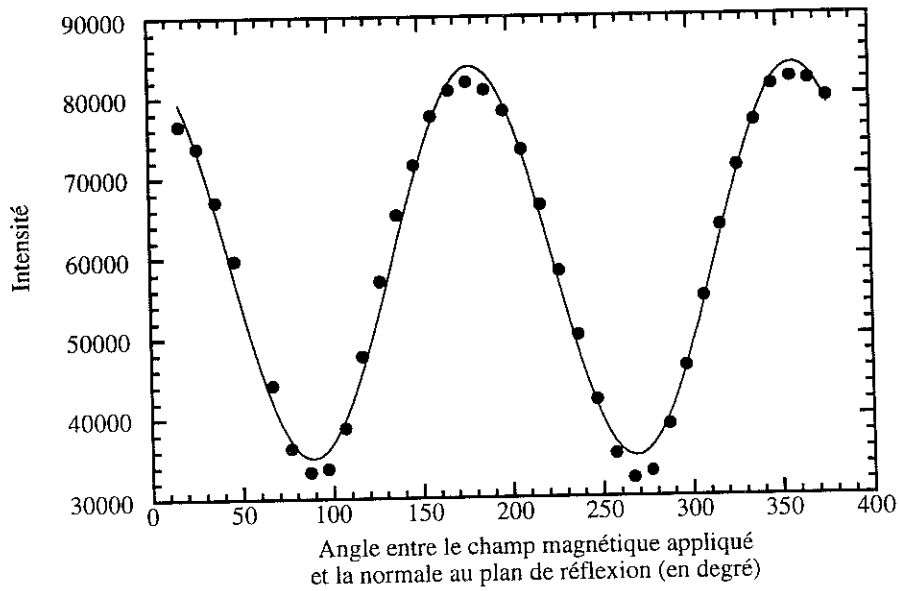


Figure 3.54 : Variation de l'intensité du pic AF en fonction de l'orientation du champ magnétique appliqué pour une multicouche Ag/NiFe au seuil du Fer (707 eV) et en géométrie de diffraction σ .

Nous allons montrer que dans le cas de la diffraction dans le plan horizontal (axe du goniomètre vertical), avec une polarisation incidente horizontale π , la dépendance de l'intensité du pic AF en fonction de l'amplitude du champ appliqué permet de mesurer les constantes de couplages J et B, respectivement bilinéaire et biquadratique. La figure 3.55 montre l'évolution du pic AF (ordre 1/2) en fonction du champ magnétique appliqué, pour la multicouche Ag/NiFe au seuil L_{III} de Fe.

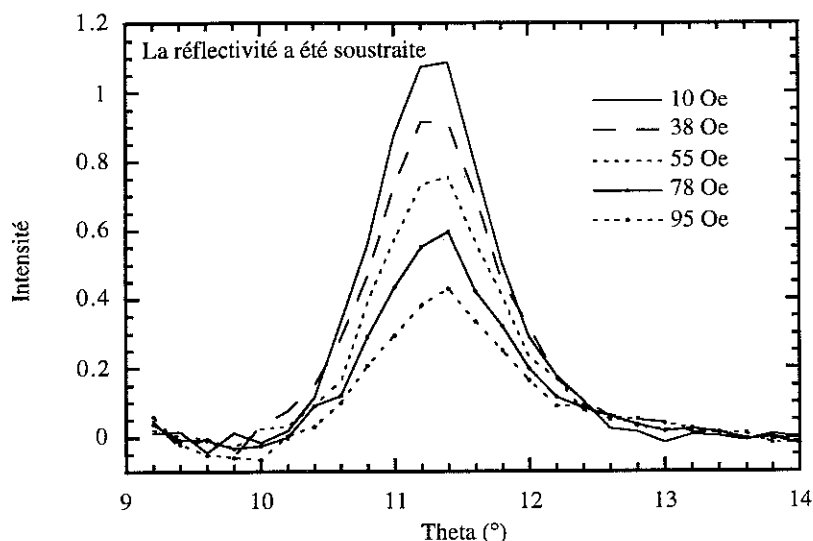


Figure 3.55 : Evolution du pic de surstructure antiferromagnétique d'ordre 1/2 pour une multicouche Ag/NiFe en fonction du champ appliqué, à 707 eV.

A partir de cette mesure, on peut tracer la variation de l'intensité au maximum du pic AF en fonction de l'intensité du champ magnétique (figure 3.56).

En considérant un champ appliqué selon l'axe du goniomètre et perpendiculairement au faisceau, donc tel que $\phi = 0$, l'intensité du pic AF, dans cette géométrie π , est donnée par (à partir de l'équation III.38) :

$$I \propto M^2 \propto \cos^2 \theta \sin^2 \alpha \quad [\text{III.39}]$$

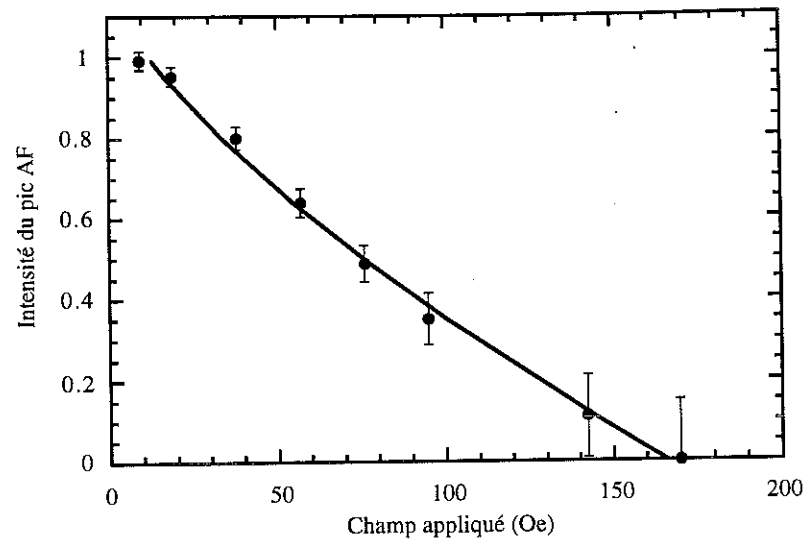


Figure 3.56 : Variation de l'intensité au maximum du pic AF en fonction du champ appliqué pour une multicouche Ag/FeNi au seuil L_{III} de Fe (707 eV)

En inversant les relations III.35 et III.39 on obtient la relation III.40 :

$$H = \left(4 \frac{M_s}{t} \right) \left[(4B - J) \cos(\text{Arcsin}(\gamma I)) - 8B \cos^3(\gamma I) \right] \quad [\text{III.40}]$$

où γ est une constante de proportionnalité affinnable.

L'affinement des paramètres de l'équation III.40, dont le résultat est présenté sur la figure 3.54, donne les valeurs pour les deux constantes de couplages (à 300° K) :

$$JM_s^2 = -2.8 \cdot 10^{-6} \text{ J / m}^2$$

$$BM_s^2 = -0.5 \cdot 10^{-6} \text{ J / m}^2$$

$$\theta_0 = 2\alpha = 180^\circ$$

(angle d'ouverture entre les deux moments en l'absence de champ)

Ces valeurs se comparent favorablement avec celles déterminées par diffraction neutronique sur l'ordre 1/2 [53] à 300 °K :

$$JM_s^2 = -3.8 \cdot 10^{-6} \text{ J / m}^2$$

$$BM_s^2 = -0.4 \cdot 10^{-6} \text{ J / m}^2$$

La valeur de 180° de l'ouverture angulaire entre les deux moments en l'absence de champ magnétique appliqué indique un couplage purement antiferromagnétique à 300°K , en accord avec les critères pour la stabilisation de l'énergie totale. En effet, le terme de couplage biquadratique étant faible, cette multicouche présente à 300°K le cas où $J/4B > 1$, et donc un couplage purement AF.

Il est à noter que l'aimantation intervenant dans les calculs est l'aimantation totale. On ne peut donc pas utiliser le caractère résonant et la sélectivité atomique de la diffraction magnétique pour obtenir les valeurs des constantes de couplage pour chacun des éléments.

4.6 / Conclusion sur les couplages antiferromagnétiques

Les résultats obtenus sur des systèmes multicouche couplés antiferromagnétiquement montrent la potentialité de la technique XRMS pour leur étude. Nous avons notamment montré que la XRMS dans la gamme des X-mous permet une caractérisation rapide de l'état de couplage AF dans les multicouches. Le temps typique d'acquisition d'un spectre de diffraction incluant les pics d'ordre $1/2$, 1 , $3/2$ comme présentés sur la figure 3.57 au seuil L_{III} de Ni et Fe dans Ag/NiFe, est de l'ordre de 5 minutes à SACO sur la ligne SU23. Ce temps d'acquisition relativement court permet d'envisager le développement de ce type de mesure de manière plus standard, à condition qu'un diffractomètre dédié à ces expériences soit disponible, et qu'il permette une installation rapide des échantillons (dispositif de passeur d'échantillon sous vide).

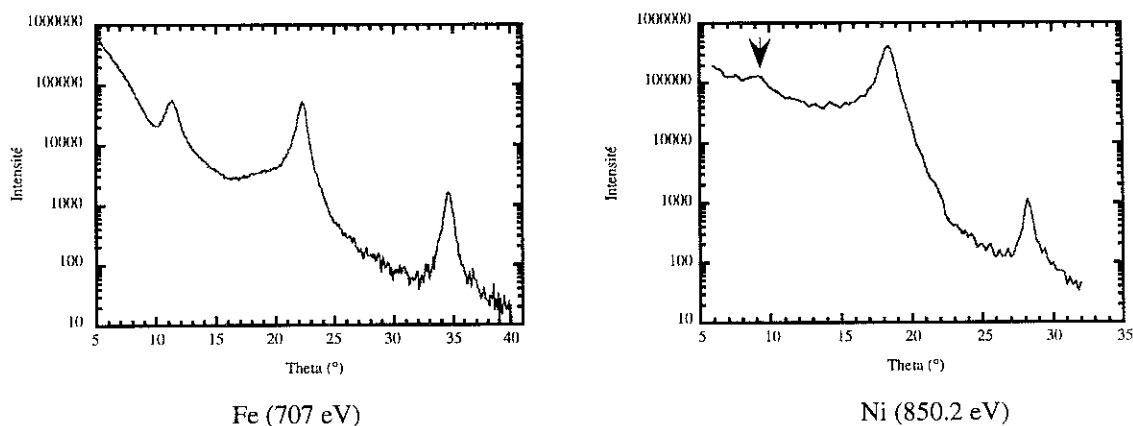


Figure 3.57 : Pics de diffraction d'ordres $1/2$, 1 et $3/2$ pour une multicouche Ag/NiFe couplée antiferromagnétiquement mesurés sur la ligne SU23 à Super ACO à 707 eV au seuil L_{III} du Fer (Figure de gauche) et à 850.2 eV au seuil du Ni (Figure de droite). On notera le fonds de réflectivité beaucoup plus important au seuil L_{III} de Ni qu'à celui de Fe dû à l'absorption par le Fer. L'observation du pic AF au seuil L_{III} de Ni (à 853 eV) marqué par une flèche est à peine possible à cause de la trop forte absorption.

Dans ce travail nous avons montré qu'une analyse quantitative de l'intensité du pic antiferromagnétique, en vue de l'estimation de la valeur des moments magnétiques est possible. Elle implique d'enregistrer un nombre suffisant de spectres de diffraction en fonction de l'énergie afin de décrire la résonance spectrale avec une bonne précision. Le caractère de spécificité atomique que présente cette méthode résonante permet d'étudier séparément chacun des composants dans le cas d'un alliage en système multicouche. Un exemple en a été donné pour le système Ag/NiFe. Cependant dans ce cas particulier, la forte absorption due au Fer diminue fortement la statistique de comptage aux seuils L de Ni et réduit le rapport signal sur bruit, ce qui ne nous a pas permis une analyse quantitative des pics de surstructures.

Dans l'avenir, pour pouvoir apporter des renseignements plus pertinents et répondre mieux aux problèmes posés par le magnétisme des multicouches, il faudrait développer les études de l'évolution du pic AF en fonction de variables externes telles que le champ appliqué, ou la température. Nous avons déjà montré la possibilité de déterminer des constantes de couplages bilinéaire et biquadratique (J et B) dans le cas du système Ag/NiFe, par une étude en fonction de l'intensité du champ appliqué. On pourra aussi suivre l'évolution du couplage aux seuils de Fe et Ni en fonction de la température dans les multicouches permalloy/Ag, pour lesquels des mesures conjuguées de Mössbauer au seuil du fer et d'aimantation totale suggèrent un comportement différent pour Ni et Fe, ce qui est à priori surprenant. De telles études impliquent également la construction d'un diffractomètre permettant de refroidir l'échantillon sous vide.

5. / Conclusions générales

Nous avons montré, pour la première fois à notre connaissance, la possibilité pratique d'effectuer des mesures de diffraction magnétique résonante en X-mous sur des systèmes présentant une translation périodique de quelques dizaines d'angströms. Ceci ouvre le champ aux études des structures magnétiques artificielles multicouches, au moyen des rayons X.

Les forts effets de résonances observés en XRMS aux seuils L de métaux de transitions tels que Fe, Co, et Ni, nous ont permis de montrer diverses possibilités pour l'utilisation de la technique en X-mous. L'équivalence entre la XRMS et le XMCD a été montrée de manière expérimentale, dans une géométrie de diffraction longitudinale utilisant la polarisation circulaire. Le développement d'une méthode d'extraction, s'apparentant aux méthodes de DAFS (Diffraction Anomalous Fine Structure) [78] permet d'isoler la partie imaginaire du facteur de diffusion atomique magnétique, et donc d'utiliser les règles de somme pour la détermination quantitative de moment magnétique. Ceci montre la possibilité pratique d'utiliser la méthode pour mesurer des spectres de XMCD dans les cas où la méthode plus simple de mesure du rendement total d'électron ne le permet pas. C'est le cas en particulier pour les multicouches recouverte d'une couche de protection ou d'une couche d'oxyde épaisse. L'utilisation de la polarisation linéaire permet de s'affranchir des difficultés introduites par l'état de polarisation plus complexe nécessaire en géométrie longitudinale. Nous l'avons utilisé pour mesurer de manière simple, mais indirecte le signal de XMCD pour les constituants 3d des systèmes multicouche. Par comparaison avec un signal de référence obtenu pour des systèmes massifs en détection d'électron, nous avons pu déterminer de façon sélective les moments dans un alliage.

Outre la détermination sélective des moments magnétiques portés par les éléments constitutifs de la multicouches la méthode présente aussi l'avantage d'une sensibilité réelle à la structure magnétique, notamment à l'évolution de l'aimantation à travers les couches. Il a été montré la grande sensibilité du signal de rapport d'asymétrie à la présence éventuelle de plans magnétiquement inertes. La mesure de plusieurs ordres de diffraction apporte une méthode de discrimination entre réduction de moment et présence de plans morts.

Enfin, la caractérisation des états des couplages antiferromagnétiques ou plus complexes s'installant entre les couches apparaît suffisamment directe, du fait de l'observation de pics de surstructure purement magnétique, pour permettre d'envisager une utilisation plus extensive. Les intensités diffractées pour les ordres demi-entiers de diffraction, liés à la présence d'un couplage antiferromagnétique, sont suffisamment importantes pour une mise en évidence rapide. Une détermination quantitative des mécanismes déterminant l'état d'équilibre du

couplage a été effectuée, et donne des résultats en bon accord avec des mesures similaires effectuées en diffraction neutronique.

En revanche, la méthode souffre d'un certain nombre de difficultés spécifiques, liées à l'environnement sous bon vide nécessaire dans le domaine des X-mous, mais aussi à l'absorption résonante très forte au seuil L_{III} principalement qui, jointe à la variation brutale du facteur de diffusion atomique qui lui est associée, peut conduire à des intensités diffractées très faibles dans certaines zones du spectre en énergie.

Des progrès dans le domaine des détecteurs (diode semi-conductrice) sont aussi nécessaires et en cours. En effet, la limite de détection due à l'utilisation de compteurs proportionnels à gaz, impose une limite dans la statistique de comptage. Ces compteurs ne sont en effet plus linéaires au delà de 16000 coups par seconde. Un temps de comptage de l'ordre de plusieurs minutes (~10 min) est nécessaire afin de mesurer un rapport d'asymétrie de 0.5% sur un pic de Bragg. Cette limitation expérimentale ne nous a pas permis de mesurer plus quantitativement la polarisation induite par le Co sur les électrons 3d du Cu dans une multicouche Cu/Co. Un signal de l'ordre de 0.5% en rapport d'asymétrie a bien été observé au maximum du pic de Bragg de premier ordre, mais le rapport signal sur bruit ne permettait pas de tirer de conclusion quantitative. Les progrès en cours avec des machines 100 fois plus brillantes dans le domaine des X-mous, que celle que nous avons utilisées, devraient permettre des avancées réelles dans ce domaine.

Références Bibliographiques du Chapitre III :

- [1] C.F. Majkrzak, J. Kwo, M. Hong, Y. Yafet, D. Gibbs, J. Bohr, *Advances in physics*, **40** (1991) 99.
- [2] M.B. Salamon, S. Sinha, J.J. Rhyne, J.E. Cunningham, R.W. Erwin, J.A. Borchers, C.P. Flynn, *Physical Review Letters*, **56** (1986) 259.
- [3] Gyorgy, *Physical Review Letters*, **45** (1980) 57.
- [4] M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F.N.V. Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, J. Chazelas, *Physical Review Letters*, **61** (1988) 2472.
- [5] P. Bruno, C. Chappert, *Physical review Letters*, **67** (1991) 1602.
- [6] J.M. Tonnerre, L. Sève, D. Raoux, B. Rodmacq, G. Soullié, P. Wolfers, *Physical Review Letters*, **75** (1995) 740.
- [7] J.M. Tonnerre, M. Jergel, D. Raoux, M. Idir, G. Soullier, R. Barchewitz, B. Rodmacq, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **121** (1993) 230.
- [8] B. Rodmacq, B. George, M. Vaezzadeh, P. Mangin, *Physical Review B*, **46** (1992) 1206.
- [9] C.A. Dos Santos, B. Rodmacq, M. Vaezzadeh, B. George, *Applied Physics Letters*, **59** (1991) 126.
- [10] B. Rodmacq, *Journal of Applied Physics*, **70** (1991) 4194.
- [11] R. Barchewitz, R. Marmoret, *Revue Phys. Appl.*, **23** (1988) 1661.
- [12] F. De Bergevin, M. Brunel, R.M. Galera, C. Vettier, S. Lefebvre, M. Bessière, *Physical Review B*, **46** (1992) 10772.
- [13] D.T. Cromer, J.B. Mann, *Acta Crystallographica A*, **24** (1968) 321.
- [14] A. Freund dans "Anomalous Scattering" (eds. S. Ramaseshan, C. Abrahams, 1975) 69.
- [15] A. Antoniadis, J. Berruyer, A. Filhol, (ILL Report 87AN20T & 87AN22T, 1990).
- [16] A.E. Rosenbluth, P. Lee, *Applied Physics Letters*, **40** (1982) 466.
- [17] B.L. Henke, P. Lee, T.J. Tanaka, R.L. Shimabukuro, B.K. Fujikawa, *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, **27** (1982) 1.
- [18] R.L. Blake, J.C. Davis, D.E. Graessle, T.H. Burbine, E.M. Gullickson dans "Resonant Anomalous X-ray Scattering, Theory and Applications" (eds. G. Materlik, C. J.Sparks, K. Fischer, North-Holland, Amsterdam, 1994)
- [19] D.B. Mac Whan dans "Physics, Fabrication and Applications of multilayered Structures" (eds. P. Dhez, C. Weibuch, North Holland, Amsterdam, 1988)
- [20] W.J. Bartels, J. Hornstra, D.J.W. Lobeek, *Acta. Cryst.*, **A42** (1986) 539.
- [21] B. Rodmacq, P. Mangin, C. Vettier, *Europhysics Letters*, **15** (1991) 503.

- [22] L. Sève, J.M. Tonnerre, D. Raoux, (En préparation)
- [23] C.T. Chen, F. Sette, Y. Ma, S. Modesti, *Physical Review B*, **42** (1990) 7262.
- [24] C.T. Chen, N.V. Smith, F. Sette, *Physical Review B*, **43** (1991) 6785.
- [25] S. Sasaki, Anomalous scattering factor for synchrotron radiation users calculated using Cromer and Liberman's method (National. Lab. for High Energy Physics, 1984).
- [26] J.J. Hoyt, D. De Fontaine, W.K. Warburton, *Journal of Applied Crystallography*, **17** (1984) 344.
- [27] P. Saintavit, Communication privée, (1993)
- [28] L. Tröger, D. Arvanitis, K. Baberschke, H. Michaelis, U. Grimm, E. Zschech, *Physical Review B*, **46** (1992) 3283.
- [29] M. Pompa, Etude de Supraconducteur à Haute Température Critique au Seuil L₃ du Cuivre (Université Paris XI) 1995.
- [30] P. Saintavit, D. Lefebvre, C. Cartier, C. Laffon, G. Krill, C. Brouder, J.P. Kappler, J. Goulon, *Journal of Applied Physics*, **72** (1992) 1985.
- [31] J.P. Schillé, *Dichroïsme Magnétique dans le domaine des Rayons X : Application à l'Etude du Magnétisme de composés de Terre-Rares* (Strasbourg I) 1994.
- [32] J. Röhler, *Handbook on the physics and chemistry of rare earth* (Elsevier Science Publisher, 1987)
- [33] P. Wolfers, *J. Appl. Cryst.*, **23** (1990) 554.
- [34] W.L. O'Brien, B.P. Toner, G.R. Harp, S.S.P. Parkin, *Journal of Applied Physics*, **76** (1994) 6462.
- [35] B.T. Thole, P. Carra, F. Sette, G. Van Der Laan, *Physical Review B*, **68** (1992) 1943.
- [36] P. Carra, B.T. Thole, M. Altarelli, X. Wang, *Physical Review Letters*, **70** (1993) 694.
- [37] C.T. Chen, Y.U. Idzerda, H.J. Lin, N.V. Smith, G. Meigs, E. Chaban, G.H. Ho, E. Pellegrin, F. Sette, *Physical Review Letters*, **75** (1995) 152.
- [38] M.A. Arrio, P. Saintavit, C.C.d. Moulin, C. Brouder, T. Mallah, M. Verdaguer, Y. Journaux, F. De Groot, *Aimants à base moléculaire et chaînes bimétalliques magnétiques* (Strasbourg 6-7 janvier 1994, 1994).
- [39] R. Wu, A.J. Freeman, *Physical Review Letters*, **73** (1994) 1944.
- [40] S.C. Hong, A.J. Freeman, C.L. Fu, *Physical Review B*, **39** (1989) 5719.
- [41] E. Wimmer, A.J. Freeman, H. Krakauer, *Physical Review B*, **30** (1984) 3113.
- [42] N.V. Smith, C.T. Chen, F. Sette, L.F. Mattheiss, *Physical Review B*, **46** (1992) 1023.
- [43] J. Vogel, M. Sacchi, *Physical Review B*, **49** (1994) 3230.
- [44] B. Rodmacq, C.A. Dos Santos, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **104** (1992) 1739.
- [45] B. Rodmacq, P. Mangin, M. Hennion, R.W. Erwin, *Physica B*, **180 & 181** (1992) 477.

- [46] L.C. Duda, J. Stöhr, D.C. Mancini, A. Nilsson, N. Wassdahl, J. Nordgren, M.G. Samant, *Physical Review B*, **50** (1994) 16758.
- [47] J.M. Tonnerre, L. Sève, D. Raoux, *Nuclear Instruments and Methods B*, **97** (1995) 444.
- [48] L. Sève, J.M. Tonnerre, D. Raoux, B. Rodmacq, C.-C. Kao, V. Chakarian, C.T. Chen, (Soumis)
- [49] L. Sève, J.M. Tonnerre, D. Raoux, J.F. Bobo, M. Piecuch, M.D. Santis, P. Troussel, J.M. Brot, V. Chakarian, C.C. Kao, C.T. Chen, *J.M.M.M.*, **148** (1995) 68.
- [50] P. Carra, M. Altarelli, F. De Bergevin, *Physical Review B*, **40** (1989) 7324.
- [51] J.-F. Bobo, B. Baylac, L. Hennet, O. Lenoble, M. Piecuch, B. Raquet, J.-C. Ousset, *J.M.M.M.*, **121** (1993) 291.
- [52] C.T. Chen, Communication privée,
- [53] B. Rodmacq, K. Dumesnil, P. Mangin, M. Hennion, *Physical Review B*, **48** (1993) 3556.
- [54] B. Rodmacq, G. Palumbo, P. Gerard, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **118** (1993) L11.
- [55] A. Mallon, S. Auffret, B. Rodmacq, *Physical Review B*, (Soumis)
- [56] E.A. Stern dans "X-Ray Absorption" (eds. D. C. Koningsberger, R. Prins, Wiley, Eindhoven, 1988) 3.
- [57] J. Stöhr dans "X-ray Absorption" (eds. D. C. Koningsberger, R. Prins, Wiley, Eindhoven, 1988) 3.
- [58] A. Fontaine dans "Neutron and Synchrotron Radiation for Condensed Matter Studies. Volume I Theory, Instruments and Method" (eds. J. Baruchel, J. L. Hodeau, M. S. Lehmann, J. R. Regnard, C. Schlenker, Les Editions de Physiques. Springer Verlag, Les Ulis, 1994) 323.
- [59] A. Michalowicz, Méthode et programmes d'analyse des spectres d'absorption des rayons X (EXAFS). Applications à l'étude de l'ordre local et du désordre cristallin dans les matériaux inorganiques. (Université Paris Val de Marne) 1990.
- [60] B. Lengeler, P. Eisenberger, *Physical Review B*, **21** (1980) 4507.
- [61] D. Aberdam, WWW.ESRF.Fr, (1997)
- [62] A.G. Mac Kale, S.K. Chan, B.W. Veal, A.P. Paulikas, G.S. Knapp, *J.Phys.*, **47** N°12 (1986) C8.
- [63] A.G. Mac Kale, B.W. Veal, A.P. Paulikas, S.K. Chan, G.S. Knapp, *J.Am.Chem.Soc.*, **110** (1988) 3763.
- [64] Binary Alloy Phase Diagram (American Society for Metals, 1986)
- [65] R.M. Bozorth, *Ferromagnetism* (D. Van Nostrand Company Inc., Princeton, 1963)
- [66] M.F. Collins, J.B. Forsyth, *Philosophical Magazine*, **8** (1963) 401.
- [67] G.G.E. Low, M.F. Collins, *J. Appl. Phys.*, **34** (1963) 1195.

- [68] C.G. Schull, M.K. Wilkinson, Physical Review, **97** (1956) 304.
- [69] S. Blügel, H. Akai, R. Zeller, P.H. Dederichs, Physical Review B, **35** (1987) 3271.
- [70] R. Zeller, J. Phys. F : Met. Phys., **17** (1987) 2123.
- [71] T. Böske, W. Clemens, C. Carbone, W. Eberhardt, Physical Review B, **49** (1994) 4003.
- [72] H. Maruyama, Communication privée,
- [73] S. Bouat, B. Rodmacq, P. Auric, Transmission X-Ray diffraction and mössbauer spectroscopy study of annealed magnetoresistive Ag/Ni₈₁Fe₁₉ Multilayers (1997).
- [74] M. Brunel, G. Patrat, F. De Bergevin, F. Rousseaux, M. Lemonnier, Acta Crystallographyca A, **39** (1983) 84.
- [75] A. Cebollada, J.L. Martinez, J.M. Gallego, J.J. De Miguel, R. Miranda, S. Ferrer, F. Batallan, G. Fillion, J.P. Rebouillat, Physical review B, **39** (1989) 9726.
- [76] J.F. Bobo, Non publié,
- [77] C. Dufour, K. Dumesnil, M. Hennion, P. Mangin, G. Marchal, B. Rodmacq, M. Vergnat, Scientific Review, **6** (1995) 26.
- [78] J. Vacinova, Etude Structurale des Oxydes de platine par les méthodes de diffusion anormale et de DAFS (Université Joseph Fourier - Grenoble I) 1995.

CHAPITRE IV

Diffraction Magnétique Résonnante Détermination de profil de polarisation

1. / Introduction.....	149
2. / Principe de la mesure et résultats expérimentaux.....	154
2.1. / Expérience.....	154
2.2. / Mesure des rapports d'asymétrie.....	157
3. / Modèle structural.....	162
3.1. / Principe du calcul.....	162
3.2. / Détermination des facteurs anomaux	164
3.3. / Modélisation de la couche.....	166
4 / Détermination des paramètres structuraux.....	168
5. / Résultats des affinements du rapport d'asymétrie	173
5.1/ Profils modèles.....	173
5.2 / Résultats des affinements.....	176
6. / Discussion.....	181
7. / Conclusion	186
Références Bibliographiques du Chapitre IV.....	188

CHAPITRE IV

Détermination du profil de polarisation magnétique des couches de Cérium par Diffraction Magnétique Résonante sur des multicouches Ce/Fe

I. / Introduction

L'attention particulière portée aux systèmes à base de terres rares et/ou de métaux de transition vient des propriétés magnétiques originales que ces systèmes peuvent présenter, notamment dans des structures artificielles comme les couches minces épitaxiées ou les superréseaux, où l'interface joue un rôle prédominant. La maîtrise de ces propriétés magnétiques passe par une compréhension fine des mécanismes de couplage mis en jeu dans ces systèmes et reste un des points clés dans l'élaboration de matériaux nouveaux à forte densité de stockage magnétique, enjeu technologique important de ces dernières années. Dans le cas des multicouches magnétiques où alternent des couches magnétiques et non magnétiques, la connaissance des mécanismes de polarisation magnétique des couches non magnétiques est fondamentale.

Le but de l'étude présentée ici est de montrer la possibilité d'utiliser la diffraction magnétique résonnante des rayons X pour obtenir des informations directes sur le profil de polarisation magnétique dans de telles multicouches, en utilisant la spécificité atomique liée aux

résonances d'absorption X des atomes non magnétiques. Le choix des multicouches Cérium - Fer repose sur plusieurs arguments :

- le dichroïsme circulaire d'absorption X aux seuils L du Cérium dans ces couches a été mesuré [1] et est relativement important, de l'ordre du pourcent à température ambiante pour des couches relativement fines de Cérium (~ 10 à $20 \text{ \AA}$). La structure globale des spectres de dichroïsme aux seuils L_{III} et L_{II} (rapport des amplitudes, et des largeurs relative des spectres ainsi que le signe des spectres), est très proche de celles qui peuvent être mesurées pour le composé $CeFe_2$ au dessous de sa température de Curie (230 K). Ceci implique une forte polarisation magnétique des électrons 5d du Cérium, qui portent donc un moment magnétique d'origine 5d ordonné, et suggère la possibilité d'effectuer des mesures XRMS avec une précision raisonnable. De plus, la mesure de spectres d'absorption aux seuils L_{III} et L_{II} , montre un rapport de branchement (rapport de section efficace entre les deux seuils) de 1:2 pour le spectre isotrope non magnétique (en accord avec le nombre d'électrons dans chacun des états $2p_{1/2}$ et $2p_{3/2}$). Le signal de dichroïsme est positif au seuil L_{III} et négatif au seuil L_{II} avec un rapport 1:-2. Ceci suggère que le moment orbital L_{5d} est nul. Le spectre de dichroïsme reflète donc une pure contribution du moment de spin 5d. La comparaison des signes des spectres de dichroïsme au seuil K du Fer et aux seuils L du Ce permet en outre de conclure que le moment résultant pour les états 5d du Ce est orienté antiparallèlement à celui du Fer.

- Les mécanismes de couplage magnétique entre deux couches ferromagnétiques de métal de transition comme le fer à travers une couche de terre rare sont complexes. Ils font intervenir l'ordre magnétique des moments 4f localisés, ordre induit par les interactions d'échange avec les électrons de conduction qui "transportent" l'interaction à travers la couche. Ce mécanisme couple les électrons 4f de la terre rare à ses électrons de conduction 5d et aux électrons 3d du métal de transition. Ce mécanisme, qui fait aussi intervenir le couplage spin-orbite des électrons 4f, couple antiferromagnétiquement les moments 4f de terres rares légères aux moments 3d délocalisés des métaux de transition. Il est particulièrement complexe dans le cas du Ce qui fait figure à part parmi les terres rares légères, à cause du caractère de valence intermédiaire qu'il présente.

Les états 4f sont en effet à la frontière entre localisation (état $4f^1$) et délocalisation (état $4f^0$), les deux configurations pouvant être obtenues suivant le degré d'hybridation entre les états 4f et la bande de conduction. Ces deux états peuvent être obtenus pour le Cérium pur (Cérium γ) et sous pression (Ce α) ou pour des composés avec des métaux de transition comme $CeFe_2$ (hybridation avec les états 3d du métal de transition). La répulsion coulombienne U devient alors du même ordre de grandeur que la largeur de bande W et les systèmes à base de cérium présentent toutes les propriétés de systèmes fortement corrélés : comportement de type Fermion lourd, valence mixte, comportement Kondo ... Il en résulte des propriétés très différentes pour

les deux états. Ainsi, bien que le Cérium α soit non magnétique, les composés comme CeFe_2 ou CeCo_5 de structure électronique proche de celle du Cérium α , sont magnétiquement ordonnés avec des moments pour le Ce de l'ordre de $0.7 \mu_B$ pour CeFe_2 et un moment relativement faible pour le Fer de $1.4 \mu_B$, le couplage entre ces deux éléments étant antiferromagnétique. Ceci a été, en particulier mis en évidence par dichroïsme circulaire X aux seuils L_{II} (6164 eV) et L_{III} (5724 eV) pour le magnétisme de la bande 5d [2], et aux seuils M_{IV} (840 eV) et M_V (925 eV) pour le magnétisme de la bande 4f [3]. Ces expériences ont permis d'éclaircir le lien entre le moment résultant, le magnétisme de la bande 4f et celui de la bande 5d de la terre rare. L'utilisation de cette technique a permis en outre de mettre en évidence de manière directe les couplages qui s'instaurent entre les bandes 4f et 5d de la terre rare et la bande 3d du métal de transition dans le cas des composés intermétalliques.

Dans ce contexte, il était particulièrement intéressant de réaliser des structures artificielles multicouches de Ce/Fe qui permettent l'étude de l'état électronique et magnétique du cérium à l'interface avec les couches de Fer. C'est ce qu'a entrepris l'équipe de W. Felsch qui a élaboré de telles couches, ainsi que, pour comparaison, des multicouches La/Fe, le Lanthane n'ayant pas d'électron 4f.

Des expériences récentes de dichroïsme circulaire des rayons X ont permis de mettre en évidence la polarisation en spin des états 5d et 4f de Ce dans ces échantillons multicouches [1, 4]. Une étude similaire a été conduite aux seuils L et M de La dans des multicouches La/Fe similaires.

Ces multicouches Ce/Fe sont préparées par évaporation dans une enceinte ultravide avec des vitesses de dépôt de l'ordre de $0.5 \text{ \AA/s}$. Une étude approfondie de réflectivité des rayons X a montré que ces multicouches Ce/Fe présentent des interfaces abruptes avec des fluctuations de l'ordre de ± 0.25 monocouche, soit de l'ordre de l'angström. La formation d'un alliage d'interface de type CeFe_2 n'a pas été observée. En revanche, pour de faibles épaisseurs, les couches de Ce et de Fe sont dans un état amorphe. Une transition vers l'état cristallin se produit pour des épaisseurs de $70 \text{ \AA}$ pour la couche de Ce avec une orientation préférentielle [111] et de $25 \text{ \AA}$ pour celle de Fe avec une texture [110]. Cette évolution a été mise en évidence par l'observation des pics de diffraction de la multicouche aux grands angles de diffraction. Dans le cadre de cette étude sur une multicouche où le Cérium est amorphe, nous avons donc dû nous restreindre à l'étude des pics présents aux petits angles qui sont les seuls observables.

Les spectres d'absorption au seuil L_{II} du Ce montrent, pour de faibles épaisseurs de la couche de Ce, une double résonance, le deuxième pic pointant environ 10 eV au dessus du premier. Lorsque l'épaisseur de cérium croît au delà de 15 à 20 $\text{\AA}$, la structure haute énergie décroît et le spectre d'absorption tend vers celui de la phase γ du cérium métallique dont le seuil d'absorption présente une seule résonance bien définie correspondant à des états 4f localisés.

Ceci reflète une modification progressive de la configuration 4f du Ce, qui se compare bien avec celles du Ce dans CeFe_2 (cf figure 4.1).

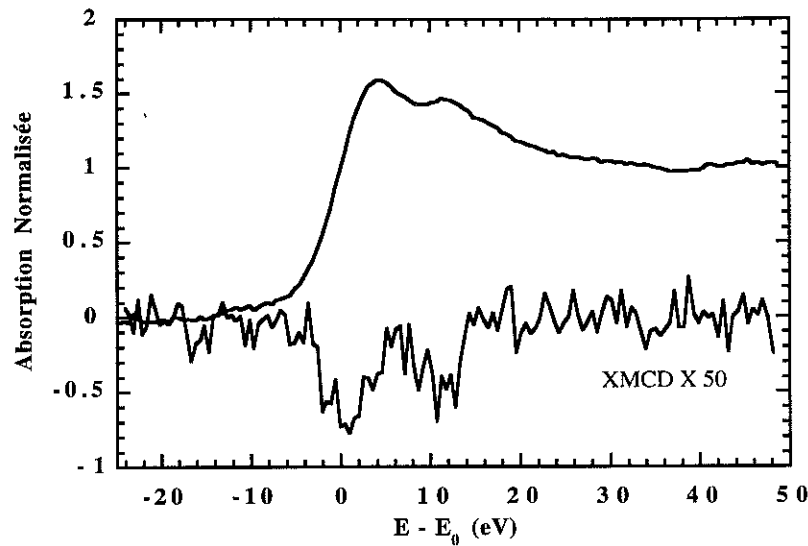


Figure 4.1 : Spectres d'absorption et de dichroïsme magnétique circulaire au seuil L_{II} du Ce pour une multicouche : $\text{Ce}_{10}/\text{Fe}_{30}$

L'origine de l'échelle en énergie est prise au point d'inflexion du seuil d'absorption.
($E_0 = 6164 \text{ eV}$).

(Spectres mesurés par W.Felsch et al [1].)

Le double pic au seuil L_{II} du Ce peut être interprété comme la signature d'un état final présentant deux mécanismes possibles d'écrantage du trou de coeur 2p par les électrons périphériques. L'écrantage est en effet plus fort lorsque l'électron 4f est localisé, que lorsqu'il est délocalisé. En présence du trou 2p, les niveaux 5d sont donc situés à plus basse énergie quand l'électron 4f est localisé que lorsqu'il est délocalisé. La structure à basse énergie est donc attribuée à la configuration $4f^1$ (localisée) et celle à 10 eV à la configuration $4f^0$. Ces deux structures se retrouvent dans le spectre de dichroïsme circulaire qui comprend deux lobes. Le comportement aux faibles épaisseurs est donc compatible avec celui d'un Ce de structure électronique de type α (ou à valence intermédiaire) dont les états 4f présentent un caractère délocalisé, ce qui permet donc son hybridation avec la bande de conduction.

Pour de plus fortes épaisseurs de la couche de Ce, la résonance $4f^0$ disparaît dans le spectre d'absorption alors qu'elle persiste dans le signal de dichroïsme, l'intensité des deux lobes diminuant simultanément quand croît l'épaisseur de Ce. Ceci conduit à penser que le Ce évolue au centre de la couche vers une phase de structure électronique proche de celle du cérium

γ et que celle-ci est non magnétique [1]. La polarisation en spin des états 5d du Ce, reflétée par le signal de dichroïsme, serait donc localisée aux interfaces dans une phase de structure électronique du type Ce- α et serait due aux interactions d'échange avec la bande 3d du Fer.

Un problème inhérent à la technique de dichroïsme magnétique circulaire des rayons-X, est qu'elle moyenne les contributions de tous les atomes d'une espèce chimique donnée, comme toutes les méthodes d'absorption. Pour obtenir une information sur la répartition des moments magnétiques à travers chacune des couches d'une multicouche magnétique, il faut donc mesurer les spectres de dichroïsme circulaire magnétique pour différentes épaisseurs d'échantillon. Puis, en supposant que la forme du signal de dichroïsme n'est pas modifiée quand l'épaisseur t de la couche, croît on peut interpréter la variation de son intensité avec l'épaisseur. Une variation en $1/t$ au delà d'une certaine épaisseur t_0 , suggère que la polarisation est localisée aux interfaces avec les couches magnétiques et qu'elle s'étend sur $t_0/2$. C'est l'interprétation qui a été donnée par Klöse et al [1] pour les couches Ce/Fe avec une épaisseur t_0 de l'ordre de 10 Å. Cette méthode a été aussi utilisée pour étudier le profil de polarisation à l'intérieur d'une couche de métal noble polarisée aux interfaces par une couche de Fer ou Co [5-7]. Elle ne fournit pas un modèle précis pour la dépendance de la polarisation avec la distance à l'interface.

Par ailleurs, la supposition suivant laquelle la forme du dichroïsme ne dépend pas de l'épaisseur de la couche n'est à priori pas toujours valable et d'autant moins lorsque des changements électroniques ou structuraux se produisent entre deux couches d'épaisseur différentes. C'est semble-t-il le cas pour les couches Ce/Fe avec la transition α vers γ pour des épaisseurs de Ce supérieure à 20 Å. Une autre approche consiste donc à supposer un modèle de profil de distribution des moments à travers la couche et à confronter l'évolution du signal de dichroïsme en fonction de l'épaisseur de la couche aux prédictions de ce modèle [7].

Nous avons voulu montrer la potentialité de la diffraction magnétique résonante pour déterminer le profil de polarisation magnétique à travers une couche de cérium, sans avoir à utiliser des échantillons d'épaisseurs différentes, et donc de structures et de profils de polarisations différents. L'étude sur le système Ce/Fe se justifie par l'amplitude du signal de dichroïsme circulaire des rayons X mesuré au seuil L_{II} , de l'ordre de $1.5 \cdot 10^{-2}$, à comparer aux signaux de l'ordre de 10^{-3} obtenus aux seuils K des métaux de transition magnétiques par exemple, ou de quelques 10^{-4} pour les signaux dus à la polarisation de métaux de transition non magnétiques comme Cu ou Ag. Par delà le cas particulier de ces couches Ce/Fe, et leur intérêt physique, le chapitre vise aussi à montrer l'intérêt plus général de la méthode pour les multicouches magnétiques.

Notons qu'une étude similaire du magnétisme interfacial a été réalisée par Vettier *et al* [8] pour des multicouches Gd/Y mais en utilisant la diffraction magnétique non-résonante qui est dans ce cas principalement due aux atomes magnétiques Gd. La simulation des rapports d'asymétrie mesurés sur plusieurs ordres de diffraction de la multicouche aux grands angles qui sont sensibles à la structure des plans à l'échelle atomique, et leur comparaison aux résultats expérimentaux, conduit ces auteurs à conclure à la présence d'une réduction continue du moment magnétique porté par Gd depuis le centre de la couche vers les interfaces avec Y. Notre objectif est donc de réaliser une étude similaire, mais portant sur la polarisation faible des atomes des couches séparatrices non magnétiques (ici le Cérium), en utilisant la diffraction magnétique résonante au seuil L de cet atome.

Les sous-couches de Ce présentant un caractère amorphe dans ces multicouches, aucun pic de Bragg associé à celles-ci n'est observable aux grands angles. La perte de cohérence du faisceau de rayons X, à travers les différentes couches, empêche la formation d'un peigne de pics de Bragg dû à l'empilement multicouche. Dans ce cas les seuls pics accessibles et contenant une information sur le profil de polarisation sont situés aux petits angles. Ils résultent de l'empilement des couches de deux matériaux de densités électroniques différentes, et ne sont à priori pas très sensibles à la structure à l'échelle atomique. De ce point de vue, cet exemple représente un cas difficile. La précision sur la détermination du profil de polarisation serait à priori meilleure sur des pics satellites aux grands angles.

2. / Principe de la mesure et résultats expérimentaux

2.1. / Expérience

Afin d'augmenter les effets magnétiques qui sont attendus faibles, la géométrie longitudinale a été préférée. Celle-ci présente l'inconvénient de nécessiter l'utilisation d'un rayonnement polarisé circulairement. Par contre comme nous l'avons montré au chapitre III, les amplitudes de diffraction magnétiques sont maximisées aux petits angles du fait de leur dépendance angulaire en $\cos^3(\theta)$, où θ est l'angle d'incidence. Dans le cas de la diffraction en géométrie transversale, le facteur géométrique en $\tan(2\theta)$ diminue fortement l'amplitude du signal aux petits angles.

Des mesures préliminaires ont cependant été tentées en utilisant la polarisation linéaire. Les expériences ont été réalisées sur la ligne D23 sur l'anneau DCI au L.U.R.E, en utilisant un goniomètre diffractant dans le plan horizontal. Un signal d'asymétrie de l'ordre de $2 \cdot 10^{-3}$ au maximum a été observé sur l'ordre 3 de diffraction, mais le bruit présent dans les données, du même ordre de grandeur, ne permet pas une analyse quantitative.

Les mesures exploitables ont été réalisées sur la ligne ID12 à l'ESRF en polarisation elliptique gauche. La source est constituée d'un onduleur hélicoïdal (Hélios I) délivrant un faisceau de rayons X possédant un taux de polarisation circulaire élevé ($\tau_c=84\%$ après monochromateur, à 6170 eV). Le monochromateur est constitué de deux cristaux de Si (111) donnant une résolution en énergie de l'ordre de $\Delta E/E \sim 10^{-4}$, soit 0.6 eV à 6170 eV. La détection est assurée par une photodiode, couplée à un système de modulation du faisceau à plusieurs centaines de hertz : ceci permet d'effectuer un décomptage du courant mort de la diode, pour la période de modulation où le faisceau est coupé, et améliore grandement le rapport signal sur bruit.

Cette ligne était la seule à l'ESRF, au moment où les mesures ont été faites, à fournir un haut taux de polarisation circulaire. Elle est dédiée à l'absorption X et ne permet pas a priori des mesures en diffraction. Nous avons donc dû installer en bout de ligne un goniomètre $\theta/2\theta$ utilisé pour la diffraction de poudre, permettant un pas angulaire minimal de 0.005° . L'environnement échantillon décrit dans l'annexe 1 inclut une bobine délivrant un champ magnétique de l'ordre de 600 Gauss, ce qui est suffisant pour saturer ferromagnétiquement les couches de Fer. La résolution angulaire définie par les fentes est de 0.005° . La figure 4.2 montre un balayage angulaire de la réflectivité spéculaire pour l'échantillon $\text{Ce}_{10\text{\AA}}/\text{Fe}_{30\text{\AA}}$. 6 ordres de diffraction sont observés avec une variation de l'intensité de près de 6 ordres de grandeur.

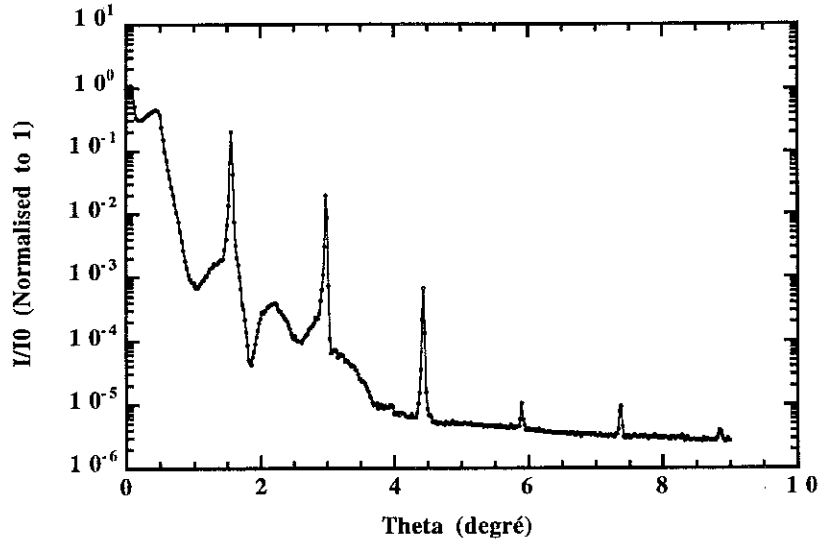


Figure 4.2 : Spectre de diffraction spéculaire aux petits angles pour une multicouche Ce/Fe et une énergie incidente de 6164 eV

On constate que l'ordre 4 est plus faible en amplitude que l'ordre 5. Ceci est en accord avec le rapport des épaisseurs nominales des sous-couches de Ce (10Å) et de Fe (30Å). En effet, dans une multicouche ou un superréseau de période Λ , si $t_A = \Lambda/n$ est l'épaisseur d'une couche et $t_B = (n-1)\Lambda/n$ celle de l'autre, l'intensité diffractée par l'ordre d'indice le plus proche de n est fortement réduite. Si n est entier, le pic d'ordre n a une intensité nulle pour une multicouche de structure parfaite.

La position du pic de Bragg est reliée à la loi de Bragg, corrigée de l'effet d'indice par la relation :

$$\sin^2(\theta) = \frac{\lambda^2}{4\Lambda^2} p^2 + 2\bar{\delta} \quad [\text{IV.1}]$$

où p est l'ordre de diffraction, θ l'angle de Bragg et $\bar{\delta}$ la partie réelle de la correction à l'indice optique, moyennée sur les deux couches. Une régression linéaire de $\sin^2\theta$ en fonction de p^2 permet de déterminer la période Λ .

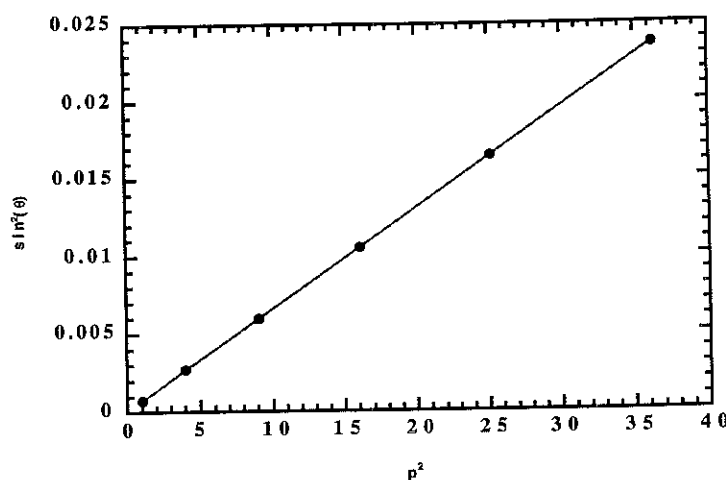


Figure 4.3 : Variation de la position des pics de Bragg en fonction de l'ordre de diffraction p .

La variation de la position des pics de Bragg pour les 6 ordres de diffraction (représentée sur la figure 4.3), en incluant la correction d'indice, donne une mesure de la période de la multicouche, trouvée égale à 39.2 Å, en accord raisonnable avec l'épaisseur nominale de 40 Å.

2.2. / Mesure des rapports d'asymétrie

Les rapports d'asymétrie, qui mettent en évidence l'information magnétique, sont mesurés au maximum des 4 premiers ordres de Bragg de la multicouche, pour différentes énergies de photons dans une fenêtre en énergie contenant le seuil L_{II} du Ce. Le goniomètre est maintenu fixe et l'angle du monochromateur est balayé afin de faire varier l'énergie. Chaque point en énergie est mesuré pour les deux orientations du champ magnétique appliqué parallèlement et antiparallèlement à la projection de la direction du faisceau sur la surface de l'échantillon. Afin de minimiser les dérives, nous avons suivi la procédure suivante (+ et - désignent l'orientation du champ magnétique par rapport au faisceau) :

- champ + : comptage pendant 4 secondes.
- inversion du champ et temps mort de 100 ms.
- champ - : comptage pendant 4 secondes.
- inversion du champ et temps mort de 100 ms.

Pour un même point de mesure, cette séquence est répétée 2 fois. Chaque spectre en fonction de l'énergie a été enregistré 3 ou 4 fois selon la statistique observée (avec une durée de 40 minutes pour chaque spectre).

Comme le montrent les figures 4.4, l'amplitude des asymétries mesurées sont typiquement de l'ordre de quelques 10^{-3} à quelques 10^{-2} selon les ordres de diffraction. Etant donné d'une part le haut niveau de stabilité du faisceau sur cette ligne de lumière, et d'autre part la faible qualité de l'équipement installé (goniomètre), il a été possible de mesurer un rapport d'asymétrie sur les 4 premiers ordres de diffraction. Le rapport signal sur bruit obtenu en suivant la procédure d'acquisition précédemment décrite est satisfaisant pour ces quatre ordres, avec un signal sur bruit de quelques 10^4 . Au delà, (ordres 5 et 6), les intensités deviennent trop faibles pour pouvoir mesurer un signal avec une statistique suffisante. Par ailleurs, la variation angulaire des pics de Bragg au cours d'un balayage en énergie des photons à travers le seuil L_{II} devient trop importante pour qu'on puisse effectuer des mesures à angle de diffraction fixe.

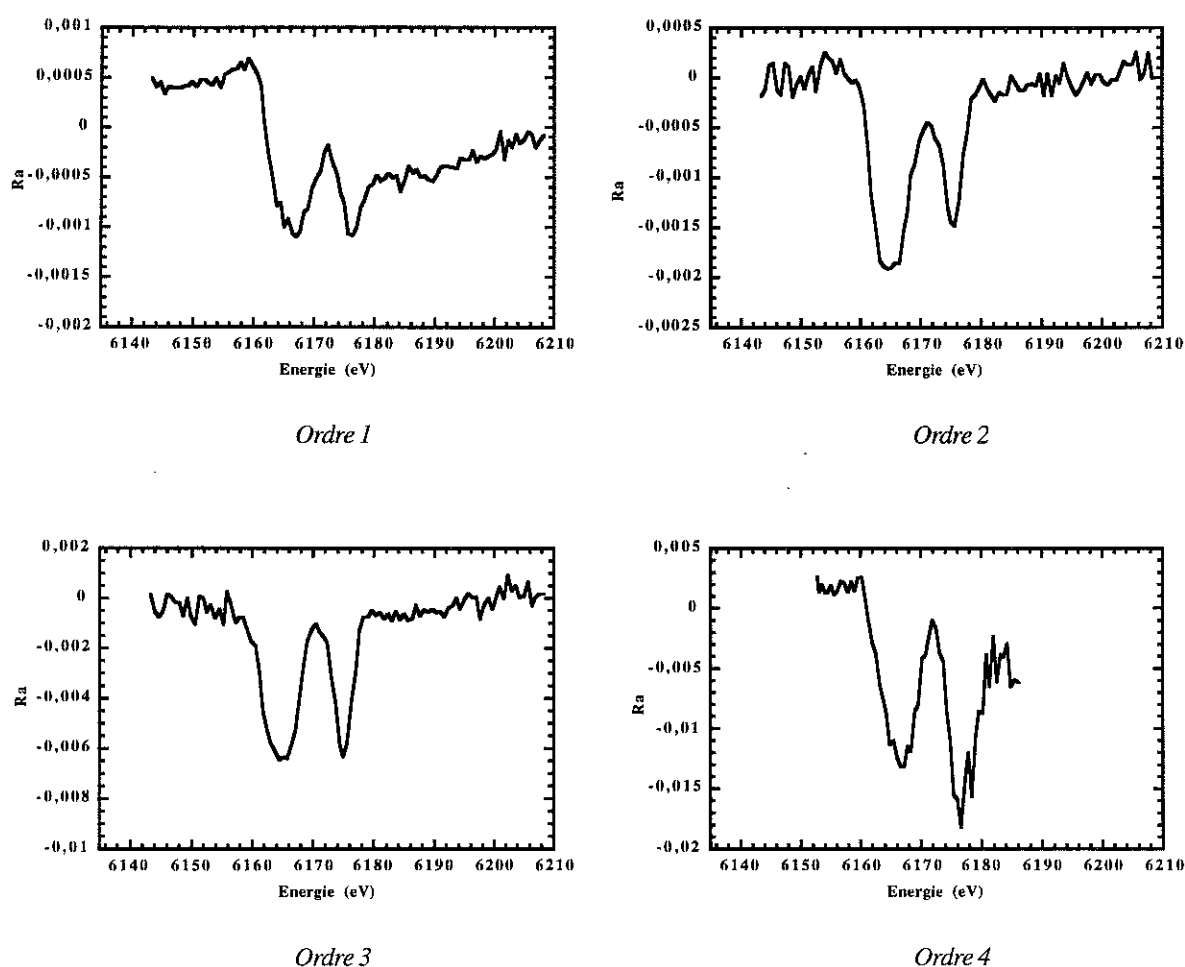


Figure 4.4 : Rapports d'asymétrie mesurés au seuil L_{II} du Ce aux maximums des 4 premiers ordres pour la multicouche Ce/Fe

On retrouve bien les deux contributions attribuées aux configurations $4f^0$ et $4f^1$, avec 10 eV de décalage entre les deux. Comme le montrent les courbes de la figure 4.4, on constate

que l'amplitude du rapport d'asymétrie croît avec l'ordre de diffraction, et ce beaucoup plus vite que la dépendance géométrique en $\cos^3(\theta)$. La superposition des différents rapports d'asymétrie fait en outre apparaître le fait que les maxima pour les différents ordres de diffraction ne pointent pas aux mêmes énergies.

On constate aussi que la forme du rapport d'asymétrie est sensiblement modifiée lorsque l'on passe de l'ordre 1 à l'ordre 4 de diffraction. Elle se rapproche plutôt de la forme de la partie réelle d'un facteur de diffusion pour l'ordre 1, et s'apparente de plus en plus à celle du signal de dichroïsme lorsque l'ordre de diffraction augmente. De plus, on constate que l'amplitude de la deuxième résonance est plus faible que celle de la première pour le premier et le deuxième ordre, et qu'elle augmente fortement avec l'ordre de diffraction, pour finalement être la plus intense au 4^e ordre.

Un raisonnement qualitatif permet de montrer directement que le profil de polarisation magnétique est non constant à travers la couche de Ce. En utilisant le formalisme donné par la théorie de la diffraction pour une multicouche [9, 10]. Lorsque l'angle de diffraction est proche de celui d'un pic de Bragg θ_n correspondant au vecteur de diffraction $q=2\pi n/\Lambda$ (Λ étant la période de la multicouche), le facteur de structure dynamique associé à une maille est donné par :

$$S(q) = \frac{4\pi e}{q} \int_{-\Lambda/2}^{\Lambda/2} \rho(z) f(z) \exp(iqz) dz \quad [\text{IV.2}]$$

ρ est la densité atomique, et f le facteur de diffusion atomique complexe.

Supposons que $C^a(z)$ désigne la dépendance avec la cote z de la fraction volumique de l'espèce a de volume spécifique V_a . On peut la décomposer selon ses coefficients de Fourier en $q_n = n2\pi/\Lambda$:

$$C^a(z) = \sum_n C_n^a \cos(q_n z) \quad [\text{IV.3}]$$

Si l'on considère que seule l'espèce atomique b est responsable de l'effet résonant magnétique, et si l'on suppose que la couche b est uniformément polarisée magnétiquement, alors le profil de densité pour la distribution d'atomes b et celui pour les moments sont les

mêmes. On peut écrire les facteurs de structure de charge non magnétique $F(q_n)$ et magnétique $M(q_n)$ sous les formes approchées suivantes, qui sont valables aux petites valeurs de q_n :

$$\begin{aligned} F(q_n) &= \frac{2\pi r_e}{q_n} \Lambda \left[\left(\frac{f_a}{V_a} - \frac{f_b}{V_b} \right) - i \left(\frac{f_a''}{V_a} - \frac{f_b''}{V_b} \right) \right] C_n \\ M(q_n) &= \frac{2\pi r_e}{q_n} \Lambda \left[\left(-\frac{f_{res}^{mag}}{V_b} \right) + i \left(+\frac{f_{res}^{mag}}{V_b} \right) \right] C_n \end{aligned} \quad [IV.4]$$

puisque le terme f_a^{mag} est nul.

En séparant dans l'expression précédente, les termes q_n et C_n dépendant de l'ordre n de diffraction de ceux qui n'en dépendent pas, on peut réécrire les facteurs de structures sous la forme :

$$\begin{aligned} F(q_n) &= \frac{\alpha}{q_n} \left[\left(\frac{f_a}{V_a} - \frac{f_b}{V_b} \right) - i \left(\frac{f_a''}{V_a} - \frac{f_b''}{V_b} \right) \right] C_n = \alpha \frac{C_n}{q_n} (S_R + iS_I) \\ M(q_n) &= \frac{\alpha}{q_n} \left[\left(-\frac{f_{res}^{mag}}{V_b} \right) + i \left(\frac{f_{res}^{mag}}{V_b} \right) \right] C_n = \alpha \frac{C_n}{q_n} (T_R + iT_I) \end{aligned} \quad [IV.5]$$

Dans cette expression, les quantités S_R , S_I , T_R , T_I et α ne dépendent pas de l'ordre de diffraction.

En reprenant l'expression du rapport d'asymétrie donnée au chapitre III pour la géométrie longitudinale, et en supposant que les états 5d de Ce sont uniformément polarisés en spin sur toute l'épaisseur des couches de Ce (profils de charge et magnétique identiques, donc composantes de Fourier identiques C_n), on peut réécrire le rapport d'asymétrie, calculé au maximum du pic de Bragg d'ordre n , sous la forme suivante :

$$R_a(n) = \frac{-4 \sqrt{I_\sigma I_\pi} \cos^3(\theta_n) [S_R T_R + S_I T_I]}{(I_\sigma + I_\pi \cos^2(2\theta_n)) (S_R^2 + S_I^2) + \cos^2(2\theta_n) (I_\sigma + I_\pi) (T_R^2 + T_I^2)} \quad [IV.6]$$

Finalement, la seule dépendance en fonction de l'ordre de diffraction n restant dans le rapport d'asymétrie est donnée par le terme géométrique en $\cos\theta_n$ et en $\cos 2\theta_n$. Si, de plus, on considère que pour le Ce la résonance magnétique est faible (i.e. $T_R \ll S_R$ et $T_I \ll S_I$) le terme

dominant est alors le terme en $\cos^3(\theta_n)/(I_\sigma + I_\pi \cos^2(2\theta_n))$. Cette dépendance en θ_n est comparée sur la figure 4.5 à celle des amplitudes des rapports d'asymétrie (en prenant $I_\sigma = 1$ et $I_\pi = 0.29$).

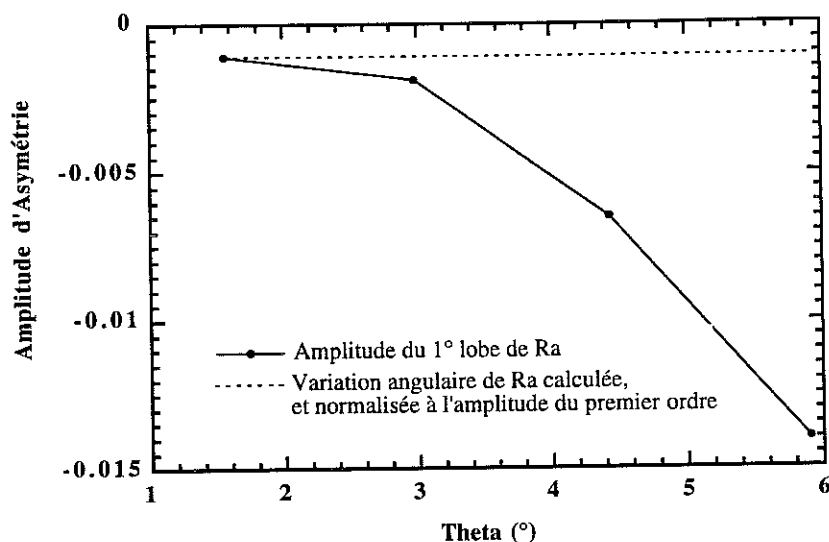


Figure 4.5 : Comparaison de l'amplitude du rapport d'asymétrie à 6164 eV avec la variation angulaire calculée et normalisée au premier ordre, pour les quatre premiers ordres de Bragg de la multicouche Ce_{10}/Fe_{30}

Les angles de diffraction, pour cette multicouche Ce/Fe étant typiquement de l'ordre de quelques degrés, la variation introduite par le terme géométrique est très faible (de l'ordre de 3% au maximum de variation), alors que les amplitudes mesurées décroissent significativement. Cette différence nette permet donc de montrer très directement que les états 5d du Cérium ne sont pas polarisés uniformément à travers les couches de Ce, et ceci même pour une épaisseur de 10Å. Afin d'essayer de quantifier l'évolution de cette polarisation en spin à travers une couche de Ce, nous avons développé un calcul, basé sur la théorie cinématique de la diffraction. Cette simulation, décrite dans les paragraphes suivants, permet de réaliser un affinement du profil de polarisation et donc de le déterminer sans avoir à supposer de modèle.

Remarque : il est à noter également que ce raisonnement peut être conduit aussi dans le cas de la géométrie transverse. Un exemple en est le cas de la mesure aux seuils L_{II} et L_{III} du Co dans les multicouches Cu/Co présenté au chapitre III. La forme des rapports d'asymétrie est la même pour les deux ordres de diffraction mesurés (ordre 2 et 3). Cependant dans ce cas, le terme géométrique dominant est en $\tan(2\theta)$, et induit donc des variations plus importantes sur

l'amplitude du rapport d'asymétrie, étant donné les angles de Bragg relativement importants en X-mous (17° et 26° pour les ordre 2 et 3, respectivement).

3. / Modèle structural

3.1. / Principe du calcul

Le point de départ est le calcul du facteur de structure dans la théorie cinématique, en tenant compte des facteurs de diffusion anomaux dus aux charges électriques, et de ceux d'origine magnétique, selon la description donnée au chapitre III. De manière générale, l'expression du facteur de structure est donnée en la décomposant sur les états de polarisation σ et π , par :

$$|F|^2 = \left| \sum f_n e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} \right|^2 = \left| \sum (A_\sigma f_{\sigma \rightarrow \sigma'} + A_\pi f_{\pi \rightarrow \sigma'}) e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} \right|^2 + \left| \sum (A_\sigma f_{\sigma \rightarrow \pi'} + A_\pi f_{\pi \rightarrow \pi'}) e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} \right|^2 \quad [\text{IV.7}]$$

L'utilisation de la théorie cinématique est justifiée pour deux raisons. D'une part les effets magnétiques résonants sont faibles (de l'ordre de quelque 10^{-3}) et sont donc une perturbation à l'intensité totale du pic de diffraction. En outre la forme du premier pic de Bragg de la multicouche présente les caractéristique d'un pic cinématique comme le montre la figure 4.6 : forme d'un pic correspondant à une fonction de Laue :

$$I \propto \left(\frac{\sin\left(\frac{Nk\Lambda}{2}\right)}{\sin\left(\frac{k\Lambda}{2}\right)} \right)^2 \quad [\text{IV.8}]$$

où N est le nombre de bicouches (Ce/Fe) et Λ la période de la multicouche, k le vecteur de diffusion.

La figure 4.6 présente le pic de Bragg de premier ordre de la multicouche Ce $10\text{\AA}$ /Fe $30\text{\AA}$. La ligne continue représente l'affinement de l'intensité par une fonction de Laue. Les différences faibles observées entre affinement et mesure sont attribuées d'une part aux rugosités d'interface,

qui diminuent les oscillations de Kiessig, et d'autre part à la non prise en compte dans ce modèle simple de la couche d'encapsulation et du buffer, qui décalent les franges d'interférences. L'accord raisonnable entre la mesure et la fonction de Laue permet de conclure au caractère cinématique de l'intensité diffractée au premier ordre de Bragg de la multicouche Ce/Fe. Du fait des intensités émises plus faibles, les autres ordres relèvent encore plus de la théorie cinématique.

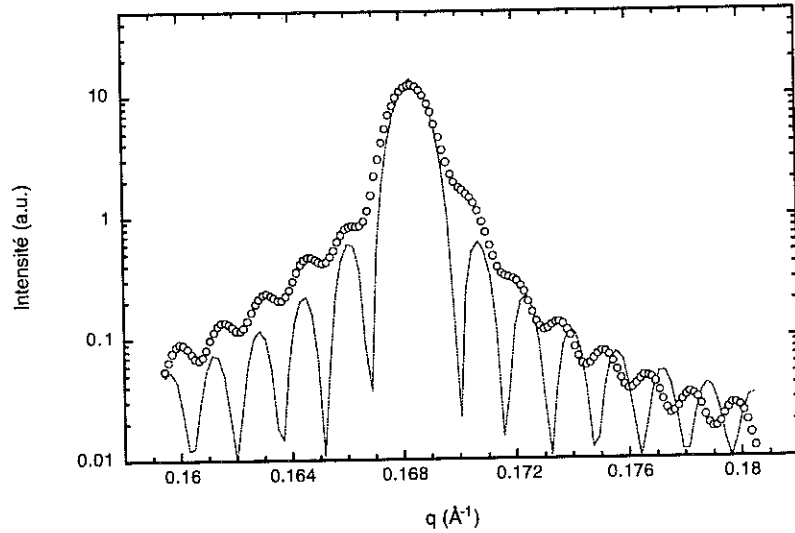


Figure 4.6 : Pic de Bragg au premier ordre pour la multicouche $Ce_{10\text{\AA}}/Fe_{30\text{\AA}}$ et affinement par une fonction de Laue ($N=100$, $\Lambda=39.3 \text{ \AA}$)

Chacun des 4 termes impliqués dans l'équation IV.7 peut être décomposé en deux parties : l'une dépendant du facteur de diffusion anomal classique et l'autre dépendant du facteur de diffusion magnétique :

$$f_{\text{mag}}^{\text{res}} = -i(\hat{\mathbf{e}}^* \times \hat{\mathbf{e}}) \cdot \mathbf{z}_j F_{\text{Res}} \quad [\text{IV.9}]$$

En supposant une dépendance lorentzienne de F_{res} avec l'énergie réduite des photons, on a :

$$F_{\text{Res}} = \frac{n_m x}{1+x^2} - i \frac{-n_m}{1+x^2} \quad \text{et} \quad \frac{-n_m}{1+x^2} = \frac{\text{XMCD}}{2} \quad [\text{IV.10}]$$

L'amplitude de diffusion n_m est donnée en unité d'électron. Avec ces conventions, le lien entre le facteur d'amplitude n_m et l'amplitude du XMCD exprimée elle aussi en unité d'électron

est de 1/2, si le XMCD est défini comme la différence des absorptions pour les deux directions de champ magnétique par rapport au faisceau. x est l'énergie réduite, $x=(E-E_0)/(\Gamma/2)$, où Γ est la largeur à mi-hauteur de la lorentzienne.

Pour évaluer le facteur de diffusion magnétique du Ce, nous utilisons les résultats de dichroïsme circulaire. Les deux lobes du dichroïsme sont affinés par deux lorentziennes. Les paramètres obtenus dans ces affinements servent à décrire les résonances du facteur de diffusion magnétique.

Pour ce qui est du facteur de diffusion classique, les facteurs de forme des atomes de Ce et de Fe ont été introduits dans le calcul, bien que la prise en compte de leur dépendance angulaire n'introduise que de faibles variations dans l'amplitude de Ra. On utilise l'expression standard du facteur de forme :

$$f(\sin \theta / \lambda) = \sum_{i=1}^4 a_i \exp \left[-b_i \sin^2 \theta / \lambda^2 \right] + c \quad [\text{IV.11}]$$

où les coefficients a_i , b_i et c sont tabulés [11]

Enfin, il est nécessaire de tenir compte dans le calcul des facteurs anomaux classiques (f' - if'') de Fe et de Ce. Les valeurs de ces facteurs pour le fer, aux énergies proches du seuil de Ce, sont tirées des tables de Sasaki [12]. Le paragraphe suivant donne la démarche suivie pour déterminer les valeurs des facteurs anomaux pour le Ce.

3.2./ Détermination des facteurs anomaux du Ce

Les parties imaginaires des facteurs anomaux du Ce sont déterminés à partir des mesures d'absorption et de dichroïsme réalisées sur la station "Dispersif" située au L.U.R.E. Les mesures ont été effectuées par W. Felsch et collaborateurs (Figure 4.1) à température ambiante et sous un champ magnétique appliqué de 1500 Oe.

Elles fournissent à la fois le spectre d'absorption isotrope et la partie dépendante du magnétisme. Du coefficient d'absorption, on obtient la partie imaginaire du facteur de diffusion atomique : $f''(E) \propto E\mu(E)$.

L'amplitude du spectre d'absorption est recalée avant et après seuil avec les données théoriques calculées par Sasaki [12] au moyen d'une transformation linéaire. L'application de cette transformation linéaire permet d'obtenir f' en unités d'électron.

Une interpolation linéaire est réalisée avant (et après seuil) à partir des données des tables donnant f' en unités d'électron pour obtenir $f''(E)$ à l'énergie E choisie. La partie imaginaire du facteur de diffusion résonante dépendante du magnétisme est obtenue de la même manière à partir de l'amplitude du signal XMCD, normalisé à l'amplitude du saut d'absorption. En utilisant cette approche, on obtient les parties imaginaires des facteurs de diffusion de charge et magnétiques montrées sur les figures 4.7 et 4.8, et par transformation de Kramers-Kronig leurs parties réelles.

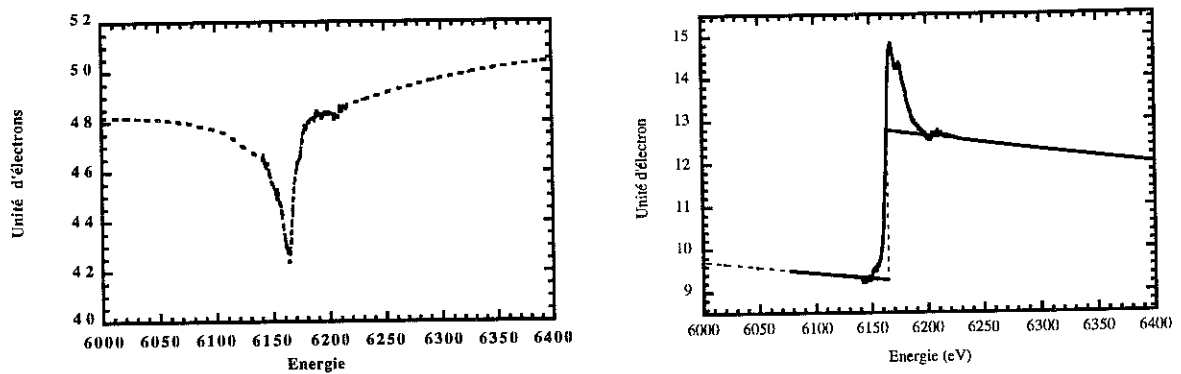


Figure 4.7 : Facteur de diffusion anomal du Ce dans $Ce_{10\text{\AA}}/Fe_{30\text{\AA}}$ au seuil L_2 .
A gauche : partie réelle ; à droite : partie imaginaire

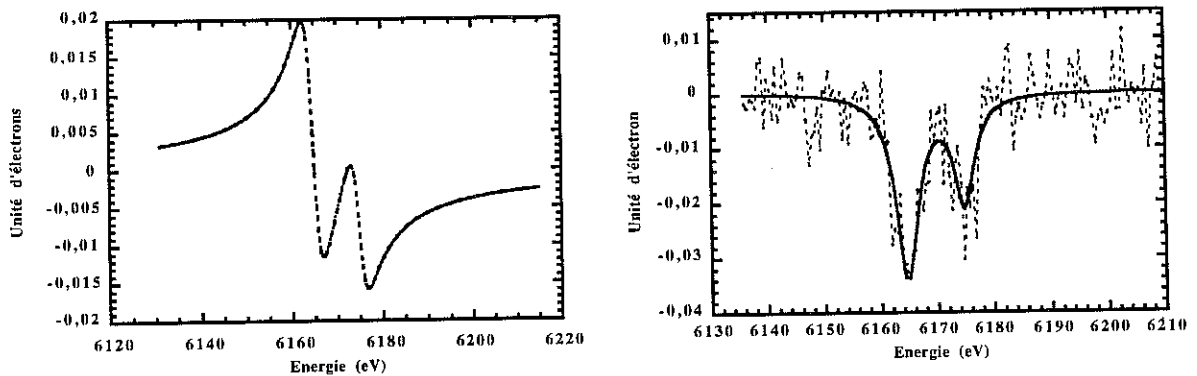


Figure 4.8 : Partie magnétique du facteur de diffusion anomal du Ce au seuil L_2 dans $Ce_{10\text{\AA}}/Fe_{30\text{\AA}}$.
A gauche : la partie réelle ; à droite la partie imaginaire.

	Amplitude en électrons	Position en énergie (eV)	Largeur en énergie (eV)
A1	-0.033	6164.7	4.8
A2	-0.022	6174.8	4.4

Tableau IV.1 : Paramètres lorentziens obtenus pour la description de la résonance magnétique

Le signal de XMCD peut être simulé par deux lorentziennes dont le tableau IV-1 donne les paramètres. Ils mettent en lumière le décalage de 10 eV entre les deux lobes attribué aux contributions des configurations $4f^0$ et $4f^1$. Une largeur un peu plus importante est observée pour la première résonance. Une explication communément avancée est la présence d'une contribution supplémentaire de la configuration $4f^2$ au premier lobe, résultant en une forme asymétrique. L'asymétrie n'étant pas très prononcée pour cet échantillon, nous avons conservé une description avec une seule lorentzienne pour le premier lobe. Les amplitudes des facteurs de diffusion sensibles au magnétisme sont extrêmement faibles : de l'ordre de 0.03 électrons, à comparer aux 58 électrons de Ce et aux 14 électrons pour la partie imaginaire de son facteur anomal. Le rapport de l'amplitude de la résonance magnétique du facteur de diffusion anomal n'est donc que de $2 \cdot 10^{-3}$ alors que l'amplitude du dichroïsme en absorption est de $1.5 \cdot 10^{-2}$.

Remarque :

La détermination expérimentale de la partie imaginaire du facteur de diffusion atomique permet d'obtenir la partie réelle grâce à l'utilisation de la transformation de Kramers-Kronig. Cependant en ce qui concerne la partie dépendante de l'aimantation, nous avons préféré utiliser directement les formes analytiques lorentziennes [13] avec les valeurs des paramètres données dans le tableau IV-1. Ceci permet de supprimer le bruit important présent dans la mesure du dichroïsme. Par contre, cette approche est moins intéressante pour la partie anormale du facteur de diffusion classique. En effet, la modélisation du seuil d'absorption par la somme de 2 lorentziennes et d'un saut représenté par une fonction arctangente, conduit à une partie réelle divergente aux fortes valeurs de l'énergie (présence d'un terme logarithmique lié à l'arctangente). Nous avons donc préféré dans ce cas la transformation de Kramers-Kronig numérique à partir des données expérimentales.

3.3. / Modélisation de la couche

Une difficulté réside dans le fait que la couche de Ce est amorphe et que l'on ne connaît pas sa structure atomique locale. Cependant, le seul paramètre important pour la diffraction aux

petits angles est la densité électronique de chacune des sous-couches ou le volume atomique des atomes la composant ($\rho=Z/V$). On se ramènera donc à une description cristalline avec une distance entre plans atomiques fictive d et une densité surfacique fictive S telle que $V=d/S$. La multicouche est donc décrite par une maille centrée au milieu de la couche de Ce, avec de part et d'autre une moitié de couche de Fe. La rugosité d'interface est prise en compte en considérant un plan atomique interdiffusé à chaque interface : C_i désigne la concentration en atomes de Ce sur chacun de ces plans d'interfaces ($i=1,2$).

Pour la couche de Ce, nous avons donc procédé à une discrétisation de la couche en plans atomiques orientés perpendiculairement à la direction $[111]$, celle-ci étant l'orientation préférentielle observée lorsque la couche de Ce cristallise pour des épaisseurs plus importantes ($>25 \text{ \AA}$). Afin de conserver la densité volumique de la phase amorphe qui est le seul paramètre physique réel, la densité surfacique S dans le plan des couches est recalculée à partir de la distance interplans. La même approche est utilisée pour la description de la couche de Fer. Le nombre de plans de Fer est ajusté de manière à obtenir un nombre total de plans entier pour une maille (figure 4.9).

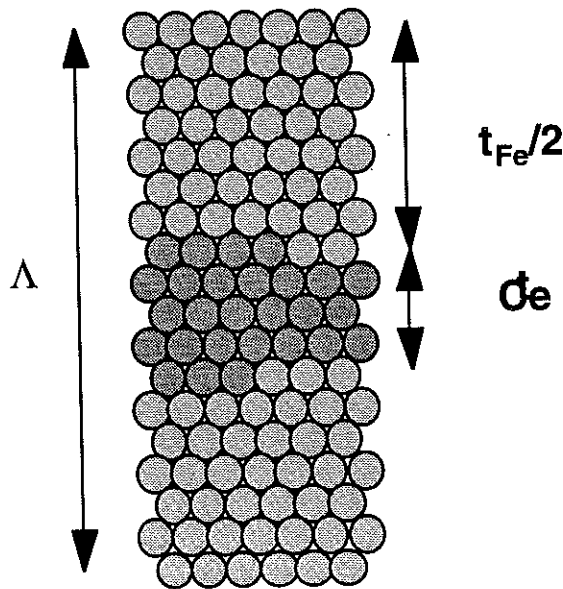


Figure 4.9 : Description d'une maille de la multicouche dans un modèle discret de plans atomiques.

Enfin, dans le calcul du facteur de structure magnétique, on suppose que les formes (position en énergie et largeur) des résonances ne varient pas avec la position du plan atomique considéré à l'intérieur de la couche de Ce. Seule l'amplitude de la diffusion magnétique varie de

plan à plan. Les paramètres à affiner sont donc les amplitudes magnétique α_j sur chacun des plans atomiques j , définies comme le rapport de l'amplitude de diffusion magnétique du plan j à l'amplitude moyennée sur une sous couche de Ce :

$$F_{j,Res} = \alpha_j F_{Res} \quad [IV.12]$$

où F^{Res} est l'amplitude normalisée au dichroïsme moyen de la couche.

α_j donne donc aussi le rapport entre le moment magnétique local dans le plan j à la polarisation magnétique moyenne à travers la couche de Ce.

4. / Détermination des paramètres structuraux

Le tableau IV.2 donne le descriptif de l'échantillon étudié. Les épaisseurs sont les épaisseurs nominales, évaluées à partir des durées de dépôts :

	Substrat	Tampon (Cr)	épaisseur de la couche de Fe	épaisseur de Ce	Encapsulant (Fe)
Ce/Fe	Si	40 Å	30 Å	10 Å	50 Å

Tableau IV.2 : épaisseurs nominales des différentes couches de la multicouche Ce/Fe

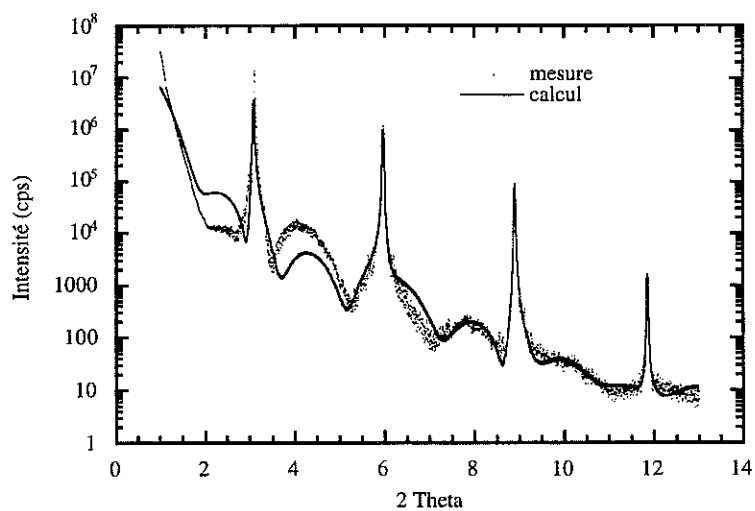
La connaissance précise des paramètres structuraux, tels que les épaisseurs respectives des couches de Ce et Fe , leurs rugosités d'interface et leur densités, est évidemment nécessaire pour le calcul du facteur de structure de charge. Leurs valeurs ont été affinées à partir des mesures de la réflectivité des rayons X aux petits angles sur les multicouches considérées dans ce travail. Les mesures de réflectivité spéculaire ont été réalisées sur la ligne CRG-D2AM, au seuil L_{II} du Ce, afin d'une part de se placer dans les mêmes conditions expérimentales que pour l'expérience de XRMS, et d'autre part de pouvoir faire varier le contraste chimique entre Fer et Ce et augmenter ainsi la précision avec laquelle on obtient les paramètres.

Les affinements de la structure de la multicouche ont été réalisés avec le programme SUPR écrit par Fullerton *et al.* [14-16]. Il permet d'utiliser la théorie cinématique pour simuler les spectres de diffraction aux grands angles, mais également de simuler les spectres de réflectivité spéculaire aux petits angles en utilisant la théorie optique des rayons X (cette théorie

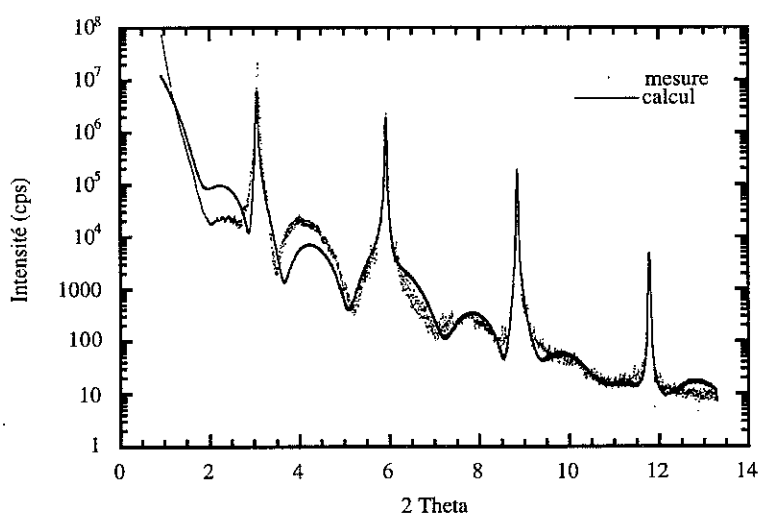
sera explicitée plus en détail dans le chapitre V). Les paramètres affinables aux petits angles sont les épaisseurs des couches, leurs densités électroniques et les rugosités d'interface entre les différentes couches ainsi qu'avec le substrat.

Dans le programme utilisé, deux possibilités sont offertes pour l'affinement. On peut soit effectuer un affinement sur les intensités de manière linéaire, soit affiner le logarithme des intensités. De manière générale, il est plus intéressant de considérer le logarithme des intensités afin de donner un poids équivalent à tous les points de mesure. Le fait d'affiner en linéaire conduit à privilégier les pics de Bragg. Les paramètres à fournir au programme d'affinement sont la composition et la structure de chacune des deux sous-couches formant la multicouche ainsi que celles des autres couches intervenantes comme le substrat, la couche tampon, ou la couche de protection déposée sur l'échantillon. Les facteurs anomaux (non magnétiques) sont pour le Fer, pris dans les tables de Sasaki, et pour le Ce, ceux précédemment déterminés (§ 3.2).

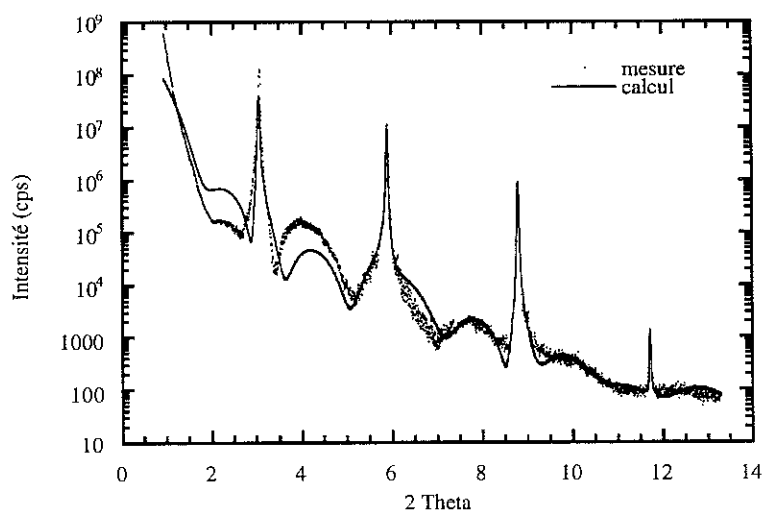
Les simulations résultant des meilleurs affinements de la réflectivité de la multicouche Ce/Fe pour différentes énergies au voisinage du seuil L_{II} du Cérium sont montrées sur la figure 4.8. Les valeurs des paramètres correspondants et leurs moyennes sur les simulations aux 3 énergies sont données dans le tableau IV.3.



6130 eV



6164 eV



6200 eV

Figure 4.10 : Mesure et résultat de l'ajustement de la réflectivité spéculaire de la multicouche Ce10/Fe30 pour 3 énergies au seuil L_{II} du Ce

	6130 eV	6164 eV	6200 eV	Moyenne
$\rho_{\text{Ce}} : \text{at}/\text{\AA}^3$	0.0639	0.0636	0.0623	0.0632
gr/cm^3	5.31	5.23	5.18	5.24 ± 0.05
$\rho_{\text{Fe}} (\text{at}/\text{\AA}^3)$	0.0723	0.0746	0.0765	0.0746
gr/cm^3	6.75	6.91	7.1	6.92 ± 0.14
$\Lambda (\text{\AA})$	39.25	39.25	39.25	39.25
$t_{\text{Fe}} (\text{\AA})$	29	28.9	29.3	29.1 ± 0.17
$\sigma_{\text{Ce-Fe}} (\text{\AA})$	0.9	0.6	1.7	1.1 ± 0.4
$\sigma_{\text{Fe-Ce}} (\text{\AA})$	1.0	0.86	1.7	1.2 ± 0.4

Tableau IV.3 : Paramètres issus des affinements des courbes de réflectivité spéculaire

Dans le tableau IV.3 ρ désigne la densité en $\text{at} / \text{\AA}^3$, Λ est la période de la multicouche, t_{Fe} l'épaisseur de la sous-couche de Fer, $\sigma_{\text{Ce-Fe}}$ et $\sigma_{\text{Fe-Ce}}$ les rugosités d'interfaces en $\text{\AA}$. On affine indépendamment les 2 rugosités aux 2 interfaces d'une couche de Ce.

Les résultats donnés dans le tableau IV.3 montrent un bon accord global entre les différents paramètres déterminés aux trois énergies sauf pour les valeurs des rugosités entre couches déterminées à partir de la mesure à 6200 eV qui sont nettement supérieures aux valeurs obtenues aux deux autres énergies. La période de la multicouche est déterminée avec précision à 39.25 $\text{\AA}$, les 3 déterminations étant identiques. Les 3 expériences donnent également des épaisseurs de Fer très voisines les unes des autres. La moyenne conduit à : 29.1 $\text{\AA}$ pour le Fer et 10.2 $\text{\AA}$ pour le Ce (à comparer aux valeurs nominales de 30 $\text{\AA}$ et 10 $\text{\AA}$, respectivement).

Le résultat le plus surprenant est la réduction de densité, observée à la fois pour les couches de Ce (de 36 % par rapport à $\rho_{\text{Ce}} = 8.16 \text{ gr}/\text{cm}^3$ pour une phase α , et 28% par rapport à $\rho_{\text{Ce}} = 6.77 \text{ gr}/\text{cm}^3$ pour une phase γ) et pour les couches de Fe (12% par rapport à $\rho_{\text{Fe}} = 7.87 \text{ gr}/\text{cm}^3$ pour une phase α). L'augmentation de 12% du volume du fer n'est pas très choquante du fait des contraintes locales exercées aux interfaces par les couches de cérium, beaucoup plus gros. Par contre la forte augmentation des volumes atomiques du cérium par rapport à celui de la phase α est assez surprenante. On pourrait s'attendre à une diminution de densité de 5 à 10% due à la structure amorphe des couches de cérium. Une variation de 36% implique une compacité anormalement faible.

Des affinements des spectres de réflectivité ont été réalisés en imposant les densités volumiques nominale de la phase α de Cérium et celle du Fer bcc. Les résultats obtenus sont moins bons (en terme de χ^2), mais visuellement la différence n'est pas très importante : ce sont surtout les ordres 1 et 2 qui sont moins bien affinés. En conséquence, nous conservons donc par la suite deux modèles, M1 et M2, pour des valeurs de densités atomiques correspondant respectivement aux valeurs nominales et relaxées.

A partir des paramètres affinés sur les spectres de réflectivité, les paramètres de description de la multicouche Ce/Fe par un modèle cristallin, dont on a besoin pour le calcul du rapport d'asymétrie magnétique sont recalculés. Leurs valeurs sont données dans le tableau IV.4 pour les 2 modèles de densité atomique.

	Ce	Fe
t (Å)	10.2	29.1
Modèle (M1)		
ρ (gr/cm ³)	8.16	7.87
S (Å ⁻²)	0.098	0.185
Modèle (M2)		
ρ (gr/cm ³)	5.26	6.92
S (Å ⁻²)	0.063	0.163
d (Å)	2.8	2.18
nombre de plans	3.64	13.36

Tableau IV.4. Description de la maille de la multicouche définie à partir des résultats des affinements de la réflectivité en théorie optique.

La densité surfacique S portée sur chacun des plans atomiques est calculée à partir de la densité volumique grâce à la relation suivante :

$$\frac{N_a \rho}{A} = \frac{S}{d} \quad [\text{IV.13}]$$

où A est la masse atomique, N_a le nombre d'Avogadro et d la distance interplan.

Les relations utilisées pour calculer les nombres de plans dans une période Λ sont :

$$n_{\text{Ce}} = t_{\text{Ce}} / 2.8$$

$$n_{\text{Fe}} = 17 - n_{\text{Ce}}$$

$$d_{\text{Fe}} = t_{\text{Fe}} / n_{\text{Fe}}$$

où n_{Ce} et n_{Fe} sont les nombres de plans de Ce et de Fe, t_{Ce} et t_{Fe} les épaisseurs de chacune des sous-couches de Ce et de Fe. 2.80 est la distance entre plan (111) dans la phase α du Cérium pur.

Le nombre de plans total dans la description de la maille de période $\Lambda=39.25\text{\AA}$ est pris arbitrairement égal à 17 afin d'obtenir un paramètre d_{Fe} comparable à celui d'un Fer bcc en orientation [110]. Des calculs en considérant une période de 15 plans (et donc un nombre de plans de Fer réduit), avec en compensation une densité surfacique dans les plans de Fer augmentée afin de conserver la densité atomique globale, ont donné des résultats équivalents pour le rapport d'asymétrie. Ceci confirme que le paramètre important, dans le cas des mesures sur des pics aux petits angles est la densité atomique (ou volumique).

L'épaisseur moyenne des couches de Cérium est de 3.6 plans atomiques, ce qui suggère qu'il y ait 3 plans de Ce purs encadrés de chaque côté par deux plans de composition mixte en Ce et en Fe. On ne peut évidemment pas distinguer entre deux modèles extrêmes : terrasses de Cérium et de Fer sans interdiffusion aux interfaces ou un plan de solution solide de Ce et de Fe due à une diffusion forte aux interfaces.

5. / Résultats des affinements du rapport d'asymétrie

5.1./ Profils modèles

Divers profils modèles ont été testés sans succès, ce qui suggèrent que les hypothèses simples qu'ils présentent ne sont pas valides. Nous en donnons ici deux exemples, celui d'un profil d'aimantation constant à travers les couches de Cérium (Figure 4.11), et celui d'un profil décroissant à partir des interfaces avec les couches de Fer (Figure 4.12).

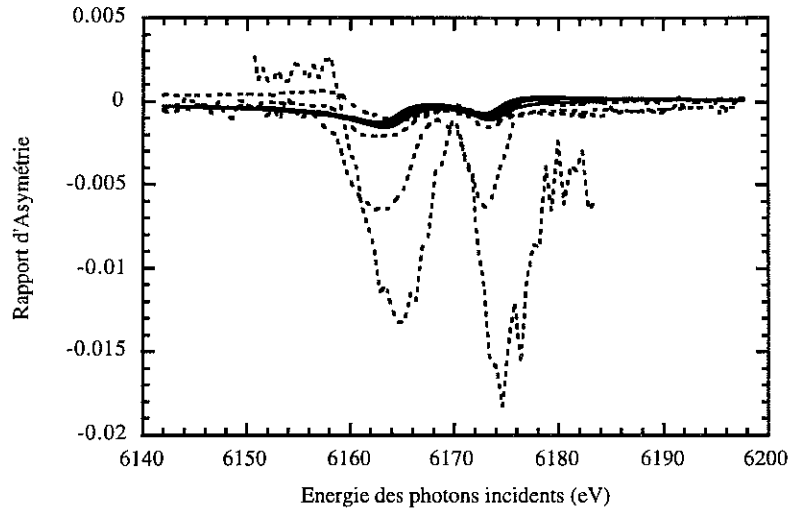


Figure 4.11 : Rapports d'asymétrie calculés aux différents ordres (trait pleins) pour un profil magnétique constant, comparés aux mesures (traits pointillés)

La figure 4.11 présente le résultat des calculs du rapport d'asymétrie en utilisant le modèle M2 (un résultat analogue est obtenu avec le modèle M1), et dans le cas d'un profil de polarisation en spin constant à travers toute la couche de cérium. Les amplitudes magnétiques sur chaque plan atomiques α_j sont donc supposées égales à 1. On retrouve ici le résultat démontré précédemment (§2.2), selon lequel, dans ce modèle, le signal d'asymétrie évolue peu avec l'ordre de diffraction : les rapports d'asymétrie pour les différents ordres sont quasiment confondus.

La figure 4.12 présente, elle, les simulations obtenues pour un profil de polarisation décroissant à partir des interfaces vers le centre de la couche de cérium. L'exemple montré ici correspond à une décroissance de raison 1/2. Le moment magnétique moyen associé à cette distribution est celui que donnerait le signal de dichroïsme. Un tel modèle est suggéré par les variations de l'amplitude du XMCD en fonction de la couche de cérium (localisation plutôt aux interfaces).

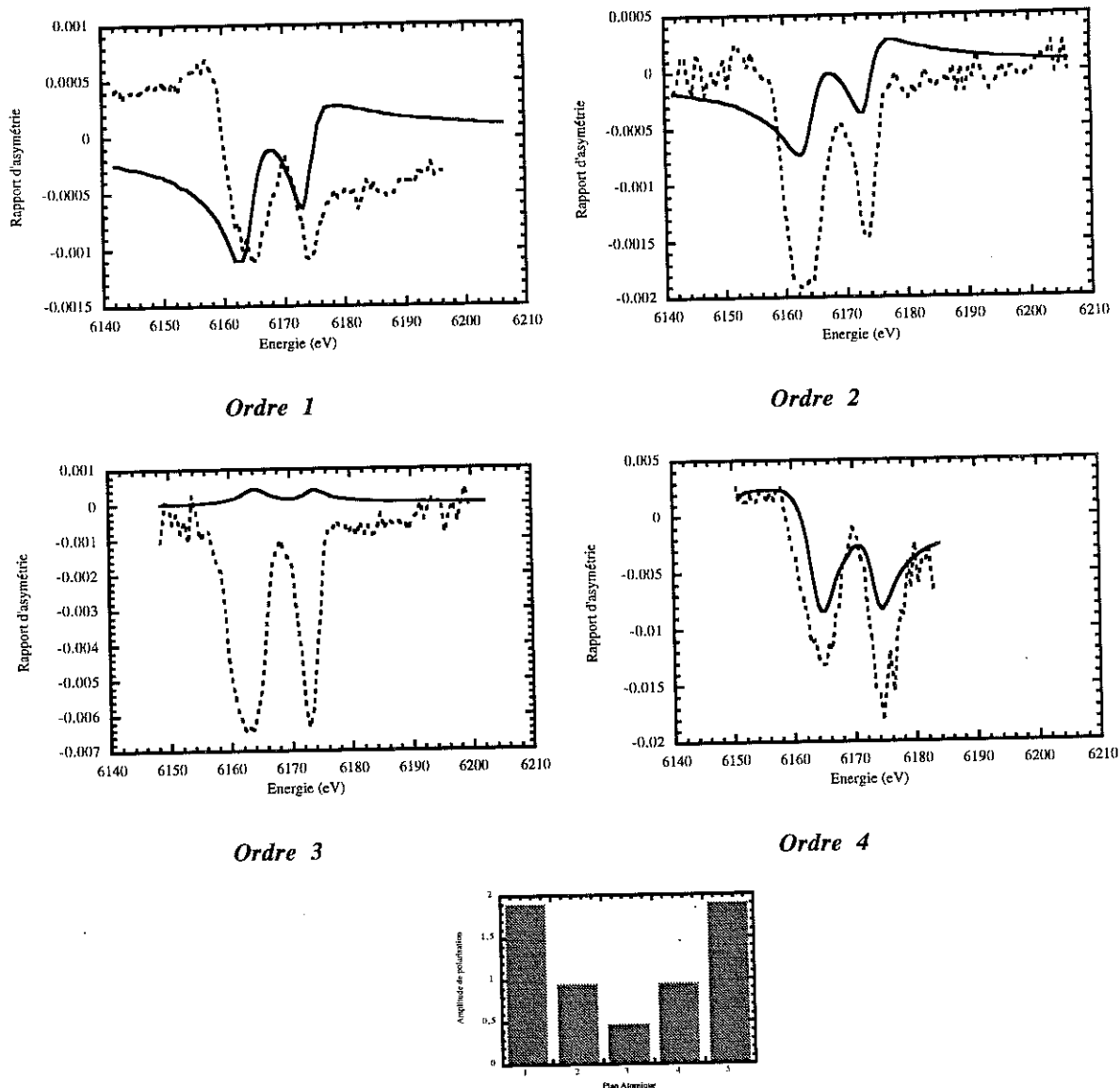


Figure 4.12 : Rapports d'asymétrie expérimentaux (traits pointillés) et calculés (traits pleins) pour un profil décroissant de raison 1/2 (figure du bas)

Cette simulation n'est globalement pas bonne. On note en particulier une inversion de signe pour l'ordre 3 de diffraction entre le calcul et la mesure, et une forme calculée meilleure pour l'ordre 4. Cette hypothèse est donc également à rejeter. Elle montre cependant que le 4^{ième} ordre de diffraction est sensible à une décroissance de l'amplitude de polarisation.

D'autres modèles simples ont été testés sans succès : localisation du moment à l'interface, localisation au milieu de la couche de Ce... Aucun modèle n'a permis de rendre compte des données expérimentales, et aucune tendance claire pour l'évolution de l'amplitude et de la forme des rapports d'asymétrie pour les différents ordre n'a pu être dégagée.

5.2 / Résultats des affinements

Dans la mesure où aucun des modèles simples de profil que nous avons imaginés, ne rendent compte des données, nous avons dû chercher à obtenir directement une estimation de ce profil en utilisant une méthode d'affinement de nos données. Une procédure de multiaffinement a donc été écrite sur la base du programme développé au Laboratoire par P. Wolfers, DPU, qui permet d'effectuer des multiaffinements par la méthode de moindres carrés.

Le profil de polarisation est décrit par les amplitudes α_i sur chacun des plans de Ce. Puisque l'on considère 5 plans de Ce (3 plans purs de Ce + 2 interdiffusés à chaque interface), le profil est décrit par les 5 amplitudes magnétiques : $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3, \alpha_2, \alpha_1$ (pour un profil symétrique).

Il est également possible d'inclure une contrainte sur la moyenne des parties imaginaires des facteurs de diffusion magnétique sur l'ensemble de la couche de Ce, qui doit refléter le signal de dichroïsme magnétique circulaire, mesuré sur une couche équivalente, par la relation :

$$\langle \text{XMCD} \rangle = \frac{\sum_i C_i \alpha_i}{\sum_i C_i}$$

où C_i est la concentration sur chaque plan atomique décrivant la couche de Ce.

Une limitation est donnée par le nombre de variables affinales à partir des données, qui doit être inférieur au nombre de données expérimentales réellement indépendantes. Chaque courbe représentant les variations de Ra présente 2 amplitudes (une pour chaque lobe) et une position en énergie (deuxième lobe à +10 eV, donc sa position est corrélée à celle du premier). Il s'avère donc que le nombre de variables affinales est de l'ordre de 8, si l'on ne prend pas en compte les positions en énergie (une seule position en énergie est affinée pour les 4 ordres de diffraction).

Plusieurs affinements ont été réalisés suivant les quatre hypothèses décrites ci-dessous :

Hypothèse :

Modèle (M1) :

- (H1) : Densités nominales : Ce α et Fe α , aucune contrainte sur $\langle \text{XMCD} \rangle$

5 paramètres affinés : les 3 α_i et les 2 concentrations en Cérium sur les plans d'interface.

- (H2) : Densité nominale avec contrainte sur $\langle \text{XMCD} \rangle$.
4 paramètres affinés : 2 amplitudes α_i et les 2 concentrations en Cérium sur les plans d'interface.

Modèle (M2) :

- (H3) : Densités issues de l'affinement des spectres de réflectivité
aucune contrainte sur $\langle \text{XMCD} \rangle$
5 paramètres affinés : 3 amplitudes α_i et les 2 concentrations en Cérium sur les plans d'interface.
- (H4) : Tous les paramètres sont libres avec contrainte sur $\langle \text{XMCD} \rangle$
8 paramètres affinés : 2 amplitudes α_i et les 2 concentrations en Cérium sur les plans d'interface, les 2 densités (Fe et Ce), et les 2 distances interplans.

Les résultats sont regroupés dans le tableau IV.5. Les paramètres soulignés sont ceux affinés (auxquels il faut rajouter la position en énergie), les paramètres en italiques sont ceux recalculés à partir du résultat de l'affinement, et les autres sont fixés.

	(H1)	(H2)	(H3)	(H4)
Λ	39.3 Å	39.3 Å	39.3 Å	39.1
ρ_{Ce} (gr/cm ³) (10 ⁻²⁰ At/Å ³)	8.16 0.0351	8.16 0.0351	5.26 0.0225	5.17 0.0222
ρ_{Fe} (gr/cm ³) (10 ⁻²⁰ At/Å ³)	7.87 0.0848	7.87 0.0848	6.92 0.0747	7.47 0.0806
α_1	-4.9 ± 0.2	-7.9 ± 0.3	-9.4 ± 0.4	-9.0 ± 0.3
α_2	2.9 ± 0.1	3.6 ± 0.2	4.6 ± 0.2	4.5 ± 0.7
α_3	-3.2 ± 0.2	-4.6 ± 0.2	-5.9 ± 0.2	-6 ± 0.8
d_{Ce} (Å)	2.8	2.8	2.8	3.0
d_{Fe} (Å)	2.18	2.18	2.18	2.1
s_{Ce} (Å ⁻²)	0.0981	0.0981	0.0633	0.0670
s_{Fe} (Å ⁻²)	0.1845	0.1845	0.1625	0.1684
C_1	0.53	0.48	0.55	0.57
C_2	0.22	0.26	0.17	0.16
Polarisation moyenne en unité de XMCD	0.32	0.99	0.95	1.00
Contrainte <XMCD>=1	NON	OUI	NON	OUI
χ^2	9.41	26	8.117	4.873

Tableau IV.5 : Résultat de l'affinement selon les différentes hypothèses envisagées.

Le résultat de l'affinement dans le cas de l'hypothèse H3, pour lequel les densités sont en accord avec les mesures de réflectivité spéculaire est montré sur les figures 4.13 (signal de rapport d'asymétrie) et 4.14 (profil de polarisation en spin des états 5d). Dans le cas de l'hypothèse H3, aucune contrainte n'a été imposée pour la valeur moyenne de la polarisation : elle est trouvée après affinement très proche de 1, valeur correspondant à la mesure du XMCD pour une couche présentant des épaisseurs équivalentes. Dans le cas de l'hypothèse H4, la contrainte sur la polarisation moyenne est imposée afin de diminuer le nombre de paramètres

affinés. Dans ce cas la densité obtenue pour la couche de Ce est comparable à celle du modèle M2. On note cependant une différence pour la densité du Fer (+8% par rapport au modèle M2 et -5% par rapport au modèle M1). Ces deux résultats, en accord avec ceux obtenus précédemment à partir des mesures de réflectivité, tendent à confirmer une modification importante de la densité du Ce dans cet échantillon.

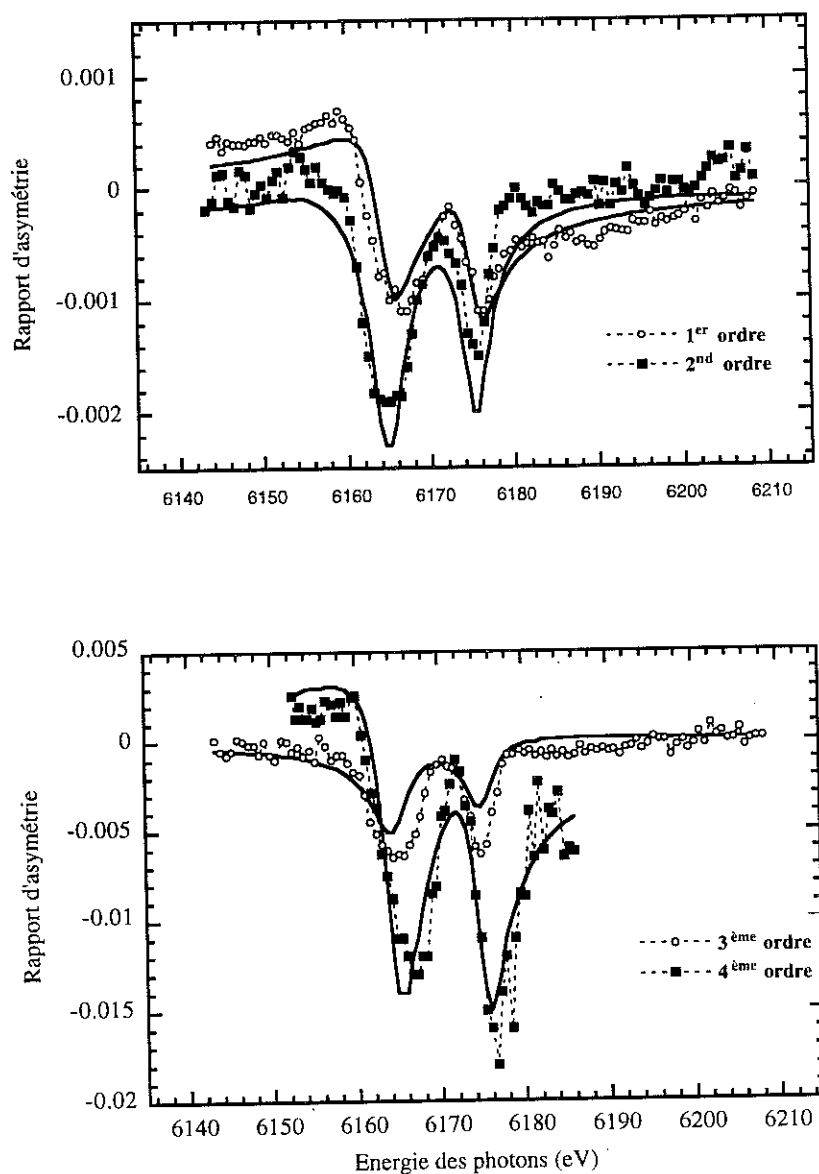


Figure 4.13 : Rapports d'asymétrie mesurés (points) et affinés (traits) dans le cas du **modèle H3**, comparés aux mesures expérimentales pour les 4 ordres de diffraction.
 Figure du haut : ordre 1 et 2, Figure du bas : ordre 3 et 4.

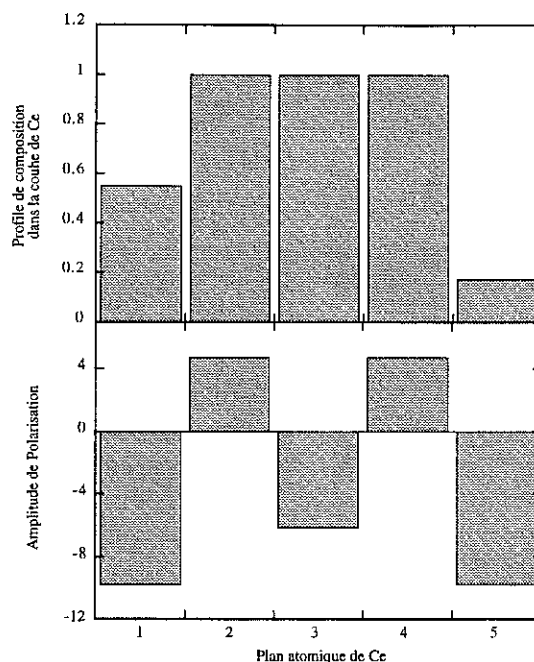


Figure 4.14 : *Profils de polarisation en spin (en bas) et de concentration chimique (en haut) obtenus pour la multicouche Ce₁₀Fe₃₀
Résultat de l'hypothèse (H3)*

Les résultats des différents affinements, effectués selon les quatre hypothèses présentées, conduisent tous à une oscillation du profil de polarisation en spin des états 5d du Ce à l'intérieur d'une sous couche de Ce. Dans le cas de l'hypothèse H2, le résultat de l'affinement est moins bon, mais présente cependant les mêmes caractéristiques que les 3 autres. Nous retenons finalement que quel que soit le modèle et l'hypothèse utilisés, le profil de polarisation des états 5d du Ce à l'intérieur d'une sous-couche présente toujours une oscillation avec une période de l'ordre de 5.6 Å, et une amplitude de l'ordre de 4 à 8 fois le signal XMCD moyen.

Afin de s'assurer du caractère oscillant de ce profil, différents essais ont été réalisés. La supposition que les couches de Ce ne soient formées que de 3 plans purs de Ce avec une distance d_{111} plus grande (recalculée à 3.24 Å, à partir des données du modèle M2) n'a pas permis de trouver une solution stable. La prise en compte d'un plus grand nombre de plans de Ce (9 plans avec une distance interplan de 1.4 Å), bien qu'introduisant un grand nombre de paramètres dans l'affinement, permet de rendre compte du rapport d'asymétrie en introduisant une oscillation de la polarisation comparable à celle obtenue dans le cas à 5 plans. Le nombre de paramètres libres est cependant trop important dans ce cas pour obtenir une solution stable par

l'affinement direct des données. Bien que n'ayant pas réellement de sens physique, cette approche permet de montrer la stabilité du caractère oscillant du profil.

6. / Discussion

Cette première tentative pour déterminer un profil de polarisation en spin induit sur une bande au niveau de Fermi dans un composé non magnétique, par une couche magnétique interfaciale, donne un résultat surprenant. Les résultats de la variation de l'amplitude du XMCD en fonction de l'épaisseur de Cérium suggèrent en effet un profil de polarisation constant pour les états 5d dans la couche de Ce dans une couche épaisse de 10 Å.

Les résultats des affinements conduisent à un profil oscillant au travers de la couche de Ce, avec des amplitudes relativement importante. Une correspondance entre l'amplitude de polarisation (exprimée par rapport au dichroïsme moyen) et le moment magnétique porté par la couche 5d peut être effectuée de manière indirecte. Il a été estimé que le signal de dichroïsme moyen mesuré sur cette couche correspond à un moment magnétique de l'ordre de $0.1 \mu_B$. Dans nos notations une polarisation de 9 <XMCD> correspond donc à un moment magnétique de l'ordre de $0.9 \mu_B$ dans ce plan interdiffusé ce qui constitue une valeur relativement grande si on la compare à celle du moment 5d pour le Ce dans $\text{CeFe}_2 = 0.35 \mu_B$ [3]. La polarisation dans le plan pur de Cérium à l'interface est par contre de l'ordre de $0.4 \mu_B$.

La présence d'une oscillation pour le profil de polarisation de la couche 5d du Ce fait évidemment penser à une interaction du type Ruderman-Kittel-Kasuya-Yoshida (RKKY) qui décrit le couplage de deux ions magnétiques par l'intermédiaire de la polarisation oscillante de la bande de conduction, induite par couplage avec les moments des électrons 4f [17]. L'extension de cette théorie au cas des multicouches a permis notamment d'expliquer le comportement de couplage oscillant comme il l'a été décrit au chapitre III. L'application de la théorie RKKY au cas des multicouches Ce/Fe se situe au delà du cadre de ce travail. Nous avons cependant effectué une approche phénoménologique naïve du problème, en considérant une oscillation amortie exponentiellement à travers la couche de Ce pour décrire la polarisation des états 5d. Cette approche a déjà été utilisée dans le cas d'une couche mince de Ru déposée sur du Fer (100) [18]. L'analyse de l'évolution de la polarisation en spin des électrons Auger à l'émission Coster-Kronig $M_{45}N_{45}N_{45}$ (sondant donc la bande 4d du Ru) conduit les auteurs à envisager une polarisation oscillante avec une période de 3 Å, et décroissante exponentiellement dans la couche de Ru, depuis l'interface avec le Fer. L'utilisation d'une telle description pour le paramètre de distance interplan de Cérium de 2.8 Å conduit à la relation :

$$\text{Pol} = \alpha \cos\left(\frac{2\pi}{5.6}(z - 1.4)\right) \exp(-\beta(z - 1.4))$$

z représente la profondeur dans la couche de Ce. Les paramètres α et β sont affinés sur le profil de polarisation 5d pour la couche Ce/Fe, en considérant deux polarisations symétriques issus de chaque interface avec le Fer, donc en $z=0$ et $z=10.2 \text{ \AA}$.

En supposant que les valeurs de ces paramètres puissent être étendues à des couches plus épaisses, l'utilisation de la formule précédente permet de décrire ce que serait le profil de polarisation magnétique dans ces couches. La figure 4.15 compare la variation ainsi obtenue pour différentes épaisseurs de couche, pour le signal de dichroïsme moyen que l'on peut recalculer à partir du profil, au signal XMCD mesuré pour des épaisseurs similaires [1]. L'accord peut être qualifié de satisfaisant ; notons cependant qu'il est logique dès lors que l'on considère que la polarisation du Ce est plutôt localisée aux interfaces (ce qui est le cas pour une décroissance exponentielle).

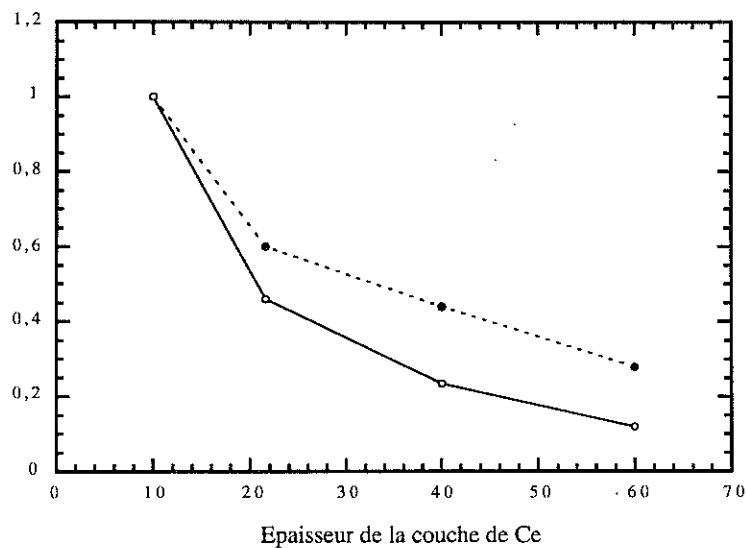


Figure 4.15 : Amplitude du signal expérimental de XMCD pour différentes épaisseurs de couche, normalisée à 1 pour $t_{\text{Ce}}=10\text{\AA}$ (en trait plein) et valeur moyenne de la partie imaginaire du facteur de diffusion magnétique en unité XMCD calculé à partir du modèle phénoménologique d'une oscillation du type RKKY (en trait pointillé).

Ces résultats sont en revanche difficiles à comparer avec les résultats de XMCD obtenus pour les autres systèmes multicouches préparées par le groupe de W. Felsch : il s'agit de

multicouches dont la période est constitué de 4 couches : Fe/La/Ce/La. Dans ces multicouches, il a été observé une forte polarisation des électrons 5d du Ce, bien que celui-ci ne soit pas en contact direct avec la couche de Fe, et même pour des épaisseurs de La suffisante pour que celui-ci ne soit pas polarisé à l'interface avec le Cérium. Ceci a conduit les auteurs à suggérer que les propriétés de polarisation magnétique des électrons 5d de la couche de Ce α seraient liées à une instabilité structurale conduisant à un ordre ferromagnétique pour les états 5d. Des mesures de diffraction magnétique résonante ont donc été effectuées sur une multicouche de ce type, $\text{Fe}_{30\text{\AA}}/\text{La}_{5\text{\AA}}/\text{Ce}_{10\text{\AA}}/\text{La}_{5\text{\AA}}$ montrant un rapport d'asymétrie non constant, de l'ordre de quelques 10^{-3} en amplitude. Cependant la qualité des données ne nous a pas permis d'effectuer un affinement. Dans ce cas, il n'est pas non plus possible de relier de manière simple le fait que le rapport d'asymétrie au seuil L_{II} de Ce soit non constant, au fait que la couche de Ce soit uniformément polarisée ou non du fait de la présence supplémentaire de la couche de La qui ne permet pas de suivre un raisonnement aussi simple que celui présenté au paragraphe 2.2.

Une étude de diffraction magnétique résonante similaire à celle conduite au seuil L_{II} du Ce dans Ce/Fe a été effectuée pour une multicouche $\text{La}_{40\text{\AA}}/\text{Fe}_{30\text{\AA}}$, au seuil L_{II} du La (5894 eV). La méthode de préparation de l'échantillon est en tout point semblable à celle présentée pour le cas des couches Ce/Fe. La procédure d'analyse et d'affinement des rapports d'asymétrie est également semblable. Les paramètres structuraux sont affinés à partir d'un spectre de réflectivité spéculaire, donnant une période réelle de 75.6 Å. Les travaux préalables de Felsch *et al* [19] montrent que le La se situe dans sa phase β (cfc) avec une orientation préférentielle (111), et le Fer dans sa phase α (bcc), avec une orientation préférentielle (110). Les paramètres de maille observés en diffraction aux grands angles, avec la radiation $K_{\alpha}\text{Cu}$ montrent un bon accord des distances interplans (111) pour le La, avec les valeurs observées pour le massif. Les rugosités d'interfaces, affinées dans notre mesure de réflectométrie sont respectivement de 2.1 Å pour l'interface La-Fe et 2.2 Å pour l'interface Fe-La. L'observation de pics de diffraction jusqu'au 11^{ème} ordre atteste en outre de la bonne qualité structurale de cette multicouche La/Fe. Ceci explique également que nous ayons pu mesurer les signaux d'asymétrie magnétique au seuil L_{II} de La jusqu'au 8^o ordre de diffraction (figure 4.16). L'affinement de ces signaux magnétiques a été effectué sur tous ces ordres selon la même procédure que celle utilisée pour le cas du Ce (§3.3). Le tableau IV. 6 décrit les paramètres utilisés.

	La	Fe
$d_{\text{interplan}} (\text{\AA})$	3.03 \AA	1.96 \AA
$d_{\text{bulk}} (\text{\AA})$	3.026	2.02
Densité atomique $\rho (\text{gr/cm}^3)$	6.17	7.87
épaisseur (\AA)	41.2	34.4
nombre de plans atomiques	13.6	17.4
Densité atomique dans le plan $S (\text{\AA}^{-2})$	0.0814	0.1662

Tableau IV.6 : Description structurale utilisée lors de l'affinement des courbes de rapport d'asymétrie pour une multicouche La/Fe

Comme pour le cas du Ce, les rapports d'asymétrie sont mesurés aux maxima des pics de Bragg de la multicouche La/Fe. La géométrie utilisée est la géométrie longitudinale, utilisant une polarisation elliptique gauche pour le faisceau incident, avec un taux de polarisation circulaire de 82 %. Les expériences ont été réalisées elles-aussi sur la ligne ID12 (BL#6) à l'ESRF, décrite précédemment. Les rapports d'asymétrie mesurés présentent la particularité d'être de signes alternés pour les ordres pairs et impairs. Lors des divers affinements que nous avons traités, nous nous sommes rendu compte que cette alternance est directement corrélée au fait que la polarisation des états 5d du La est localisée aux interfaces avec le Fer.

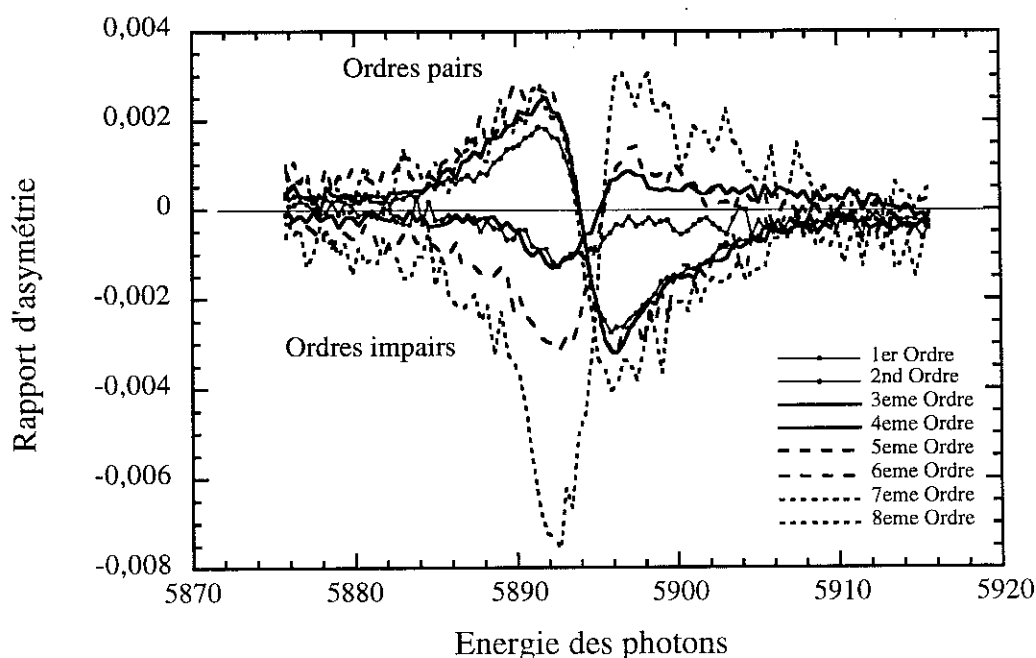


Figure 4.16 : Rapports d'asymétrie mesurés sur différents ordres de diffraction de Bragg pour une multicouche La/Fe.

Afin de limiter le nombre de paramètres libres lors de l'affinement, le système a été contraint, d'une part en imposant le dichroïsme moyen, et d'autre part en forçant les plans centraux (plans 4 à 12) à porter un facteur de diffusion magnétique résonant nul (absence de polarisation en spin pour les états 5d). Ceci est en accord avec les résultats de dichroïsme montrant une forte décroissance de la polarisation 5d du La avec l'épaisseur de la couche de La, et conduisant à conclure que le La est polarisé sur une épaisseur de seulement 5 Å à chaque interface avec le Fer.

L'affinement des rapports d'asymétrie selon la méthode utilisée pour le cas du Ce conduit au profil de polarisation montré sur la figure 4.16.

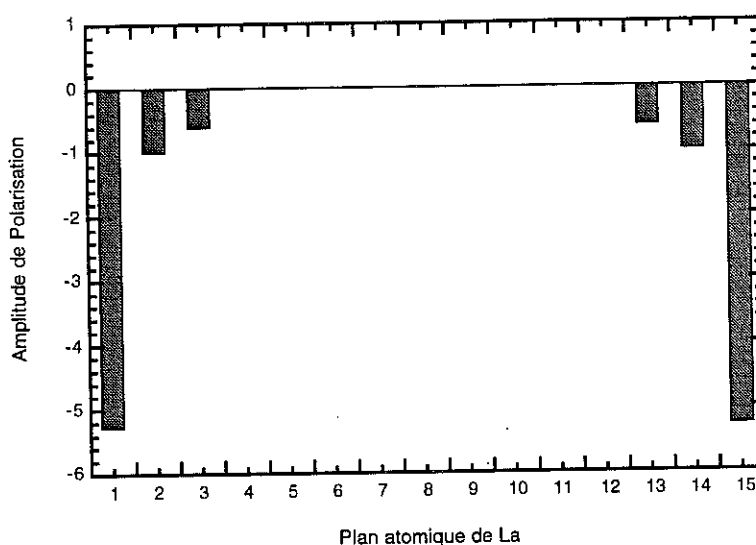


Figure 4.16 : Profil de polarisation à l'intérieur de la couche 5d du La pour une multicouche La/Fe
(Les deux plans 1 et 15 sont interdiffusés avec le Fer avec une concentration de 0.3 en atome de La)

On retrouve directement que les atomes de La présentent donc des états 5d polarisés uniquement près des interfaces, sans évidence claire pour un comportement oscillant. Il est possible d'effectuer une estimation du moment magnétique d'origine 5d porté par les atomes situés dans les plans d'interface. Une valeur du moment 5d moyen de $0.6 \mu_B$ a été donnée pour une multicouche $\text{La}_{10\text{\AA}}/\text{Fe}_{30\text{\AA}}$ par comparaison à l'amplitude du signal XMCD des références que constituent LaCo_5 et LuFe_2 [1]. La comparaison de l'amplitude du signal XMCD enregistré pour la multicouche $\text{La}_{40\text{\AA}}/\text{Fe}_{30\text{\AA}}$ avec laquelle nous avons travaillé à celui de $\text{La}_{10\text{\AA}}/\text{Fe}_{30\text{\AA}}$ conduit à un moment moyen de $0.13 \mu_B$ qui correspondrait dans notre analyse à une amplitude de polarisation de 1. Les atomes de La dans les deux plans interdiffusés avec le Fer (1 et 15)

porteraient donc un moment de l'ordre de $0.7 \mu_B$, tandis que dans les plans purs de La à l'interface (2 et 14) le moment 5d serait de l'ordre de $0.1 \mu_B$. Ces valeurs ne représentent cependant qu'une estimation d'ordre de grandeur, étant donné la manière indirecte par laquelle elle sont obtenues.

7. / Conclusion

Cette expérience est à notre connaissance la première qui ait été réalisée en XRMS en vue de la détermination d'un profil de polarisation de spins, à l'intérieur d'une couche non magnétique. Elle présente un résultat qui n'est pas attendu.

Rappelons d'abord que les mesures effectuées en utilisant une polarisation circulaire pour le faisceau X présentent un bon rapport signal sur bruit pour le rapport d'asymétrie déterminé au maximum des différents pics de Bragg : un rapport signal sur bruit satisfaisant a été mesuré jusqu'au 8^{ème} ordre de diffraction de Bragg de la multicouche La/Fe. Ceci montre la possibilité pratique d'utiliser la XRMS pour l'étude de structures multicouches.

Dans le cas d'une multicouche de structure binaire de type A/B, l'évolution du rapport d'asymétrie avec l'ordre de diffraction permet de conclure rapidement et sans ambiguïté si le profil de polarisation des états sondés pour l'élément non magnétique est constant ou non. Ceci a été utilisé pour démontrer que pour les états 5d du Ce dans Ce/Fe et du La dans La/Fe, la polarisation en spin **n'est pas constante à travers la couche**. Dans le cas de la multicouches La/Fe, une analyse plus quantitative conduit à une polarisation localisée principalement sur les 2 premiers plans atomiques à l'interface avec la couche de Fer, avec une très forte décroissance à l'intérieure de la couche de La. Cette variation est en bon accord avec les mesures de dichroïsme circulaire magnétique des rayons X effectués sur des multicouches similaires, montrant une variation de l'amplitude du signal linéaire en fonction de $1/t_{La}$ où t_{La} est l'épaisseur de la couche de La (ce qui implique une localisation aux interfaces).

Un résultat plus surprenant a été obtenu pour la multicouche Ce/Fe, puisque le profil obtenu présente un caractère oscillant à l'intérieur de la couche, avec des amplitudes pour les facteurs de diffusion magnétique relativement importantes. Plusieurs modèle structuraux ont été envisagés, en regard de l'incertitude sur la densité du Ce, qui conduisent tous à un profil de type oscillant. Les mesures de rapport d'asymétrie pour cette couche $Ce_{10\text{\AA}}/Fe_{30\text{\AA}}$ permettent de **rejeter sans ambiguïté à la fois l'hypothèse d'un profil constant, et celui d'une localisation de la polarisation des états 5d à l'interface avec le Fer** (qui conduirait à une inversion de signe pour les rapports d'asymétrie selon l'ordre de diffraction). Le résultat d'une polarisation oscillante doit donc être considéré comme provisoire, et demande une confirmation, soit théorique, soit expérimentale en prolongeant les expériences à des

échantillons présentant une épaisseur de Ce plus importante. Des mesures réalisées sur une multicouche $\text{Ce}_{25\text{\AA}}/\text{Fe}_{30\text{\AA}}$ ne nous ont pas permis de déterminer le profil de polarisation pour cet échantillon étant donné le nombre trop faible d'ordres de diffraction mesurés pour le rapport d'asymétrie avec cet échantillon.

Au vu de ces diverses expériences et grâce à la méthode d'analyse développée, la méthode de diffraction magnétique résonante semble être un outil prometteur pour l'étude du magnétisme induit dans une couche non magnétique. Dans le cas de couches cristallines, ce type d'étude pourrait être effectué sur les pics de la multicouche, situés aux grands angles de diffraction qui sont liés directement à l'empilement des plans atomiques. Dans ce cas un modèle structural plus précis pourrait être obtenu. Pour ce qui concerne les mesures aux petits angles, il s'avère intéressant de développer une méthode d'analyse basée sur la théorie optique qui permettrait de s'affranchir de l'approximation cinématique utilisée ici. Notons cependant que, afin d'obtenir des effets suffisamment intenses aux petits angles, il convient d'utiliser un faisceau polarisé circulairement.

Références Bibliographiques du Chapitre IV :

- [1] F. Klose, O. Schulte, F. Rose, W. Felsch, S. Pizzini, C. Giorgetti, F. Baudelet, E. Dartyge, G. Krill, A. Fontaine, *Physical Review B*, **50** (1994) 6174.
- [2] C. Giorgetti, Etude des propriétés magnétiques d'alliages intermétalliques de terre rare - metal de transition par dichroïsme circulaire magnétique des rayons X (Université Paris - Sud) 1994.
- [3] J.P. Schillé, Dichroïsme Magnétique dans le domaine des Rayons X : Application à l'Etude du Magnétisme de composés de Terre-Rares (Strasbourg I) 1994.
- [4] M. Arend, M. Finazzi, O. Schulte, A.-M. Dias, F. Baudelet, C. Giorgetti, M. Münzenberg, P. Schaaf, E. Dartyge, J.-P. Kappler, G. Krill, W. Felsch, *Physical review B*, (Soumis)
- [5] G. Schütz, R. Wienke, W. Wilhelm, W.B. Zeper, H. Ebert, K. Spört, *Journal of Applied Physics*, **67** (1990) 4456.
- [6] S. Pizzini, A. Fontaine, C. Giorgetti, E. Dartyge, J.F. Bobo, M. Piecuch, F. Baudelet, *Physical Review Letters*, **74** (1995) 1470.
- [7] M.G. Samant, J. Stöhr, S.S.P. Parkin, G.A. Held, B.D. Hermsmeier, F. Herman, M.V. Schilfgaarde, L.C. Duda, D.C. Mancini, N. Wassdahl, R. Nakajima, *Physical Review Letters*, **72** (1994) 1112.
- [8] V. Vettier, D.B. Mc Whan, E.M. Gyorgy, J. Kwo, B.M. Buntschuh, B.W. Batterman, *Physical review Letters*, **56** (1986) 757.
- [9] J.P. Simon, O. Lyon, A. Bruson, G. Marchal, M. Piecuch, *Journal of Applied Crystallography*, **21** (1988) 317.
- [10] A.M. Kadin, J.E. Keem, *Scripta Metallurgica*, **20** (1986) 443.
- [11] D.T. Cromer, J.B. Mann, *Acta Crystallographica A*, **24** (1968) 321.
- [12] S. Sasaki, Anomalous scattering factor for synchrotron radiation users calculated using Cromer and Liberman's method (National. Lab. for High Energy Physics, 1984).
- [13] F. De Bergevin, M. Brunel, R.M. Galera, C. Vettier, S. Lefebvre, M. Bessière, *Physical Review B*, **46** (1992) 10772.
- [14] E. Fullerton, I.K. Schuller, H. Vanderstroeten, Y. Bruynseraede, *Physical Review B*, **45** (1992) 9292.
- [15] E.E. Fullerton, J. Guimpel, O. hakamura, I.K. schuller`, *Physical review Letter*, **69** (1992) 2859.
- [16] E.E. Fullerton, J. pearson, C.H. Sowers, S.D. Bader, X.Z. Wu, *Physical Review B*, **48** (1993) 17432.

- [17] B. Barbara, D. Gignoux, C. Vettier, Lectures on Modern Magnetism (Springer-Verlag, Berlin, 1988)
- [18] K. Totland, P. Fuchs, J.C. Gröbli, M. Landolt, Physical Review Letters, **70** (1993) 2487.
- [19] W. Felsch, Communication privée,

CHAPITRE V

Réflectivité Magnétique Résonante des Rayons X Effets Kerr Magnéto-Optique des Rayons X

1. / Introduction.....	191
2. / Effets Kerr.....	192
3. / Equations de Maxwell.....	194
4. / Cas de l'effet Kerr transverse.....	196
4.1 / Propagation d'une onde dans un milieu magnétique.....	197
4.2 / Equations de continuité.....	199
4.3 / Notation matricielle.....	201
4.4 / Propagateurs.....	202
4.5 / Rugosité.....	204
5./ Constante diélectrique.....	206
4.1./ Relation entre constante diélectrique et facteur de diffusion atomique.....	206
4.2./ Evaluation pratique du tenseur diélectrique.....	209
6. / Echantillon "modèle" W/Fe/W.....	211
6.1 / Mesures de réflectivité magnétique.....	211
6.2 / Description structurale de la tricouche.....	215
6.3 / Calcul de réflectivité magnétique.....	218
7 / Echantillon FeMn.....	221
7.1./ Paramètres structuraux.....	222
7.2./ Simulations des courbes de réflectivité magnétique au seuil L du Fer.....	222
7.3./ Mesure au seuil du Mn.....	224
8. / Discussion.....	226
8.1./ Nature d'informations accessibles en géométrie transverse.....	226
8.2./ Autres géométries.....	230
9. / Conclusions.....	230
Références Bibliographiques du Chapitre V:.....	233

Chapitre V

Réflectivité Magnétique Résonante des Rayons X Effets Kerr Magnéto-Optique des Rayons X

1. / Introduction

L'utilisation des phénomènes magnéto-optiques dans le visible pour la caractérisation des composés ferromagnétiques est très répandue depuis les travaux de Goldhammer, Drude et Voigt [1], qui en ont établi les bases théoriques. Part ailleurs, la réflectivité des rayons X constitue un outil puissant et de géométrie simple permettant l'analyse des surfaces [2], films minces ou multicouches. La combinaison de ces deux phénomènes, la réflectivité magnétique résonante des rayons X, peut permettre le développement d'une technique au carrefour de l'effet Kerr optique, et des techniques de réflectivité des neutrons polarisés. Cette nouvelle approche, proposée théoriquement pour la première fois par Erskine et Stern pour les seuils $M_{II,III}$ du Ni [3], combine en effet les avantages de l'effet Kerr optique (sensibilité au magnétisme et à l'orientation du champ) avec la sélectivité atomique et la sélectivité de la couche électronique sondée, apportée par les processus résonants d'interaction entre photons X et matière lorsque l'énergie des photons incidents est proche de celle d'un seuil d'absorption électronique dans un matériau.

Relativement peu d'expériences de réflectivité magnétique résonante ont été réalisées à ce jour. Ceci tient au fait qu'avant l'article théorique de Erskine et Stern [3] pour la magnéto-optique, prédisant un effet de dichroïsme magnétique dans la gamme des rayons X mous, et celui de Platzman et Tzoar [4] consacré à la diffraction magnétique, les rayons X étaient communément considérés comme une sonde ne présentant aucune sensibilité directe au magnétisme de l'échantillon.

La première expérience de réflectivité en X-mous a été réalisée par C.-C. Kao *et al* [5] en 1990 aux seuils L_{II} et L_{III} du Fer pour une couche mince de Fer comprise dans une structure en couche. Un effet magnétique de l'ordre de 10% a été observé et la courbe de réflectivité magnétique a été affinée au moyen de la théorie de Fresnel, décrite pour les rayons X en incidence rasante par L.G. Parratt [2]. Ceci constitue d'ailleurs une limitation de ce travail, puisqu'il ne prend pas en compte l'aspect tensoriel reflétant l'interaction entre l'onde électromagnétique et l'aimantation du matériau. Dans un deuxième temps, en 1994, cette même équipe a décrit une expérience de réflectivité aux seuils L_{II} et L_{III} de Co, dans une couche bcc (001) déposée en épitaxie sur un substrat de GaAs (001) [6]. Elle a été réalisée en utilisant la polarisation elliptique du rayonnement synchrotron et a montré des asymétries dans la réflectivité magnétique pouvant atteindre 80% pour un taux de polarisation circulaire incident de 75%. Récemment, Chakarian *et al* [7] ont réalisé une expérience similaire pour une tricouche contenant du Fer et du Cobalt. La théorie de l'effet Kerr magnéto-optique a été utilisée afin de décrire les résultats expérimentaux. Les simulations obtenues permettent de retrouver les caractéristiques observées pour la réflectivité magnétique, sans que l'accord quantitatif avec les résultats expérimentaux soit parfait. Sacchi *et al* [8] ont également réalisé des mesures de réflectivité magnétique en polarisation elliptique, à angle d'incidence fixe, sur une surface d'un cristal de Ni(100). Ces auteurs ont également montré une mesure de cycle d'hystérésis au seuil L de Ni en réflexion, se comparant bien à la même mesure effectuée en magnéto-optique Kerr classique, pour ce qui est de la forme.

Nous avons voulu développer l'analyse de telles courbes de réflectivité, afin de voir quelles sont les possibilités réelles offertes par cette technique pour l'étude des couches minces. Celle-ci ne permettent en effet pas l'utilisation de la diffraction de Bragg dans le domaine des X-mous. Des expériences de réflectivité magnétique aux seuils L de métaux de transition ont donc été effectuées au printemps 97. Après avoir développé le formalisme pour l'effet Kerr transverse nous présentons les premiers calculs effectués, ainsi que les difficultés d'analyse rencontrées.

2. / Effets Kerr

L'effet Faraday (géométrie de transmission) est généralement compris comme une rotation du plan de polarisation et l'apparition concomitante d'une ellipticité, lorsque le faisceau initialement polarisé linéairement traverse un film magnétique. Dans l'effet Kerr (géométrie de réflexion), l'interaction de l'onde électromagnétique avec l'aimantation dépend des orientations relatives de la surface de l'échantillon, du plan d'incidence de l'onde et de la direction de l'aimantation du matériau. Le cas général peut se réduire à trois géométries simples schématisées

sur la figure 5.1, pour lesquelles seule compte l'orientation de l'aimantation par rapport au faisceau incident, à savoir :

- (1) Géométrie polaire : l'aimantation se trouve dans la direction perpendiculaire à la surface de l'échantillon, et est donc dans le plan d'incidence.
- (2) Géométrie longitudinale : l'aimantation se situe dans le plan de la surface et dans le plan d'incidence.
- (3) Géométrie transverse (ou équatoriale) : l'aimantation se situe dans le plan de la surface et est perpendiculaire au plan d'incidence.

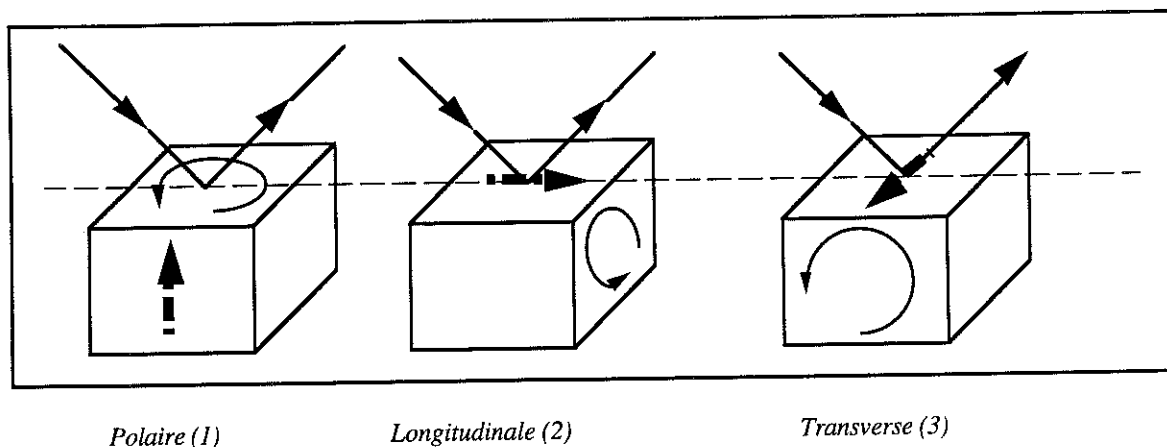


Figure 5.1 : Géométries utilisées pour l'effet Kerr en réflexion. Le symbole de rotation schématise l'effet de rotation de la polarisation du faisceau dû à l'aimantation du matériau. La direction de l'aimantation du matériau est représentée par la flèche en tirets.

L'onde électromagnétique est définie par ses deux polarisations σ et π . Nos conventions choisissent la polarisation σ dans le plan de surface de l'échantillon, perpendiculairement au plan d'incidence. La polarisation π est dans le plan d'incidence. Les lois générales de l'optique stipulent que l'état de polarisation de l'onde n'est pas altéré par la réflexion à la surface d'un matériau optiquement isotrope. Dans le cas où le matériau est non magnétique, et ne présente pas d'anisotropie cristalline, le faisceau réfléchi est donc dans le même état de polarisation que le faisceau incident.

Dans le cas où s'établit une aimantation (spontanée ou induite par l'application d'un champ extérieur), les états de polarisation des faisceaux réfléchis se couplent à priori à chacun des deux états de polarisation du faisceau incident. Une vision classique, généralement adoptée en optique, consiste à considérer que les électrons oscillent sous l'effet du champ électrique, et acquièrent donc une vitesse. Il s'instaure alors une force de Lorentz due au champ magnétique local, laquelle induit une oscillation perpendiculaire. Le dipôle électronique réémet donc un

champ électrique majeur selon la direction de polarisation incidente, mais aussi un autre champ de polarisation tournée de 90° : la présence d'une aimantation conduit donc à une rotation de la polarisation. Au premier ordre, les effets magnéto-optiques ne sont donc pas dus à l'interaction directe, très faible, entre le champ magnétique de la radiation et le moment magnétique du matériau, mais au champ électrique réémis par les électrons dont les trajectoires sont modifiées par le champ magnétique local [9]. Nous verrons qu'il en est de même pour ce qui concerne les effets magnéto-optiques dans la gamme d'énergie des rayons X. L'effet principal est relié, comme dans le cas de la diffraction magnétique résonante décrite au chapitre III, aux processus de transitions électroniques et non à l'interaction directe du champ magnétique de l'onde avec l'aimantation.

3. / Equations de Maxwell

Nous rappelons ici le formalisme de l'effet Kerr. Nous commençons par exposer les lois générales de l'optique, puis le cas particulier de l'effet Kerr transverse sera décrit. D'un point de vue macroscopique classique, la description des effets magnéto-optiques a été présentée par plusieurs auteurs [1, 9-11]. Le point de départ est bien évidemment donné par les équations de Maxwell décrivant le comportement d'une onde électromagnétique dans un milieu, couplées aux relations définissant la réponse spécifique du milieu.

$$\begin{aligned}\text{Rot}(\mathbf{E}) &= -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \\ \text{Rot}(\mathbf{H}) &= \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} + \frac{4\pi}{c} \mathbf{J}_T\end{aligned}\quad [\text{V.1}]$$

où $\mathbf{H}$ est le champ d'excitation magnétique ($\mathbf{B} = \mu \mu_0 \mathbf{H}$), $\mathbf{E}$ est le champ électrique et $\mathbf{D} = \epsilon \epsilon_0 \mathbf{E}$ le déplacement électrique, μ la perméabilité magnétique, et ϵ la permittivité diélectrique du matériau. $\mathbf{J}_T$ est la densité totale de courant à l'intérieur du matériau donné par :

$$\text{Avec} \quad \mathbf{J}_T = \bar{\sigma} \mathbf{E} + \alpha \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \quad [\text{V.2}]$$

σ et α sont respectivement les tenseurs complexes de conductivité et de polarisabilité du matériau.

Dans le cas le plus général, la constante diélectrique ϵ et la perméabilité magnétique sont représentées par une quantité tensorielle complexe. Dans le cas d'un matériau isotrope, elles se réduisent à un scalaire. De plus, ϵ dépend de la fréquence ω du rayonnement. Au contraire de $\epsilon(\omega)$, la perméabilité magnétique $\mu(\omega)$ perd très rapidement son sens physique lorsque la fréquence augmente [12]. Dans la gamme des photons visibles, elle est généralement considérée comme étant égale à l'unité. Par extension à la fréquence encore plus grande que représente un photon X, μ est prise égal à 1.

Considérons une onde électromagnétique monochromatique de pulsation ω , se propageant dans le matériau suivant le vecteur d'onde $\mathbf{k}$. Le champ électrique au point M défini par $\mathbf{OM}=\mathbf{r}$ s'exprime :

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 e^{j(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})} \quad [\text{V.3}]$$

En utilisant les relations mathématiques (les mêmes peuvent être dérivées pour le champ $\mathbf{H}$) :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} &= j\omega \mathbf{E} \\ \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial u} &= jk_u \mathbf{E} \\ \nabla \times \mathbf{E} &= -j\mathbf{k} \times \mathbf{E} \end{aligned} \quad [\text{V.4}]$$

ainsi que les équations V.1 on obtient l'équation fondamentale caractérisant la propagation d'une onde électromagnétique dans un milieu matériel (avec $\epsilon_0 \mu_0 c^2 = 1$) ne comportant pas de courant ($\mathbf{J}_T=0$):

$$\mathbf{k} \wedge (\mathbf{k} \wedge \mathbf{E}) + \frac{\omega^2 \epsilon}{c^2} \mathbf{E} = 0 \quad [\text{V.5}]$$

La résolution de cette équation donne les modes de propagation de l'onde dans un milieu caractérisé par sa constante diélectrique. A partir de la constante diélectrique, et dans le cas d'un milieu isotrope, on définit l'indice optique par :

$$\epsilon = n^2 \quad [\text{V.6}]$$

Introduisons maintenant les effets magnéto-optiques. Ils sont la conséquence directe de la forme du tenseur diélectrique en présence d'une aimantation dans le matériau. Si on considère

un milieu isotrope (cas d'un cristal cubique), et une aimantation le long de la direction z, on peut montrer que le tenseur ϵ a la forme suivante [12]:

$$\tilde{\epsilon} = \begin{bmatrix} \epsilon & j\eta & 0 \\ -j\eta & \epsilon & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon \end{bmatrix} \quad [V.7]$$

où ϵ est une fonction paire de H , et η une fonction impaire de H . Dans le cas plus général d'un milieu anisotrope présentant une symétrie cylindrique d'axe z , la composante diagonale selon z de la constante diélectrique est différente de celles le long des deux autres directions.

Si l'aimantation n'est pas parallèle à un axe propre du tenseur ϵ celui-ci peut alors être déduit par l'application d'une rotation de l'espace.

4. / Cas de l'effet Kerr transverse :

Nous abordons ici de manière plus détaillée le développement des formules dans le cas de la géométrie Kerr transverse, pour les raisons suivantes qui seront précisées plus avant dans la suite de ce chapitre :

- Son approche mathématique est la plus directe (par rapport aux deux autres géométries) puisque les deux états de polarisation des faisceaux incident et réfléchi n'interagissent pas.
- Elle constitue la géométrie la plus aisée à mettre en oeuvre dans la gamme des rayons X puisque les anneaux de stockage fournissent principalement un rayonnement synchrotron polarisé linéairement. Dans les deux autres géométries où l'aimantation est dans le plan de réflexion, les 2 états de polarisation σ et π du faisceau incident sont couplés par la réflectivité magnétique ce qui implique l'utilisation de la polarisation circulaire.
- Elle permet la prise en compte des rugosités d'interface de façon relativement directe.

4.1 / Propagation d'une onde dans un milieu magnétique

Considérons une onde monochromatique se propageant selon le vecteur d'onde $\mathbf{k}$, situé dans le plan (xOz), où Ox est la trace du plan d'incidence sur la surface de l'échantillon. Oz est perpendiculaire à cette surface. L'aimantation est orientée selon la direction Oy. Le vecteur d'onde est décrit par :

$$\mathbf{k} = \frac{2\pi}{\lambda_0} \begin{cases} \alpha \\ 0 \\ \gamma \end{cases} \quad [\text{V.8}]$$

où $k_0 = 2\pi/\lambda_0$ est le vecteur d'onde dans le vide. On a donc $\omega = ck_0$.

Le tenseur diélectrique s'écrit pour un milieu isotrope et une aimantation d'axe y :

$$\mathbf{\epsilon} = \begin{bmatrix} \epsilon & 0 & j\eta \\ 0 & \epsilon & 0 \\ -j\eta & 0 & \epsilon \end{bmatrix} \quad [\text{V.9}]$$

Pour que l'équation V.5 admette des solutions non nulles, il faut que son déterminant soit nul. L'équation caractéristique dans ce cas particulier (effet Kerr transverse) se scinde en deux sous-équations indépendantes, correspondant chacune à un mode propre de propagation : onde transverse électrique (polarisation σ) et onde transverse magnétique (polarisation π) représentées schématiquement sur la figure 5-2. On obtient ainsi les deux relations liant les projections α et γ du vecteur unitaire le long de $\mathbf{k}$ aux composantes du tenseur diélectrique, en tenant compte de $\omega = ck_0$.

$$\begin{cases} \gamma^2 = \epsilon - \alpha^2 & TE \\ \epsilon\gamma^2 = \epsilon^2 - \epsilon\alpha^2 - \eta^2 & TM \end{cases} \quad [\text{V.10}]$$

On remarque de plus que seules les valeurs de α et γ sont utilisées par l'équation caractéristique. La direction de propagation de l'onde reste donc dans le plan xOz.

La résolution de l'équation V.5 donne quant à elle la forme du champ électrique dans le matériau (équations V.11) pour une onde transverse magnétique (TM ou π) et pour une onde transverse électrique (TE ou σ) : transverse s'entend perpendiculaire au plan d'incidence de

l'onde (le plan de réflexion, soit dans ce cas transverse le plan perpendiculaire à la direction d'aimantation).

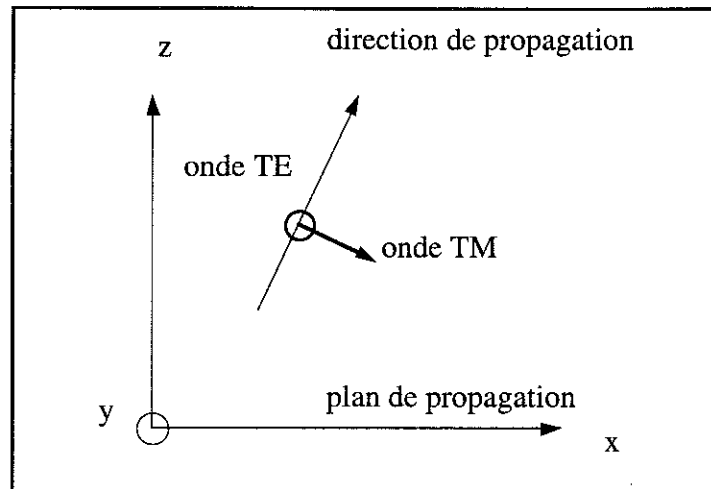


Figure 5.2 : Définition des ondes TE ou σ et TM ou π , le plan zOx est le plan d'incidence

$$E_{TM} = \begin{cases} E_x \\ 0 \\ \frac{\epsilon - \gamma^2}{j\eta - \alpha\gamma} E_x \end{cases} \quad E_{TE} = \begin{cases} 0 \\ E_y \\ 0 \end{cases} \quad [V.11]$$

Etant donné la forme du tenseur diélectrique dans la géométrie Kerr transverse, il en résulte que le produit $\bar{\epsilon}E$ pour l'onde TE est un vecteur ayant une seule composante selon Oy, indépendante de z et donc du champ magnétique local. La propagation de l'onde TE ne dépend donc pas de l'aimantation et n'est en rien modifiée par sa présence. Seule la composante π , associée à l'onde transverse magnétique fait intervenir la composante d'origine magnétique η . On retrouve donc le même résultat que pour le cas de la diffraction magnétique dans la géométrie transverse pour laquelle seule intervient la polarisation π du faisceau.

4.2./ Equations de continuité

La figure 5.3 explicite la géométrie considérée pour décrire la continuité du champ électromagnétique à travers l'interface entre 2 milieux : la normale à la surface libre (ou à l'interface entre 2 couches) est prise selon z, l'onde se propage dans le plan xOz. L'aimantation est orientée selon la direction y.

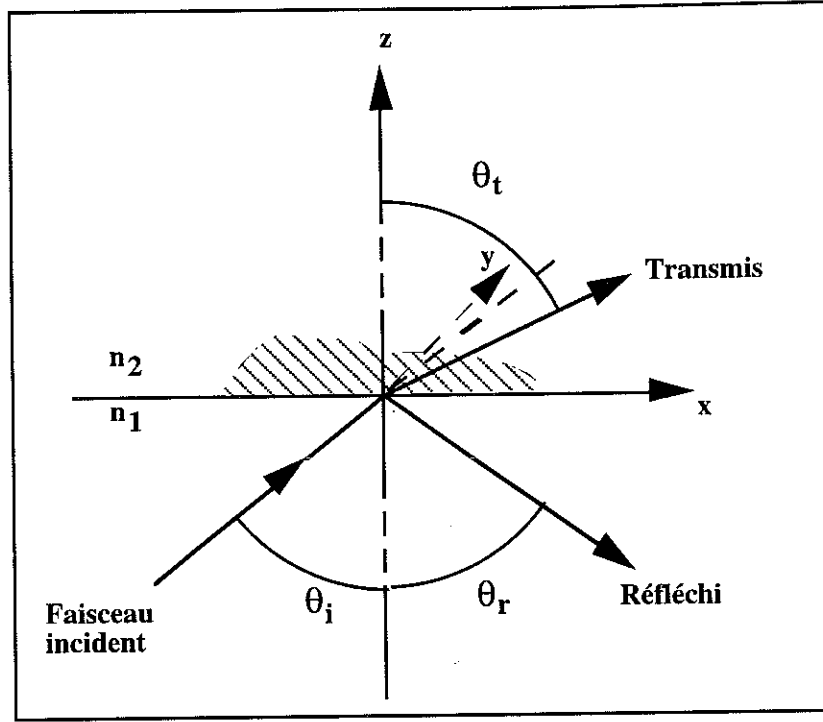


Figure 5.3 : Géométrie et notation dans le cas de l'effet Kerr-Transverse (l'aimantation est perpendiculaire au plan xOz).

Le calcul des coefficients de réflexion résulte de l'application des conditions de continuité aux interfaces entre les matériaux et également à la surface du matériau (interface avec le vide). Ces conditions imposent la continuité de la composante normale de $\mathbf{B}$, et de la composante tangentielle de $\mathbf{E}$.

La continuité de la composante tangentielle de $\mathbf{E}$ est donnée par la relation V.12. Le vecteur $\mathbf{z}$ représente un vecteur unitaire normal à la surface.

$$\left(\mathbf{E}_i e^{(j\mathbf{k}_i \mathbf{r})} + \mathbf{E}_r e^{(j\mathbf{k}_r \mathbf{r})} - \mathbf{E}_t e^{(j\mathbf{k}_t \mathbf{r})} \right) \times \mathbf{z} = \mathbf{0} \quad [\text{V.12}]$$

Cette relation doit être satisfaite pour toutes les coordonnées $\mathbf{r}$ de tous les points appartenant à la surface. Elle implique donc l'égalité des composantes des vecteurs d'onde tangentielle à la surface, de façon à avoir l'égalité de toutes les exponentielles quel que soit $\mathbf{r}$.

$$\mathbf{k}_i \times \mathbf{z} = \mathbf{k}_r \times \mathbf{z} = \mathbf{k}_t \times \mathbf{z} \quad [\text{V.13}]$$

Cette dernière relation exprime les lois de Snell-Descartes pour la réfraction entre deux milieux d'indices respectifs n_1 et n_2 , et pour une onde incidente sous un angle θ_i (réfléchi sous θ_r et transmise sous θ_t) :

$$\begin{aligned} \alpha_i &= \alpha_r \quad \text{ou} \quad \sin(\theta_i) = \sin(\theta_r) \\ \alpha_i &= \alpha_t \quad \text{ou} \quad n_1 \sin(\theta_i) = n_2 \sin(\theta_t) \end{aligned} \quad [\text{V.14}]$$

Dans un milieu absorbant, n_1 , n_2 et θ_t sont complexes. De même si $\mathbf{k}_i$ est choisi réel, ce qui implique $\mathbf{k}_r$ réel, θ_i et $\mathbf{k}_t$ sont complexes. L'équation V.13 implique que la partie imaginaire de $\mathbf{k}_t$ est toujours perpendiculaire à la surface. Les plans de constante amplitude sont donc toujours parallèles au plan de la surface, alors que les plans de phase constante sont perpendiculaires à $\mathbf{k}_t$.

Pour le champ magnétique on a $\mathbf{B}_{tg}^1 - \mathbf{B}_{tg}^2 = \mathbf{i}_s \times \mathbf{z}$, où $\mathbf{i}_s$ est le courant surfacique. Il y a donc continuité de la composante tangentielle du champ $\mathbf{B}$ dans le cas où le courant surfacique est nul.

En utilisant les équations de Maxwell, les composantes du champ $\mathbf{B}$ peuvent être réécrites en fonction de celle du champ électrique : $c\mathbf{B} \cdot \mathbf{x} = -\gamma \mathbf{E} \cdot \mathbf{y}$ et $c\mathbf{B} \cdot \mathbf{y} = \gamma \mathbf{E} \cdot \mathbf{x} - \alpha \mathbf{E} \cdot \mathbf{z}$ (où $\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}$ sont les vecteurs unitaires définis précédemment, γ et α sont les composantes du vecteur d'onde dans le milieu considéré). La continuité de B_x se traduit par la continuité de γE_y , et la continuité de B_y se traduit par la continuité de $\gamma E_x - \alpha E_z$.

En considérant une interface entre un milieu noté 0 et un milieu noté 1, définie par le plan xOy , les équations de continuités V.12 et V.14 s'écrivent :

$$\begin{aligned} \sum_{m=1}^4 \mathbf{E}_m^0 \cdot \mathbf{x} &= \sum_{m=1}^4 \mathbf{E}_m^1 \cdot \mathbf{x} \\ \sum_{m=1}^4 \mathbf{E}_m^0 \cdot \mathbf{y} &= \sum_{m=1}^4 \mathbf{E}_m^1 \cdot \mathbf{y} \\ \sum_{m=1}^4 -\gamma_m^0 \mathbf{E}_m^0 \cdot \mathbf{y} &= \sum_{m=1}^4 -\gamma_m^1 \mathbf{E}_m^1 \cdot \mathbf{y} \\ \sum_{m=1}^4 \gamma_m^0 \mathbf{E}_m^0 \cdot \mathbf{x} - \alpha \mathbf{E}_m^0 \cdot \mathbf{z} &= \sum_{m=1}^4 \gamma_m^1 \mathbf{E}_m^1 \cdot \mathbf{x} - \alpha \mathbf{E}_m^1 \cdot \mathbf{z} \end{aligned} \quad [\text{V.15}]$$

où m désigne les 4 ondes solutions de l'équation caractéristique V.5, et E_m^i est le champ électrique pour l'onde m dans le milieu i .

4.3./ Notation matricielle :

Les équations de continuité V.15 peuvent être écrites sous une forme matricielle plus compacte [13]. Les amplitudes des ondes électromagnétiques sont décrites par un vecteur à quatre composantes A^i : 2 composantes pour l'onde de polarisation σ ou TE, et 2 autres pour l'onde de polarisation π ou TM. Pour chaque état de polarisation, chacune des deux composantes correspond à un mode différent de propagation dans le matériau : un mode dit "montant" se propageant vers les z positifs ($\text{Im}\gamma > 0$), et un mode dit "descendant" ($\text{Im}\gamma < 0$), se propageant vers les coordonnées z négatives.

Dans ce cas, la relation de continuité peut s'écrire sous la forme matricielle :

$$\mathbf{M}^0 \mathbf{A}^0 = \mathbf{M}^1 \mathbf{A}^1 \quad [\text{V.16}]$$

où $\mathbf{M}^i$ est une matrice définie pour la strate i par (dans le cas transverse) :

$$\mathbf{M}^i = \begin{bmatrix} 1 & 1 & 0 & 0 \\ \gamma_1^i & \gamma_2^i & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 1 \\ 0 & 0 & \gamma_3^i - \alpha \frac{\varepsilon - (\gamma_3^i)^2}{j\eta - \alpha\gamma_3^i} & \gamma_4^i - \alpha \frac{\varepsilon - (\gamma_4^i)^2}{j\eta - \alpha\gamma_4^i} \end{bmatrix} \text{ et } \mathbf{A}^i = \begin{bmatrix} E_\sigma^1 \\ E_\sigma^2 \\ E_\pi^3 \\ E_\pi^4 \end{bmatrix} \quad [\text{V.17}]$$

où γ_1 et γ_2 sont les 2 solutions de l'équation caractéristique pour l'onde TE, et γ_3 et γ_4 celles pour l'onde TM. Les modes 1 et 3 correspondent aux modes montants ($\text{Im}(\gamma) > 0$), les modes 2 et 4 aux modes descendants ($\text{Im}(\gamma) < 0$). Les coefficients de réflexion r_σ et r_π sont les rapports des amplitudes des ondes montantes et descendantes. Ils sont obtenus en résolvant l'équation :

$$\mathbf{A}_0 = \mathbf{M}_0^{-1} \mathbf{M}_1 \mathbf{A}_1 \quad [\text{V.18}]$$

Dans le cas où la composante dépendante de l'aimantation du tenseur diélectrique est nulle, on obtient l'expression classique pour une seule interface :

$$\mathbf{M}_0^{-1}\mathbf{M}_1 = \mathbf{F}_{0,1} = \frac{1}{t} \begin{bmatrix} 1 & r_\sigma & 0 \\ r_\sigma & 1 & \\ 0 & & 1 & r_\pi \\ & & r_\pi & 1 \end{bmatrix} \quad [\text{V.19}]$$

$\mathbf{F}_{0,1}$ est appelée matrice de Fresnel, et t est le coefficient de transmission à l'interface.

Il est possible de calculer un tel coefficient t pour l'onde TE (polarisation σ) et de montrer que l'on retrouve le résultat des équations de Fresnel dans le cas d'une onde polarisée σ , et pour un milieu isotrope [14] :

$$r_\sigma = \frac{\gamma_1 - \gamma_0}{\gamma_1 + \gamma_0} \quad [\text{V.20}]$$

4.4./ Propagateurs

L'échantillon est un système formé de plusieurs couches. Il faut donc tenir compte de la propagation de l'onde dans chacune des couches pour le calcul des amplitudes à une interface. Ceci est pris en compte par les matrices de propagation $\mathbf{P}$, qui sont des matrices diagonales (matrice V.21). Elles tiennent compte de l'atténuation et du déphasage de l'onde suite à la traversée de la couche n , d'épaisseur t_n (le coefficient γ_i étant à priori complexe) [13].

$$\mathbf{P}_n = \begin{bmatrix} e^{j\gamma_1^n t_n} & & & \\ & e^{j\gamma_2^n t_n} & & \\ & & e^{j\gamma_3^n t_n} & \\ & & & e^{j\gamma_4^n t_n} \end{bmatrix} \quad [\text{V.21}]$$

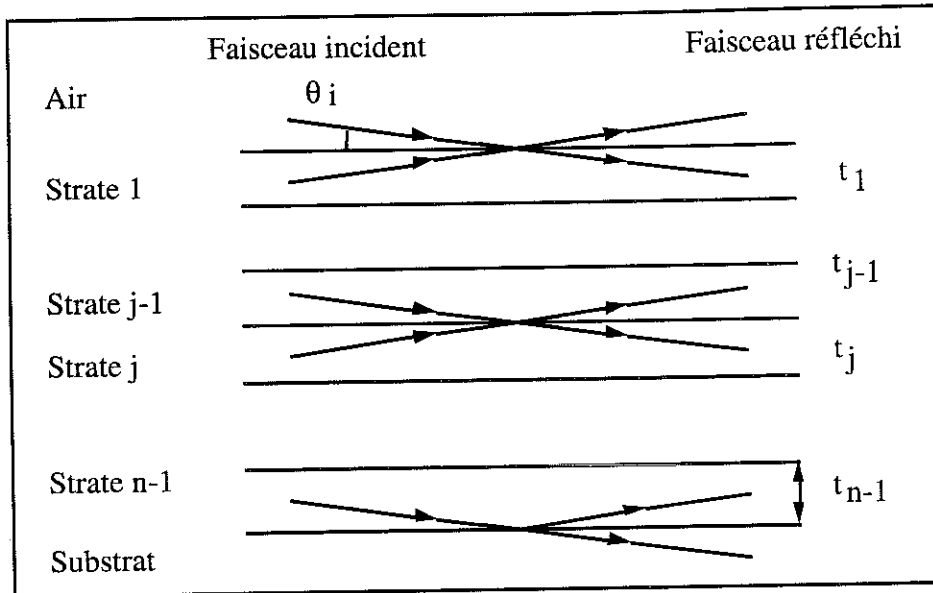


Figure 5.4 : Schéma d'un modèle en strates pour un échantillon multicouches

Pour un modèle en strate de l'échantillon (figure 5.4), les amplitudes des champs incident et réfléchi à la surface de l'échantillon sont alors décrites de manière récurrente par les produits des matrices de Fresnel de l'interface $j, j+1$, de la matrice de propagation dans le milieu $j+1$, ainsi que par l'amplitude du champ électrique à l'interface entre la dernière strate $n-1$ et le substrat (strate n).

$$\begin{bmatrix} E_{\sigma}^{inc} \\ E_{\sigma}^{refl} \\ E_{\pi}^{inc} \\ E_{\pi}^{refl} \end{bmatrix} = \left(\prod_{j=0}^n \left(M_j^{-1} M_{j+1} P_{j+1} \right) \right) \begin{bmatrix} E_{\sigma}^n \\ 0 \\ E_{\pi}^n \\ 0 \end{bmatrix} \quad [V.22]$$

L'indice n désigne le substrat qui est considéré comme infiniment épais, et ne présentant donc pas de mode montant (pas de création de champ électrique à l'infini). La couche d'indice 0 est le vide pour lequel $\epsilon=1$ et $\eta=0$. Le calcul de la réflectivité revient donc au calcul de la matrice figurant dans l'expression V.22.

4.5./ Rugosité

Les rugosités aux interfaces entraînent une atténuation de la réflectivité. La prise en compte de la rugosité de la surface et des interfaces successives est un problème relativement

difficile à traiter. En effet, plusieurs paramètres entrent en ligne de compte, et en particulier les longueurs d'onde (fréquences spatiales) des rugosités par rapport à celle du rayonnement incident et par rapport à la taille de cohérence du faisceau, ainsi que par rapport à la longueur d'absorption. Dans le cas de l'effet Kerr optique dans le visible, la rugosité joue un rôle peu important, principalement à cause de la grande différence entre la longueur d'onde du rayonnement (typiquement $\lambda_{\text{rouge}} = 6700\text{\AA}$) et celle de la rugosité (accessible par la densité spectrale de puissance). La rugosité a peu d'importance tant que la surface possède un poli "optique", qui peut présenter des rugosités de plusieurs dizaines d'angströms. En revanche, dans le cas des rayons X, ce paramètre est beaucoup plus critique puisque pour un échantillon formé de couches minces les amplitudes des rugosités sont typiquement de l'ordre de quelques angström, donc de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde du rayonnement (voire même plus grandes dans le cas des rayons X durs).

Dans le cas de la réflexion spéculaire, on peut considérer que l'interface rugueuse est constituée de plusieurs parties qui diffusent indépendamment les unes des autres mais chacune de façon cohérente. L'amplitude réfléchie est alors obtenue en sommant ces contributions et ne dépend donc pas du détail de la répartition latérale de la matière à l'interface. Seule compte donc la répartition transverse d'indice, tant que les fréquences spatiales latérales sont suffisamment grandes pour ne pas trop s'éloigner des conditions de réflexion totale.

Il faut souligner que dans le cas de la réflectivité spéculaire, on ne peut pas faire la différence entre une rugosité et une interdiffusion entre les deux matériaux, si elles donnent lieu au même profil de densité.

Pour introduire phénoménologiquement un terme d'atténuation dû à la rugosité, on considère généralement une distribution aléatoire pour le profil de l'interface. Le profil de distribution d'indice entre les deux milieux est alors représenté par une fonction erreur, et donc sa dérivée par une fonction gaussienne [15, 16]. La largeur à mi-hauteur σ caractérise la largeur d'interface. Cette approche conduit à introduire un facteur similaire au facteur d'agitation thermique de Debye-Waller : $\exp [-(16\pi^2 / \lambda^2) \sigma^2 \sin^2 \alpha]$ qui atténue le coefficient de réflexion obtenu dans le cas d'une interface parfaite. Cependant, cette forme d'atténuation est difficile à prendre en compte dans le cas de l'approche matricielle.

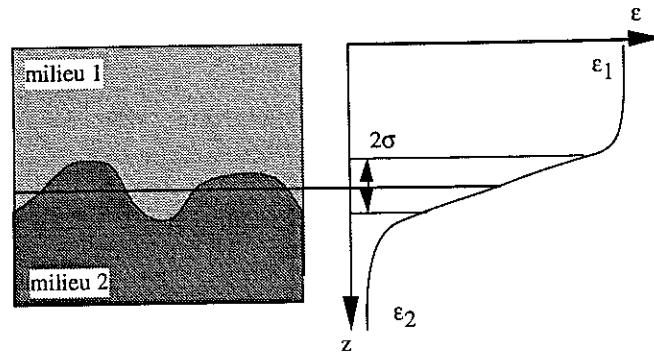


Figure 5.5 : représentation d'une interface rugueuse et du profil d'indice $n(z)$ associé.

Pour cela, nous avons utilisé l'approche proposée par Vidal et Vincent [17] qui modifie l'expression de la matrice de passage de Fresnel d'une couche dont la rugosité est caractérisée par σ par :

$$\mathbf{F} = \frac{1}{t} \begin{bmatrix} e^- & r_\sigma e^+ & 0 \\ r_\sigma e^+ & e^- & 0 \\ 0 & 0 & e^- & r_\pi e^+ \\ & & r_\pi e^+ & e^- \end{bmatrix} \quad [\text{V.23}]$$

Avec :

$$e^\pm = e^{-\frac{(\gamma_{i+1} \mp \gamma_i)^2 \sigma^2}{2}} \quad [\text{V.24}]$$

Dans l'approche choisie, une seule rugosité est appliquée à l'ensemble du champ électromagnétique. La supposition sous-jacente est donc que le profil de densité de charge électronique et le profil de répartition des moments magnétiques sont identiques, ce qui revient à supposer que chaque atome magnétique porte le même moment magnétique, en d'autres termes que les rugosités magnétique et chimique sont les mêmes. Ceci peut apparaître comme une limitation de la description puisque, par exemple, on ne peut pas directement prendre en compte des plans magnétiquement morts par une approche de ce type. Cependant, une astuce mathématique reste possible pour les modéliser. Il suffit d'introduire une couche supplémentaire aux interfaces formée des mêmes atomes mais pour laquelle le terme de réflectivité magnétique est nul, ou différent de sa valeur à l'intérieure de la couche. Une démarche similaire peut modéliser une variation continue des moments sur quelques plans, au prix d'une complexité du calcul matriciel.

J'ai mis au point un tel programme utilisant l'approche matricielle précédemment décrite. Il permet dans le cas Kerr transversal le calcul de la courbe de réflectivité angulaire à une énergie fixe et celle en fonction de l'énergie à angle de réflexion fixe. Les paramètres nécessaires au calcul sont :

- Les intensités σ et π du faisceau incident.
- L'ouverture angulaire du faisceau. Elle est introduite dans le calcul en considérant l'approximation simple suivante : l'intensité réfléchie pour un angle θ donné est calculée en θ , $\theta + \Delta\theta/2$ et $\theta - \Delta\theta/2$ où $\Delta\theta$ représente la divergence du faisceau. Ces 3 intensités sont pondérées par des poids 1, 1/2, 1/2 pour tenir compte de la forme du faisceau. L'intensité est donc finalement :

$$I'(\theta) = I(\theta - \Delta\theta / 2) / 2 + I(\theta) + I(\theta + \Delta\theta / 2) / 2$$

- les paramètres structuraux définissant chaque couche : la rugosité d'interface (σ en Å), l'épaisseur (t en Å), la densité atomique (en Å⁻³).
- les valeurs des facteurs de diffusion atomique dans une couche afin de calculer la constante diélectrique du milieu : parties réelle et imaginaire des facteurs de diffusion de charge et des facteurs de diffusion magnétiques.

5./ Constante diélectrique.

L'indice optique et la constante diélectrique rendent compte de la réponse macroscopique de l'interaction entre une onde électromagnétique et la matière. L'indice d'un milieu est le rapport des vitesses de l'onde dans ce milieu et dans le vide. Dans le cas des rayons X, la constante diélectrique est liée à l'interaction entre le photon X et les électrons. Les principes généraux pour son calcul sont décrits dans les livres classiques de James et de Compton-Allison [18, 19].

5.1./ Relation entre constante diélectrique et facteur de diffusion atomique

Dans un modèle classique, l'onde électromagnétique diffusée par un électron lié à un noyau par une force de rappel k_q (q caractérisant une fréquence propre de résonance $\omega_q = ck_q$) est produite par les oscillations forcées de celui-ci. Ces oscillations prennent la fréquence de l'onde

incidente, et l'électron diffuse donc une onde de même longueur d'onde que l'onde incidente (diffusion élastique).

Pour une onde incidente selon l'axe x , de fréquence suffisamment éloignée de celle du seuil d'absorption ω_q pour que l'électron puisse être considéré comme libre, l'équation décrivant le mouvement de l'électron s'écrit [18] en fonction de sa coordonnée s :

$$m\ddot{s} - \frac{2e^2\dot{s}}{3c^3} + \omega_q^2 ms = -eEe^{j(\omega t - kx)} \quad [V.25]$$

Avec :

- $k = \frac{2\pi}{\lambda}$: vecteur d'onde de l'onde incidente
- $-eEe^{j(\omega t - kx)}$: force exercée sur l'électron par la composante de champ électrique le long de la coordonnée s .
- $m\omega_q^2 = mk_q^2 c^2$: force de rappel de l'électron
- $\frac{2e^2\dot{s}}{3c^3}$: terme de freinage dû au rayonnement électromagnétique émis par l'électron accéléré (considéré comme une force de frottement).

Dans le régime de solution permanente, on cherche une solution $s(x,t)$ sous la forme d'une onde plane :

$$s(x,t) = \frac{-e}{m} \frac{Ee^{j(\omega t - kx)}}{\omega_q^2 - \omega^2 + j \frac{2e^2\omega^3}{3mc^2}} \quad [V.26]$$

Pour un électron libre, on aurait $s(t,x) = -\frac{e}{m\omega^2} E(x,t)$.

Le facteur de diffusion électronique f est défini comme étant le rapport entre l'amplitude diffusée par l'oscillateur et celle qui serait diffusée par un électron libre, donc par le rapport des amplitudes de déplacement s correspondants [19] :

$$f_q(\omega) = \frac{-\omega^2}{\omega_q^2 - \omega^2 + j \frac{e^2\omega^3}{3mc^2}} = \quad [V.27]$$

C'est donc une quantité complexe $f_q = f'_q + jf''_q$.

La polarisation du milieu est alors définie comme le moment électrique total par unité de volume :

$$P = -Ne \sum_q s_q = -N \frac{e^2}{mc^2} \left(\sum_q f_q \right) \frac{E}{k^2} = -N \frac{r_0}{k^2} Ef$$

où $r_0 = e^2/mc^2$ est le rayon classique de l'électron, N est le nombre d'atomes par unité de volume. En sommant sur toutes les fréquences ω_q et en tenant compte de la dégénérescence du niveau q de résonance possible, le facteur de diffusion total f est la somme de f_q sur tous les électrons q dans un atome. La constante diélectrique complexe $\epsilon(q)$ est définie par :

$$\epsilon = 1 - \epsilon_r - j\epsilon_i = 1 + 4\pi \frac{P}{E} = 1 - \frac{r_0 N \lambda^2}{\pi} f \quad [V.28]$$

où f est complexe, $f = Z + f' + jf''$.

Cette relation relie la constante diélectrique au facteur de diffusion atomique complexe f' et f'' . Elle permet également de retrouver l'expression classique de l'indice pour les rayons X que l'on note $n = 1 - \delta - j\beta$. En écrivant que $\epsilon = n^2$, et en remarquant, que la constante diélectrique et l'indice sont proche de 1, et donc que dans le cas des rayons X, δ et β sont faibles ($\sim 10^{-5}$ à 10^{-6} pour les X-durs, et 10^{-3} pour les X mous), il vient au premier ordre :

$$n^2 = \epsilon = 1 - 2\delta - 2j\beta = 1 - \epsilon_r - j\epsilon_i \quad [V.29]$$

Dans le cas où l'on se place près des seuils d'absorption, les valeurs de δ et β peuvent devenir importantes (les valeurs typiques pour δ et β pour du Si sont à $\lambda = 1.5418 \text{ \AA}$ ($K_\alpha \text{ Cu}$), $\delta = 3.73 \cdot 10^{-6}$, $\beta = 8.67 \cdot 10^{-6}$)

L'écriture classique de l'indice optique constitue donc une approximation valide pour le cas des rayons X.

Enfin, une dernière approximation souvent employée pour calculer la réflectivité des rayons X est de considérer que les réflexions pour les ondes σ et π ont les mêmes intensités aux petits angles [20]. Cette approximation, qui est beaucoup moins valable pour la réflectivité non magnétique des rayons X-mous du fait des angles importants, n'est plus fondée pour la réflectivité magnétique. Elle n'a donc pas été retenue dans la suite des calculs, puisque l'approche matricielle permet de tenir compte séparément des deux états de polarisation.

La constante diélectrique peut également être calculée à partir d'un modèle quantique. On considère alors l'interaction entre l'atome et le champ électromagnétique comme résultant d'une somme d'oscillateurs dont chaque fréquence correspond à la transition entre un état initial et un état final électroniques dans l'approximation à un électron [21]. L'état initial peut être considéré comme un état de la bande de valence (cas de l'optique visible), ou un état de coeur dans le cas des rayons X. Les règles de transitions dipolaires s'appliquent et l'expression analogue de l'équation [V.28] devient :

$$\epsilon^n = \frac{Ne^2}{m} \sum_a p_a \sum_b \frac{f_{ba}^n}{E_{ba}^2 - E^2 + j \left(\frac{\Gamma}{2} \right)^2} \quad [V.30]$$

où :
a et b : Etats initial et final de la transition
 Γ : Largeur de la résonance.
 $E_{ba} = E_b - E_a$: Energie de la transition de l'état initial a vers l'état final b.
 p_a : Probabilité pour que l'atome soit dans l'état a dans l'état initial.

f_{ab}^n sont les forces d'oscillateur pour la transition. $n=0$ caractérise la transition dipolaire induite par la lumière polarisée linéairement et $n=\pm 1$ celles en lumière circulaire. Comme pour le cas de la diffraction magnétique résonante, et du dichroïsme magnétique circulaire, f_{ab}^n est relié aux éléments de matrices décrivant la transition du photoélectron [10].

5.2 / Evaluation pratique du tenseur diélectrique

De manière pratique, les parties imaginaire et réelle des constantes diélectriques non magnétique ϵ et magnétique η sont directement reliées au signal d'absorption et de dichroïsme circulaire magnétique par les relations :

$$\epsilon = 1 - \epsilon_r - j\epsilon_i = 1 - \frac{Nr_0\lambda^2}{\pi} (Z + f' + jf'') \quad [V.32]$$

$$\eta = \eta_r + j\eta_i = -\frac{Nr_0\lambda^2}{\pi} (m' + jm'')$$

$$\begin{aligned} f'' &\propto \mu^+ + \mu^- = \text{Isotrope} \\ m'' &\propto \mu^+ - \mu^- = \text{XMCD} \end{aligned} \quad [V.33]$$

où f' et m' sont calculés à partir des valeurs de f'' et m'' en utilisant les relations de Kramers-Kronig.

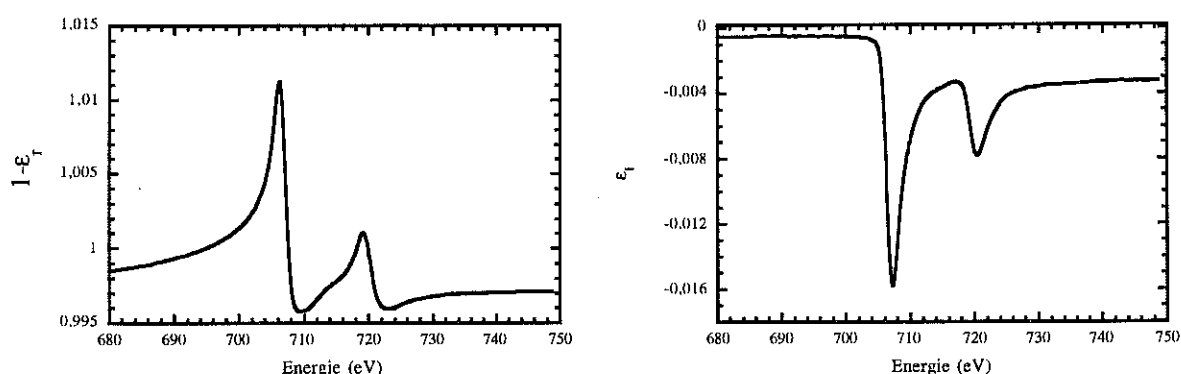


Figure 5.6 : Partie réelle (gauche) et imaginaire (droite) de la composante diagonale du tenseur diélectrique calculé aux seuils L_{II} et L_{III} du Fer

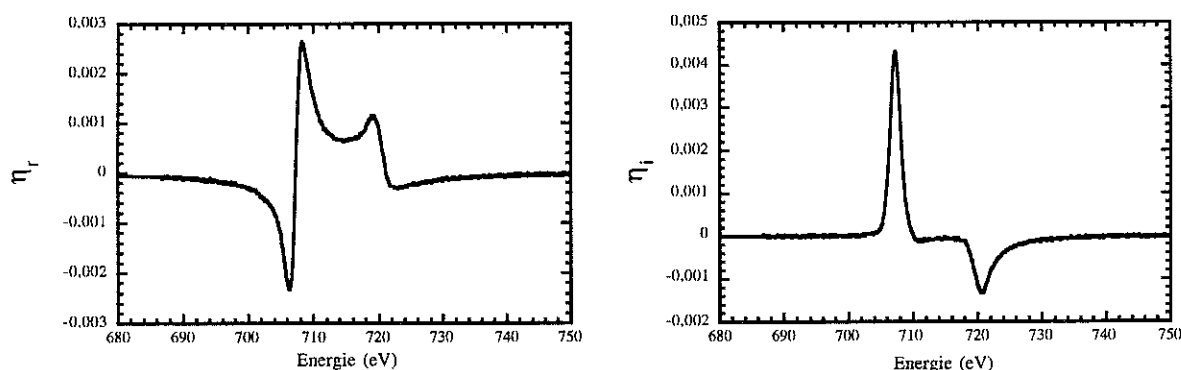


Figure 5.7 : Partie réelle (gauche) et imaginaire (droite) de la composante non diagonale du tenseur diélectrique calculé aux seuils L_{II} et L_{III} du Fer

Les figures 5.6 et 5.7 présentent les composantes diagonale et non diagonale du tenseur diélectrique, calculées pour du Fer, à partir du spectre d'absorption isotrope et du signal de dichroïsme mesuré pour du Fer [22, 23] en détection d'électrons en rendement total. Les procédures de calcul pour obtenir ces spectres à partir des données d'absorption sont les mêmes que celles décrites au chapitre III. Les spectres d'absorption isotrope et de dichroïsme sont transformés en facteurs imaginaires de diffusion, en utilisant le théorème optique. Les parties réelles du facteur de diffusion correspondant sont obtenues par transformation de Kramers-Kronig. La composante hors diagonale du tenseur diélectrique est finalement déphasée de $\pi/2$. Le signe de la composante imaginaire de la constante diélectrique, ainsi que celui de la partie réelle de la composante diagonale, dépendent des conventions choisies pour l'orientation de l'axe z (profondeur).

L'ordre de grandeur des valeurs obtenues pour les amplitudes des composantes réelle et imaginaire de la constante isotrope aux seuils L_{II} et L_{III} du Fer, où elles sont fortement résonantes, sont de l'ordre de quelques 10^{-2} . Elles sont intermédiaires entre les valeurs en X-durs qui sont de l'ordre de quelques 10^{-6} et des indices dans la gamme optique, de l'ordre de 3 à 4 pour des métaux de transition 3d.

6. / Echantillon "modèle" W/Fe/W.

Afin de valider l'approche matricielle précédemment décrite, nous avons effectué des mesures de réflectivité magnétique résonante des rayons X sur un échantillon multicouche modèle. Nous avons utilisé une tricouche $W_{(50 \text{ Å})}/Fe_{(70 \text{ Å})}/W_{(130 \text{ Å})}$, préparée par O. Fruchart au Laboratoire Louis Néel. Le dépôt a été effectué par ablation laser sur un substrat de saphir (Al_2O_3) et présente un axe de croissance [1-10] [24]. Les épaisseurs nominales ont été choisies de manière à produire des franges d'interférences dans le spectre de réflectivité. La nécessité d'utiliser une tricouche, plutôt qu'une bicouche Fe/W, provient du fait qu'il n'existe pas de diffractomètre sous vide permettant la croissance in-situ des échantillons dans la gamme des X-mous. Ceci nous a donc contraint d'utiliser un échantillon encapsulé par une couche de W pour protéger la couche de Fer sensible à l'oxydation. Cette couche supplémentaire, comme nous le verrons, conduit à augmenter beaucoup le nombre de paramètres déterminant le profil de réflexion et complique la simulation. Le Fer a été tout naturellement choisi pour cette étude test, parce qu'il présente un dichroïsme circulaire aux seuils L plus fort que les autres métaux 3d, en corrélation avec son fort moment magnétique. Aux seuils L_{II} et L_{III} , les effets magnéto-optiques X sont donc plus forts pour le Fer, ceci étant déjà mis en évidence par l'étude en diffraction présentée au chapitre III.

6.1 / Mesures de réflectivité magnétique

Les expériences ont été réalisées sur la station U4B (ligne Dragon) au NSLS (Brookhaven), déjà décrite au chapitre III. La résolution en énergie est de 0.5 eV au seuil L_{III} du Fer. Le détecteur utilisé au cours de ces expériences est une photodiode située derrière une paire de fentes définissant une ouverture de 1° . Elle présente l'avantage sur les compteurs proportionnels à gaz d'avoir un taux de comptage linéaire à de forts flux. Il faut par contre tenir compte de son courant d'obscurité.

Les mesures ont été réalisées pour les deux géométries, transverse et longitudinale afin de fournir un élément de comparaison quant à l'amplitude des effets observables (seule la première

ayant été simulée quantitativement). Dans le cas de la géométrie transverse, une bobine de type Bitter constituée par des plaques de cuivre est montée autour de l'échantillon de manière à produire un champ magnétique vertical pouvant atteindre 1400 Gauss. Dans le cas de la géométrie longitudinale une autre bobine, formée par un enroulement de fil de cuivre autour d'une âme en Fer doux permet d'appliquer un champ magnétique de 400 Gauss dans l'axe du faisceau.

L'échantillon est orienté de manière à présenter l'axe [110], axe de facile aimantation selon la direction perpendiculaire au plan de réflexion dans le cas transverse, et dans le plan de réflexion pour le cas longitudinal. Afin de vérifier l'état de saturation magnétique de la couche, nous avons effectué des mesures d'hystérésis sélective [25], en réflectivité magnétique, montrées sur la figure 5.8 pour les deux géométries de réflexion. Elles sont obtenues en enregistrant l'intensité diffractée en fonction du champ magnétique appliqué.

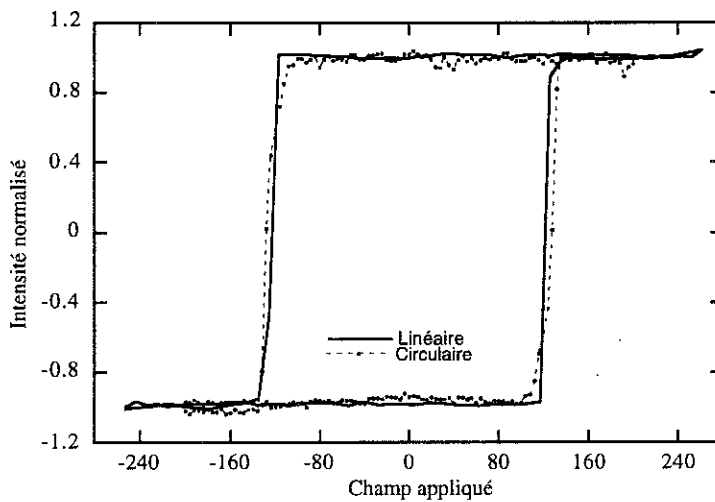


Figure 5.8 : Cycle d'hystérésis mesuré à un angle de 10° et à 707.4 eV
(au seuil L_{III} du Fer) pour une polarisation linéaire (géométrie transverse) et pour une polarisation circulaire (géométrie longitudinale)

Dans le cas de la réflectivité magnétique, dans la gamme des rayons X, le terme d'interférence entre réflectivité magnétique et non magnétique supprime toute proportionnalité directe entre le signal magnétique mesuré et l'aimantation du matériau. Aucune relation simple ne peut à priori être donnée. Cependant, la mesure du champ coercitif reste valable comme le montre la coïncidence des divers cycles d'hystérésis mesurés à différents angles en géométrie transverse montrés dans la figure 5.9. Une mesure de champ coercitif de 240 Oe dans ce cas, se compare bien avec les mesures d'aimantation (250 Oe). La forme carrée des cycles est représentative de domaines dont l'aimantation tourne simultanément. La mesure du cycle

d'hystérésis à différents angles d'incidence permet également de s'assurer de l'homogénéité de la couche dans le processus de renversement de l'aimantation.

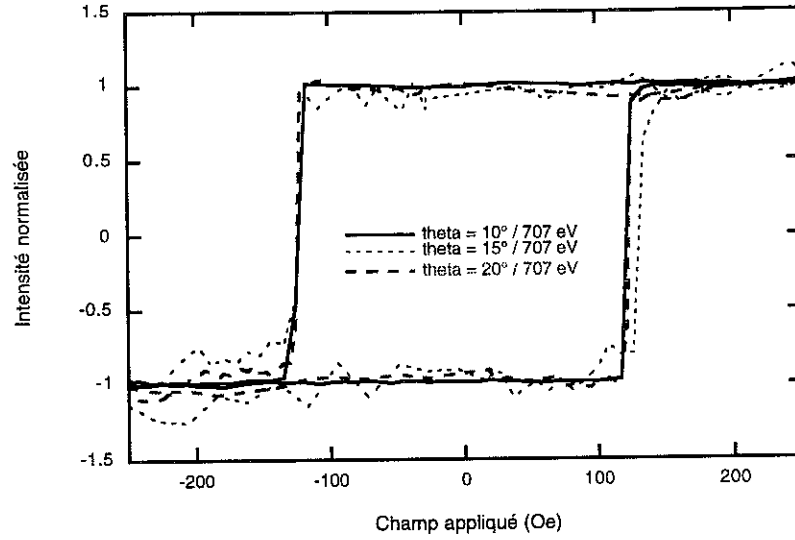


Figure 5.9 : Courbe d'hystérésis à différents angles d'incidence (angle entre le faisceau et la surface) pour la tricoche W/Fe/W

Pour un échantillon donné, le rapport du signal XMCD à celui de l'absorption isotrope pour un élément donné est proportionnel à son moment magnétique. Ce rapport correspond au rapport des composante imaginaire diagonales et hors diagonales du tenseur diélectrique η_i / ϵ_i . Lorsque l'amplitude de la composante hors diagonale du tenseur diélectrique est faible devant celle du terme diagonal, pour une géométrie Kerr transverse et pour une surface libre, les changements de l'intensité réfléchie suivant la direction de l'aimantation s'écrivent au premier ordre en utilisant le rapport d'asymétrie $R_a = (I^+ - I^-) / (I^+ + I^-)$:

$$R_a = 2 \sin 2\theta_0 \frac{C\eta_r + D\eta_i}{C^2 + D^2} \quad [V.32]$$

$$\begin{aligned} C &= \epsilon_i (2\epsilon_r \cos^2 \theta_0 - 1) \\ D &= ((\epsilon_i)^2 - (\epsilon_r)^2) \cos^2 \theta_0 + (\epsilon_r / \sin^2 \theta_0) \end{aligned} \quad [V.33]$$

θ_0 est ici l'angle d'incidence défini par rapport à la normale. Cette variation de pouvoir réflecteur est proportionnelle à l'aimantation du matériau, et change évidemment de signe suivant sa direction.

Les figures 5.10 et 5.11 présentent les mesures de réflectivité effectuées en fonction de l'énergie (à un angle d'incidence fixe de 5°), et en fonction de l'angle d'incidence (à une énergie de 703.2 eV). On retrouve bien sur la figure 5.10 les deux résonances L_{III} et L_{II} du Fer, avec une inversion de signe entre les deux seuils.

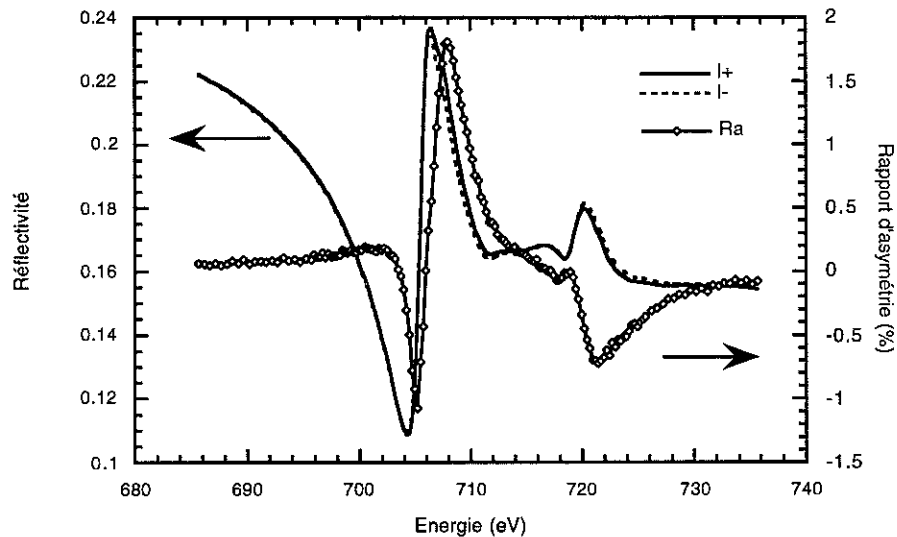


Figure 5.10 : Mesure de réflectivité magnétique en fonction de l'énergie à un angle d'incidence de 5° , au seuil L_{II} et L_{III} du Fer.

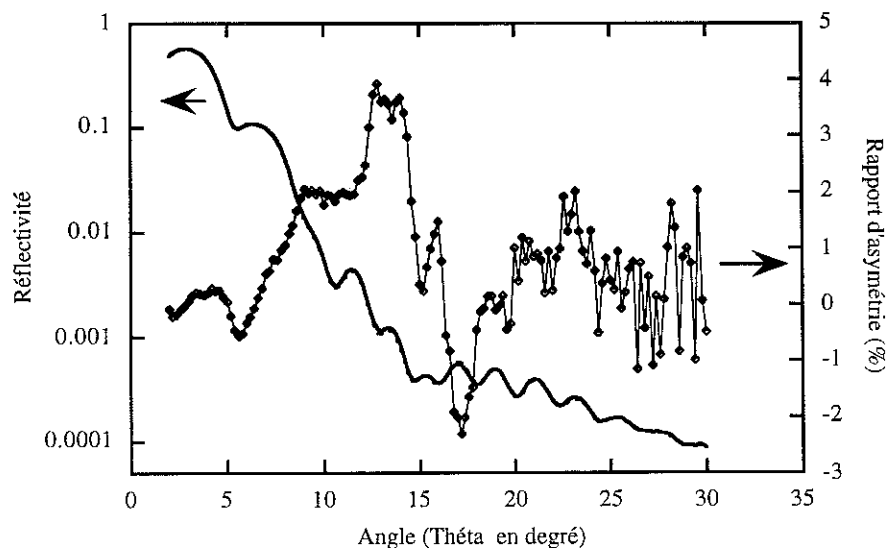


Figure 5.11 : Mesure de réflectivité magnétique résonante en fonction de l'angle d'incidence à 703.2 eV (énergie inférieure au seuil L_{III} du Fer)

Dans cette géométrie transverse, les amplitudes d'asymétrie observées pour différents angles d'incidences sont typiquement de l'ordre de quelques pourcents (5-15%), à comparer aux rapports d'asymétrie nettement plus importants observés dans le cas de la diffraction de Bragg par une multicouche Ag/NiFe (effets d'interférences). Elles sont cependant plus fortes par deux ordres de grandeur que les amplitudes typique pour l'effet Kerr dans le visible (de l'ordre de 0.1% pour du Ni). Des mesures effectuées en polarisation circulaire, pour comparaison, donnent des amplitudes d'asymétrie plus fortes de 25 % pour un angle d'incidence de 5° et montrent des structures très prononcées (figure 5.12).

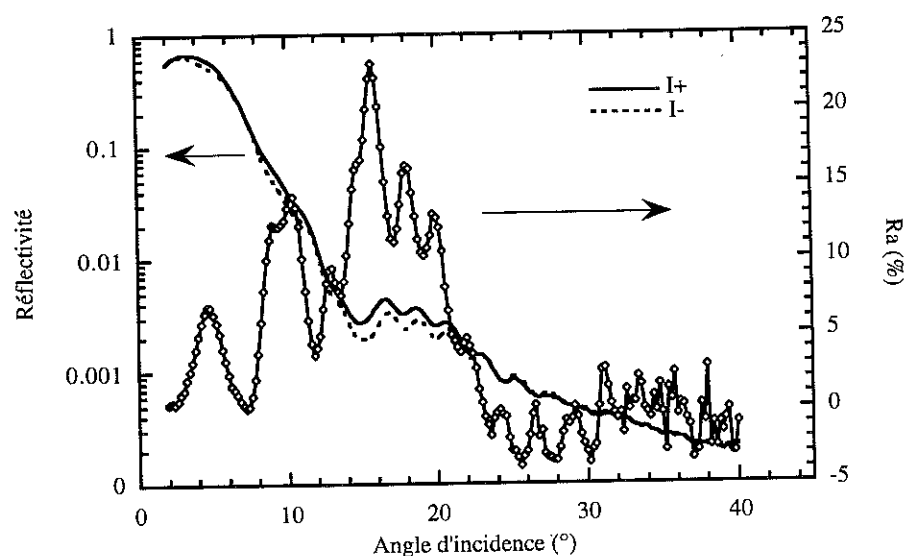


Figure 5.12 : Mesure de réflectivité magnétique résonante en géométrie longitudinale (polarisation elliptique) en fonction de l'angle d'incidence à 706.7 eV

6.2 / Description structurale de la tricouche

Afin d'obtenir les paramètres structuraux caractérisant cette couche W/Fe/W, nécessaire au calcul du rapport d'asymétrie, nous avons réalisé une expérience de réflectivité X classique en X durs. Cette mesure nous permet de déterminer les épaisseurs et densité de chaque couche, ainsi que les rugosités d'interface en affinant la dépendance angulaire de la réflectivité, à l'aide du programme disponible au laboratoire et qui a été écrit par G. Patrat. Elle fournit également un test pour valider le programme que nous avons écrit sur la base de l'approche matricielle.

La mesure a été effectuée sur un goniomètre 2-cercles équipé de fentes de 40 μm en entrée et de 20 μm devant le détecteur, ce qui donne une résolution angulaire de 0.01° . La radiation $K\alpha$

du cuivre ($\lambda=1.5418 \text{ \AA}$) produite par un tube à rayons X a été utilisée, après filtrage par une feuille de Ni. La détection est effectuée par un compteur à scintillation NaI.

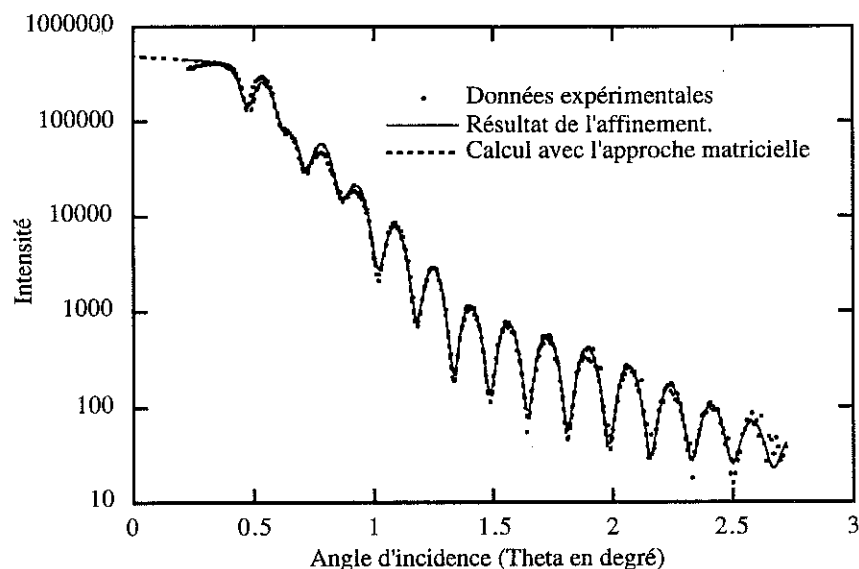


Figure 5.13 : Comparaison entre les données expérimentales de réflectivité, le résultat de l'affinement des paramètres structuraux et le calcul dans l'approche matricielle en utilisant les valeurs affinées des paramètres.

La figure 5.13 présente les résultats de l'affinement de la courbe de réflectivité effectué au moyen du programme d'affinement classique de Patrat. La divergence angulaire du faisceau est affinée à 0.02° . Le tableau V.1 donne les valeurs des paramètres affinés. La comparaison du résultat de l'affinement avec un calcul effectué à partir de l'approche matricielle, utilisant les paramètres du tableau V.1, en ne tenant compte que de la partie isotrope du tenseur diélectrique (contribution classique) est excellente comme le montre la figure 5.13.

$\lambda=1.5418 \text{ \AA}$	W	Fe	W	Al_2O_3
Epaisseur (Å)	32.3	91.5	129.1	∞
Rugosité (Å)	4.6	7.1	12.1	0.8
Densité ($\text{\AA}^{-3}$)	0.07189	0.0888	0.0625	0.083
Z (électrons)	74	26	74	10
f' (électrons)	-5.4	-1.11	-5.4	0.140
f'' (électrons)	5.73	3.19	5.73	0.117

Tableau V.1 : Valeurs des différents paramètres introduits et résultant de l'affinement. (les valeurs en gras sont affinées)

L'affinement de la courbe de réflectivité donne des valeurs des épaisseurs de la couche de Fer et de la couche de protection nettement différentes des valeurs nominales (respectivement 70 et 50 Å). On note également des valeurs relativement fortes pour les rugosités à chaque interface. Celles-ci ont tendance à faire disparaître dans le spectre de réflectivité les franges d'interférences dues à l'épaisseur de la couche de Fer. On notera ici la différence de comportement des courbes de réflectivité mesurées pour la radiation $K_{\alpha}\text{Cu}$ et celle pour le seuil L_{III} du Fer : le battement présent à 15° dans la figure 5.11 (à $q = 0.184 \text{ \AA}^{-1}$, soit pour une épaisseur de 34 Å correspondant à la couche encapsulante de W), est à peine perceptible à $\theta = 1.29^\circ$ dans le spectre mesuré à $\lambda = 1.5418 \text{ \AA}$, qui est beaucoup moins sensible à la couche de surface du fait d'une absorption moins forte des X. La relation donnant l'épaisseur e d'une couche en fonction de la période des interférences (franges de Kiessig) exprimée en angle $\Delta\alpha$ est en effet donnée par :

$$e = \frac{\lambda}{2\Delta\alpha \cos(\alpha)}$$

Dans la figure 5.11, le rapport d'asymétrie magnétique fait apparaître les différentes interférences dues aux différentes couches. Une structure très intense est présente à environ 15° , et est reliée à l'épaisseur de la couche de surface de W. Un autre battement qui se produit avec une période d'environ 5.5° et surtout visible aux faibles angles, est relié à l'épaisseur de la couche de Fer puisqu'il correspond à une épaisseur de 92 Å. Enfin à plus grand angle apparaît une interférence de période 2° provenant de l'épaisseur totale de l'échantillon (253 Å).

Un deuxième test du programme a été obtenu en simulant des spectres de réflectivité aux seuils L du Ni en polarisation circulaire publiés par M. Sacchi *et al* [8], pour la surface d'un cristal de Ni orienté (110). Nous n'avons conservé que la partie isotrope non magnétique de la réflectivité : aux petits angles de réflexion, la réflectivité non magnétique en polarisation circulaire et linéaire sont très semblables. Nous avons donc essayé de simuler la mesure en polarisation circulaire par notre programme développé pour la géométrie transverse en polarisation linéaire. La comparaison montrée sur la figure 5.13 est satisfaisante, compte tenu des différences de géométrie entre les conditions expérimentales lors de la mesure, et le modèle inclus dans le calcul. Le calcul reproduit bien les structures fines observées dans les spectres expérimentaux (la structure à +6 eV du seuil L_{III} est bien mise en évidence).

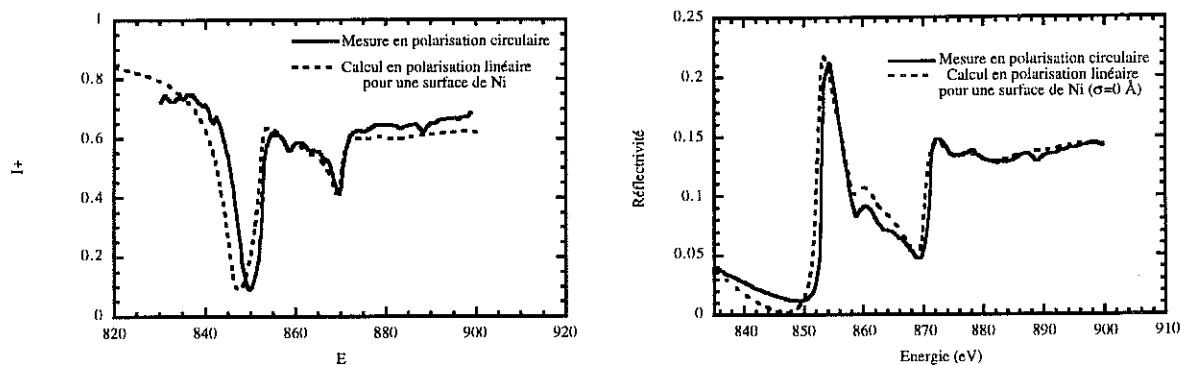


Figure 5.14 : Mesure et calcul en polarisation linéaire et en polarisation circulaire de la réflectivité isotrope aux seuils L_{II} et L_{III} de Ni pour un cristal de Ni orienté (110) pour un angle de 0.9° (figure de gauche) et 2.8° (figure de droite).

6.3 / Calcul de réflectivité magnétique

L'utilisation de l'approche matricielle précédemment décrite permet de calculer les spectres de réflectivité, à la fois en énergie (pour un angle donné) et en angle (pour une énergie donnée). L'utilisation des paramètres structuraux affinés en X-durs à la longueur d'onde du Cuivre, ne permet pas de reproduire correctement les courbes mesurées pour différents angles. Cette étude n'étant qu'au stade de développement, nous n'avons pas eu le temps de mettre au point une procédure d'affinement des paramètres. Celle-ci s'avère d'ailleurs quelque peu complexe comme il en sera discuté ci-dessous. Nous avons donc procédé par essai et erreur au voisinage des valeurs des paramètres affinés en X-durs, pour évaluer les valeurs des paramètres permettant de rendre compte au mieux des résultats expérimentaux. Les figures 5.15 et 5.16 présentent donc les résultats de ces "affinements manuels".

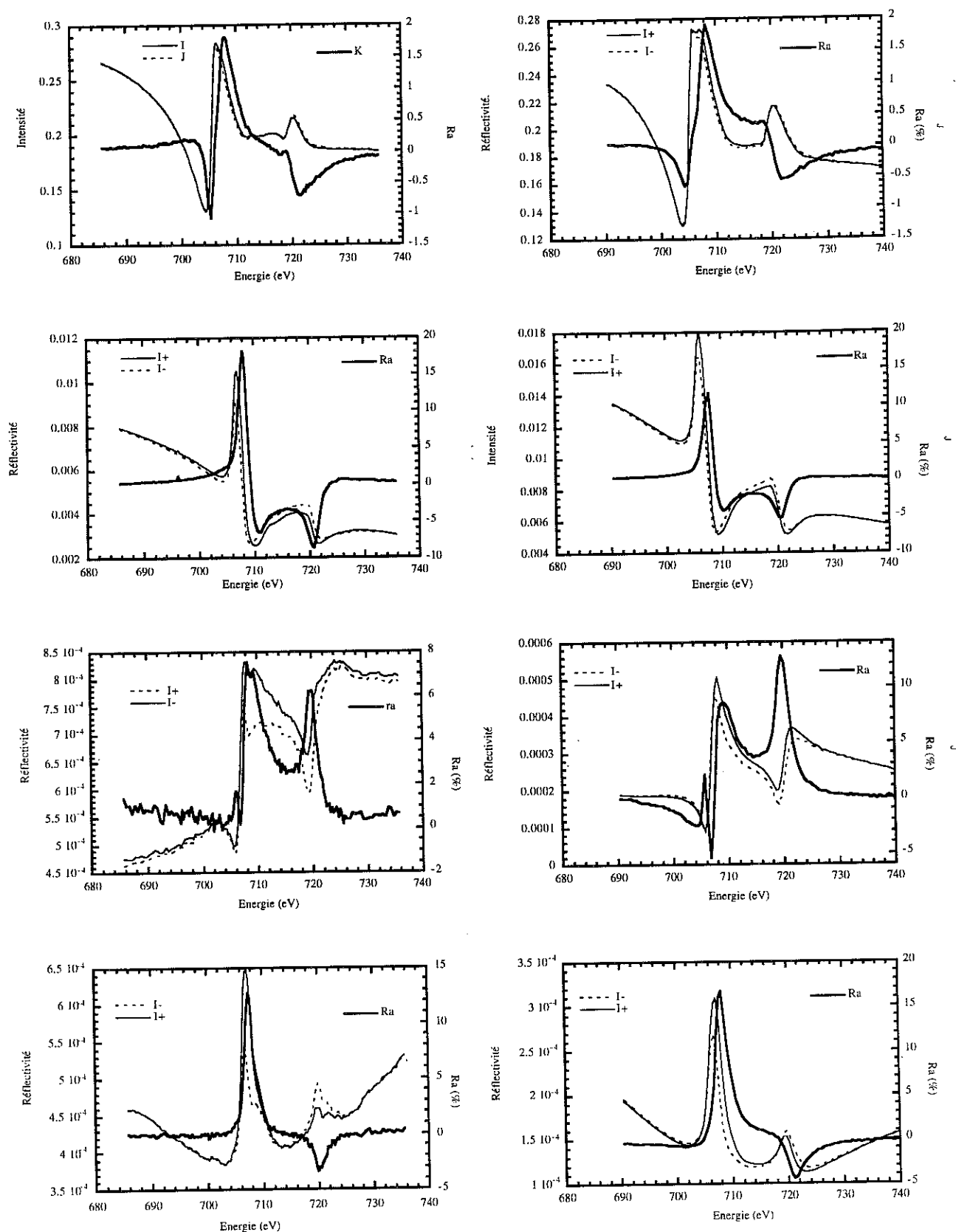


Figure 5.15 : Spectres expérimentaux, I^+ , I^- et rapport d'asymétrie (gauche) et calculé (droite) de réflectivité magnétique résonante au seuil L_{III} et L_{II} du Fer dans $W/Fe(110)/W$ en fonction de l'énergie, et pour différents angles d'incidence (5°, 10°, 15°, 20° de haut en bas)

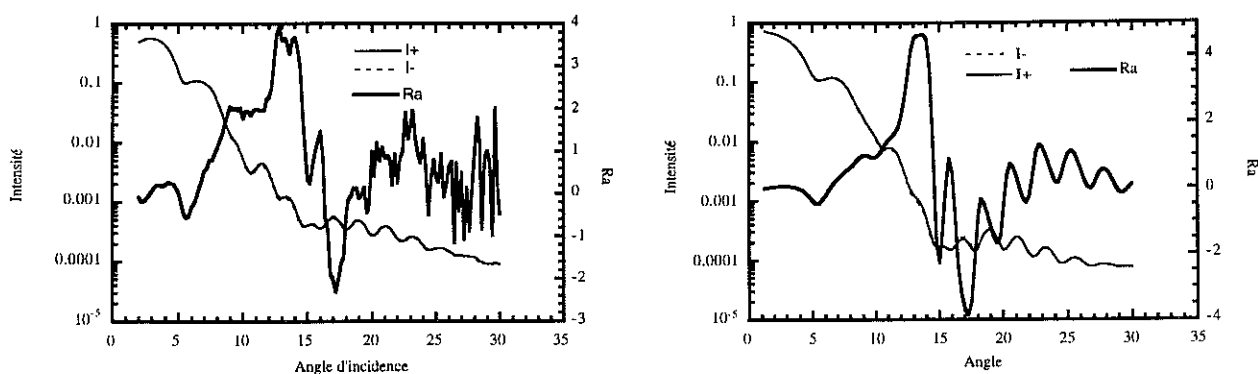


Figure 5.16 : Mesure et calcul de réflectivité magnétique résonante en fonction de l'angle à 703.2 eV

Les paramètres structuraux utilisés pour le calcul de ces spectres de réflectivité sont rassemblés dans le tableau V.2. Ils sont néanmoins proches des valeurs affinées en X-dur données au tableau V.1. Les épaisseur de la couche de Fer et de la couche de protection en W sont respectivement diminuée et augmentée de quelques Å par rapports aux épaisseurs affinées en X-dur.

	W	Fe	W	Al ₂ O ₃
Epaisseur (Å)	34.3	95.5	129.1	
Rugosité (Å)	5.6	6.1	12.1	0.8
Densité (Å ⁻³)	0.07189	0.0888	0.0625	

Tableau V.2 : Valeurs des différents paramètres introduits dans le calcul.
(les valeurs en gras sont affinées)

La comparaison des spectres ainsi que des différents calculs effectués nous conduisent aux conclusions suivantes :

- Les courbes en fonction de l'énergie sont globalement bien reproduites dans leur forme et pour leur amplitude. Ceci implique que les constantes magnéto-optiques introduites dans le calcul à partir des spectres XMCD du Fer massif bcc, sont valides. Ceci confirme que le moment magnétique porté par le Fer dans cette couche W/Fe/W est bien, comme attendu, de 2.2 μ B. On notera cependant une plus grande différence entre mesure et simulation pour la courbe à 15°, ce qui n'est pas très surprenant car cet angle correspondant au minimum d'une frange d'interférence très

intense due à la couche supérieure de W, et est donc particulièrement sensible à la structure.

- La réflectivité magnétique résonante s'avère être extrêmement résonante! Les paramètres les plus influents pour la simulation des structures résonantes sont : l'épaisseur de la couche magnétique (à 1 Å près), l'épaisseur de la couche supérieure en W (également à 1 Å), les rugosités d'interfaces. La calibration en énergie est également un paramètre critique, puisqu'un décalage de 0.1 eV peut induire de profondes modifications du spectre de réflectivité, notamment au seuil L_{III} .
- Les paramètres affinés en X-durs ne sont pas directement transposables dans la gamme des X-mous, bien que leur valeurs soient très voisines. Les explications possibles sont diverses. Les rugosités peuvent être différentes pour un même échantillon à des longueurs d'onde très différentes. Il se peut aussi que l'échantillon présente des inhomogénéités spatiales et que les zones irradiées soient différentes pour les deux expériences. Le réflectomètre que nous avons utilisé à Brookhaven ne permettait pas de faire varier les fentes d'entrée et de sortie. La fente d'entrée pouvait être choisie entre 0.5 et 2 mm. Ceci conduit à une coupure aux bas angles (faisceau plus large que l'échantillon), et à une zone éclairée large aux grands angles ce qui est plutôt défavorable dans le cas d'inhomogénéités spatiales fortes.
- La forme des résonances magnétiques mesurées à différents angles présente des caractéristiques variées. On note à 15° une résonance positive, à la fois pour le seuil L_{III} et le seuil L_{II} , contrairement à l'inversion du signe de dichroïsme circulaire entre les deux seuils.

7 / Echantillon Ir/FeMn/Ir

Un autre échantillon a été également étudié, à savoir une couche mince Ir/Fe_{90%}Mn_{10%}/Ir déposée sur un substrat de MgO, et orientée selon la direction (001). L'alliage Fe_{0.9}Mn_{0.1} est supposé chimiquement désordonné. L'étude des propriétés magnétiques d'un tel échantillon est rattachée à celle plus large des propriétés structurales et magnétiques de superréseaux constitués de couches d'Ir et d'alliage Fe_xMn_{1-x}, étudiés par l'équipe de H. Fischer au Laboratoire CNRS-LMPSM (Laboratoire de Métallurgie Physique et Science des Matériaux) de Nancy. L'objectif est d'essayer de stabiliser des phases métastables par épitaxie et en particulier d'essayer d'obtenir ainsi des alliages avec des propriétés magnétiques particulières. La discussion des propriétés structurales et magnétiques de ces superréseaux fait en outre l'objet d'une thèse au Laboratoire de Cristallographie (A. Barbara-Déchelette) [26].

A l'état massif, les alliages $\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}$ sont antiferromagnétiques à toute concentration [27]. En couches ultra minces déposées par épitaxie sur Ir dans des superréseaux $\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}/\text{Ir}$, on observe une transition pour $x=70\%$ environ, d'un état ferromagnétique aux concentrations riches en fer, vers un état antiferromagnétiques pour des alliages riche en Manganèse. Cette transition magnétique s'accompagne d'une transition structurale avec distortion du rapport c/a dans la structure bct. Une des questions posées est celle du rôle du manganèse dans de tels alliages épitaxiés. Porte t-il un moment et se couple t-il parallèlement ou antiparallèlement à celui du Fer ?

7.1./ Paramètres structuraux

Les paramètres structuraux sont déterminés à partir d'un affinement de la courbe de réflectivité mesuré à 11 keV sur la ligne D2AM - ESRF. Les paramètres sont donnés dans le tableau V.3.

	Ir	FeMn	Ir
Epaisseur (Å)	32	30.6	334.7
Rugosité (Å)	1.4	2.3	1
Densité ($\text{\AA}^{-3}$)	0.0708	0.0847	0.0708

Tableau V.3 : Valeurs des différents paramètres de structure affinés à 11 keV.

Les paramètres structuraux utilisés pour le calcul des spectres montrés sur les figures 5.17, 5.18 et 5.19 sont légèrement différent de ceux du tableau V.3 : une épaisseur de 32.5 Å pour l'Ir de la première couche et une de 31Å pour la couche de FeMn ont été utilisée. Les différences sont cependant beaucoup plus faibles que dans le cas de la tricouche W/Fe/W.

7.2./ Simulations des courbes de réflectivité magnétique au seuil L du Fer

Afin de simuler les courbes de réflectivité dans le cas d'un alliage il faut introduire un atome moyen, dont les caractéristiques sont calculées en moyennant celles de chacun des constituants en fonction des concentrations. Ceci est surtout nécessaire pour pouvoir définir une constante diélectrique moyenne. Celle-ci est calculé à partir des constantes individuelles (pour les parties magnétique et non-magnétique), en les pondérant de la concentration dans l'alliage. Nous utilisons pour cela les spectres d'absorption du Fer massif bcc et leur dichroïsme

circulaire mesuré aux seuils L (cf chapitre III). Pour le Manganèse et l'Iridium, nous utilisons les tables de Henke.

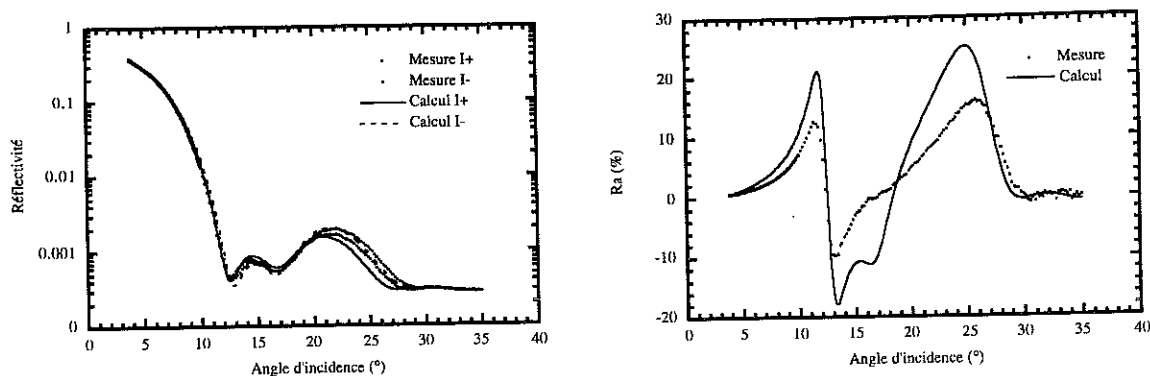


Figure 5.17 : Comparaison entre mesure et simulation pour la dépendance angulaire de la réflectivité magnétique et du rapport d'asymétrie au seuil L_{III} de Fe (à 707.1 eV) pour une tricoche Ir/Fe_{0.9}Mn_{0.1}/Ir

La figure 5.17 présente la comparaison entre simulation et données expérimentales pour la dépendance angulaire de la réflectivité en fonction de l'angle d'incidence. La forme générale du rapport d'asymétrie et son ordre de grandeur sont bien simulés. Les figures 5.18 et 5.19 comparent les dépendances en énergie pour des angles d'incidence de 5° et 26°.

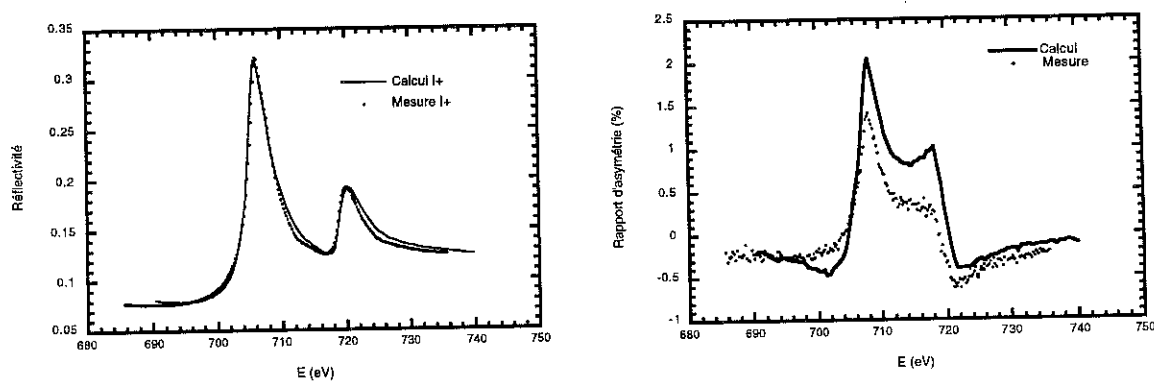


Figure 5.18 : Réflectivités (figure de gauche) et rapport d'asymétrie (figure de droite) en fonction de l'énergie pour un angle d'incidence de 5° au seuil L_{III} et L_{II} de Fe pour une tricoche Ir/Fe_{0.9}Mn_{0.1}/Ir

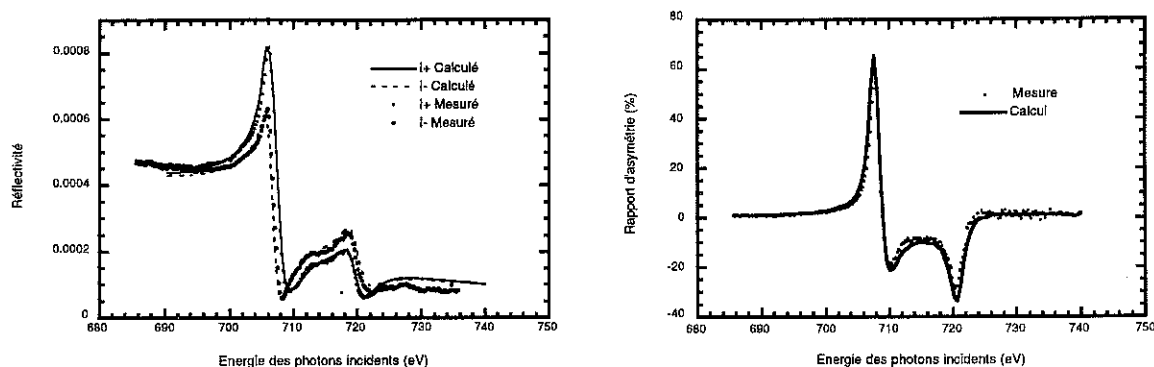


Figure 5.19 : Réflectivités (figure de gauche) et rapport d'asymétrie (figure de droite) en fonction de l'énergie pour un angle d'incidence de 26° au seuil L_{III} et L_{II} de Fe pour une tricoche $Ir/Fe_{0.9}Mn_{0.1}/Ir$

Un accord qualitatif satisfaisant est obtenu pour la forme et l'amplitude, à la fois pour la partie isotrope et pour le rapport d'asymétrie. Ceci permet de conclure que le Fer porte un moment de l'ordre de $2 \mu_B$ pour ce qui est du moment 3d, puisque les simulations ont été calculées en utilisant le signal XMCD du Fer massif.

7.3./ Mesure au seuil du Mn

Les mesures de réflectivité magnétique aux seuils L de Mn ont montré que pour cette couche mince, le Manganèse porte un moment magnétique résultant non nul. Une mesure de réflectivité à 20° aux seuils de Mn (638.7 eV pour le seuil L_{III} , et 649.9 eV pour le seuil L_{II}) montre un rapport d'asymétrie de l'ordre de 1% à comparer aux 10% donné par le signal au seuil du Fer au même angle, avec une forme similaire (cf figure 5.20).

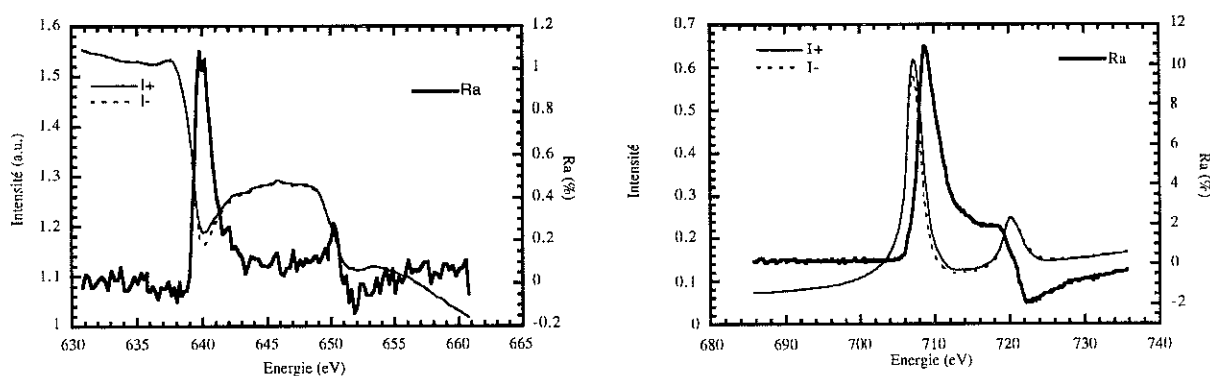


Figure 5.20 : Comparaison entre la réflectivité magnétique résonante aux seuils L_{II} et L_{III} de Fe et Mn dans un échantillon tricoche $Ir/Fe_{0.9}Mn_{0.12}/Ir$ déposé sur un substrat de MgO pour un angle d'incidence de 20° .

Seuils de Mn : figure de gauche, seuils de Fe : figure de droite.

La mesure d'un rapport d'asymétrie non nul au seuil de Mn permet de conclure rapidement que la résultante de l'aimantation des atomes de Mn est non nulle. Le signe du rapport d'asymétrie - qui est le même que celui pour le Fer - pourrait conduire à conclure à un couplage ferromagnétique des ions Mn avec ceux de la matrice de Fer. Une estimation très grossière du moment sur Mn peut être donnée en comparant les amplitudes d'asymétrie aux seuils L de Mn et à ceux de Fe. On obtient ainsi en appliquant une proportionnalité entre l'amplitude du rapport d'asymétrie et le moment, et en tenant compte des concentrations respectives (88% pour le Fer et 12 % pour le Mn), un moment de l'ordre de $2 \mu_B$. Cette valeur est cependant à prendre avec précaution puisqu'une comparaison directe des rapports d'asymétrie ne permet pas de donner avec précision la valeur d'un moment magnétique. Une valeur forte pour le moment magnétique porté par Mn ($\sim 2 \mu_B$) a cependant été observée pour une monocouche de Mn épitaxiée sur du Fer (001), avec une orientation parallèle à celui de Fer [28]. La simulation des spectres de réflectivité aux seuils L de Mn et L de Fe en fonction de l'énergie, pour un angle d'incidence de 20 degrés, montrant un bon accord avec les mesures, conduit à la conclusion que les ions Mn portent un moment net de l'ordre de $1.7 \mu_B$ orienté antiparallèlement à celui porté par les ions Fe, de $2.1 \mu_B$.

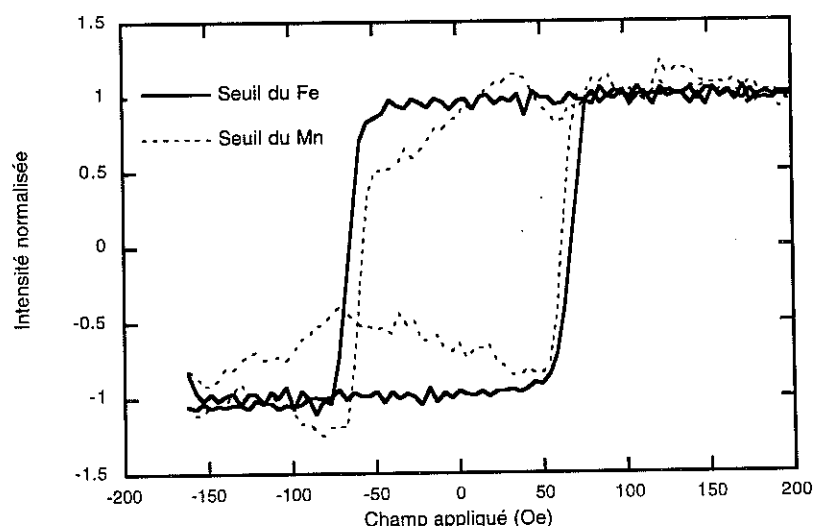


Figure 5.21 : Mesure d'hystérésis sélective au seuil L_{III} de Fe (à 707 eV) et L_{III} de Mn (à 638 eV) pour un angle d'incidence de 20° .

La mesure de cycles d'hystérésis sélectifs peut facilement être mise en oeuvre dans une telle expérience. La figure 5.21 présente les cycles d'hystérésis aux seuils L_{III} de Fe et Mn pour la couche mince $\text{Ir/Fe}_{0.9}\text{Mn}_{0.1}/\text{Ir}$, et pour un angle d'incidence de 20° . La courbe d'hystérésis au seuil de Fe présente une forme typique d'un matériau magnétique doux, avec un champ coercitif de 67 Oe. La courbe d'hystérésis obtenue au seuil de Mn présente des irrégularités dont la

stabilité a été testée plusieurs fois, et dont l'origine n'est pas comprise à l'heure actuelle. Il est donc malaisé d'attribuer une origine à ces structures : elles peuvent provenir d'un phénomène physique réel, ou bien résulter d'effets d'interférences. Le champ coercitif pour le Mn et pour le Fe est le même (aux incertitudes près de la mesure) : les aimantations portées par chacun des éléments suivent donc le champ appliqué de la même manière.

8. / Discussion

8.1./ Nature des informations accessibles en géométrie transverse

Dans ce paragraphe nous montrons la simulation de diverses courbes de réflectivité magnétique résonante des rayons X afin de quantifier certains effets et de discuter les possibilités offertes par l'utilisation de cette technique

La détermination des couplages antiferromagnétiques dans les tricouches est importante pour comprendre les propriétés vanne de spin dans les structures artificielles. Il est notamment essentiel de déterminer quelle est la couche dont l'aimantation "tourne" lorsqu'on renverse le champ magnétique appliqué. Afin de savoir si cette information peut être obtenue par une mesure de réflectivité magnétique, nous avons simulé diverses situations. Nous avons choisi arbitrairement un échantillon tricouche de structure $\text{Fe}_{30\text{\AA}}/\text{W}_{35\text{\AA}}/\text{Fe}_{30\text{\AA}}$. Trois cas sont envisagés (voir figure 5.22) :

- les aimantations des deux couches de Fe sont couplées ferromagnétiquement
- l'aimantation de la première couche de Fe est renversée
- l'aimantation de la deuxième couche de Fe est renversée

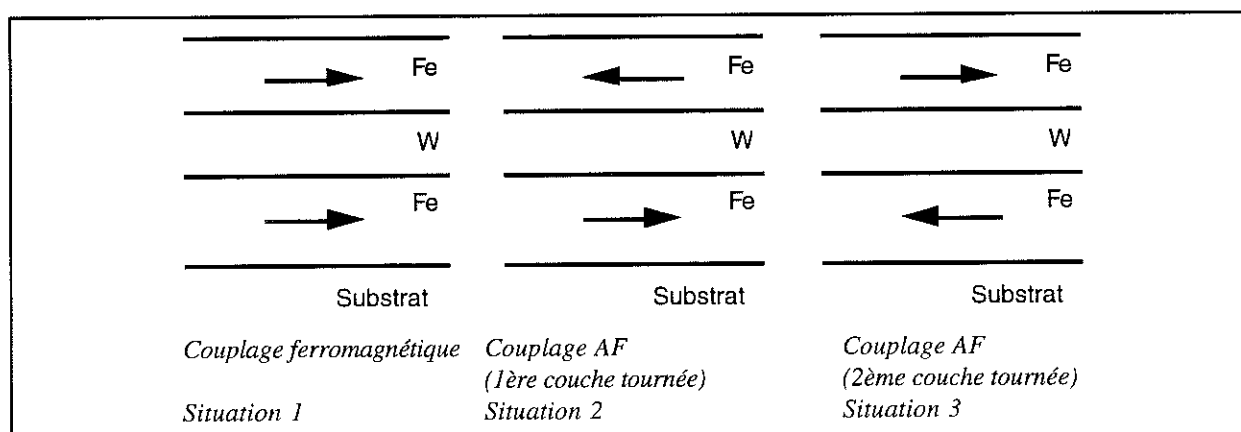


Figure 5.22 : Modèle pour l'orientation de l'aimantation des différentes couches de Fe pour une tricouche modèle Fe/W/Fe

Le résultat des calculs de réflectivité en géométrie transverse pour les trois cas envisagés (situation 1,2,3) est présenté sur la figure 5.23. Le taux de polarisation linéaire est de 1.

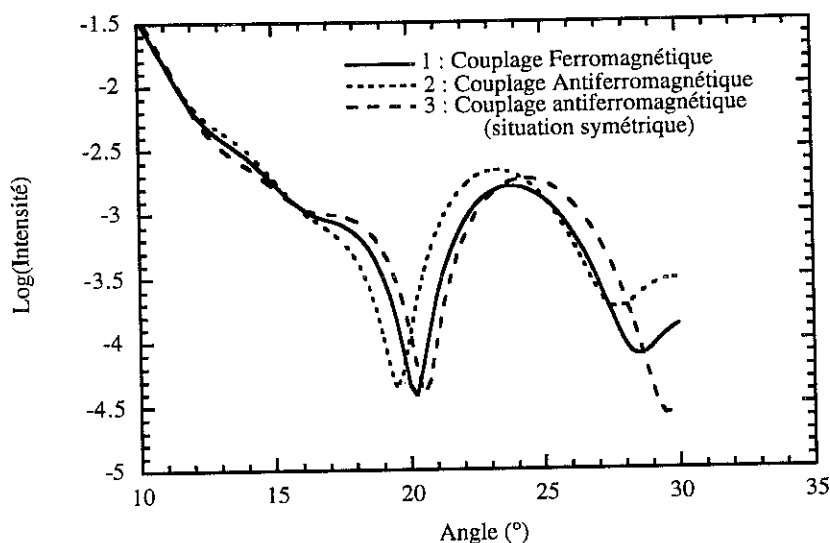


Figure 5.23 : Spectre de réflectivité d'une couche Fe/W/Fe pour différentes orientations de l'aimantation des deux couches de Fer et pour une énergie de photon incident de 707 eV.

Les différences principales entre les trois cas envisagées apparaissent aux plus grands angles de réflexion. L'effet principale est le décalage des franges d'interférence présentes autour de 20° et 30°. Bien que les différences pour l'intensité réfléchie soient faibles pour les différents cas envisagés, la détermination de la position d'une frange d'interférence apparaît plus précise. Nous n'avons cependant pas inclus dans le calcul la rugosité interfaciales qui ont tendance à amortir les franges d'interférences.

Une autre simulation effectuée vise à quantifier l'effet de la présence de plan magnétiquement inertes aux interfaces. La structure choisie est constituée d'une tricouche $W_{5\text{\AA}}/Fe_{30\text{\AA}}/W_{35\text{\AA}}$. Deux cas ont été simulés :

- la couche de Fer ne présente pas de plan magnétiquement mort
- la couche de Fe présente une épaisseur de 2Å magnétiquement inerte à chaque interface avec le W.

Dans ces deux cas l'aimantation de la couche de Fer est dans la même direction.

Les résultats sont présentés sur la figure 5.22. Les différences observées pour les deux cas sont faibles ce qui contraste fortement avec le cas de la multicouche Cu/Co présenté au chapitre III.

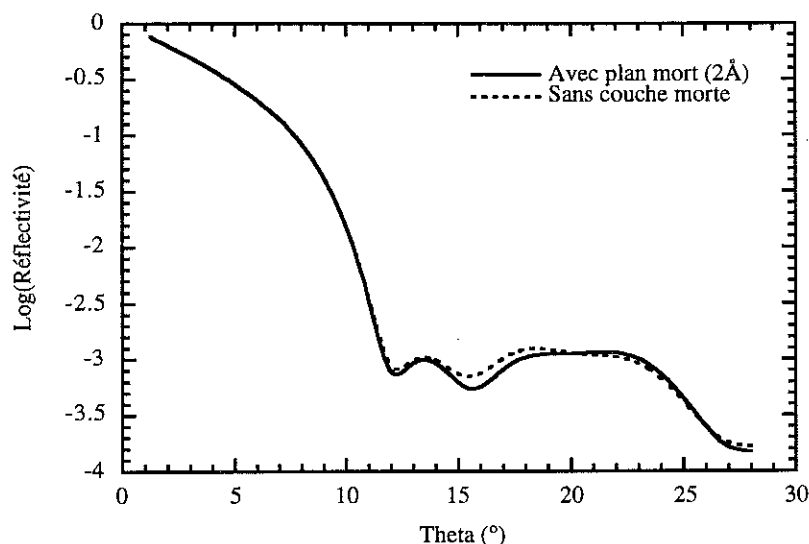


Figure 5.24 : Spectre de réflectivité d'une couche W/Fe/W pour une énergie de photon incident de 707 eV selon deux hypothèses :

- Couche de Fer aimantée uniformément
- Présence de deux couches mortes aux interfaces (2Å d'épaisseur)

D'autres simulations sont nécessaires pour tirer une conclusion quant à la possibilité, ou non, de caractériser de manière rapide la présence de plans morts aux interfaces d'une couche magnétique. Cependant, même si les différences sont faibles, elles restent, au vu du signal sur bruit mesuré pour la tricoche W/Fe/W, d'une amplitude suffisante pour espérer la mesurer. De plus une simulation effectuée pour le cas de la multicouche Cu/Co permet de retrouver le résultat du chapitre III : une variation forte du rapport d'asymétrie pour l'ordre 3 contre une variation faible pour l'ordre 2, selon que l'on prend en compte, ou non, une épaisseur de plan magnétiquement mort à l'interface Cu-Co. Cette variation forte est bien reproduite par un calcul dans l'approche optique au seuil L_{III} de Co à 780 eV (Figure 5.23) pour l'échantillon décrit au chapitre III. Les deux modèles pour le calcul sont :

-M1 : multicouche $[Cu_{16.9\text{\AA}}/Co_{37.9\text{\AA}}]_{15}$.

La couche de Co est aimantée uniformément.

-M2 : multicouche $[Cu_{16.9\text{\AA}}/Co_{37.9\text{\AA}}]_{15}$.

Présence d'une épaisseur de 2Å inerte magnétiquement dans la couche de Co, à l'interface avec celle de Cu.

La rugosité d'interface est maintenue à 0 pour toutes les couches.

Les courbes de rapport d'asymétrie sont présentées sur la figure 5.23 pour les deux modèles.

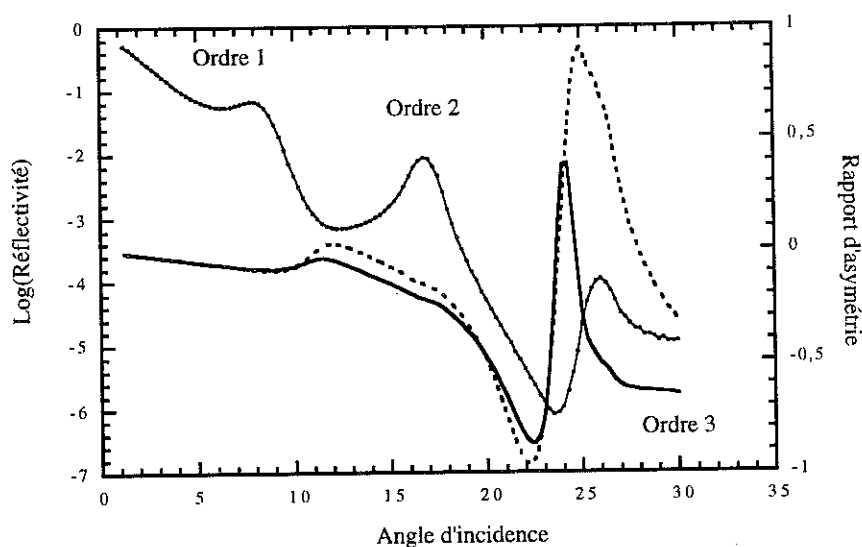


Figure 5.25 : Réflectivité isotrope (points) et rapport d'asymétrie pour les deux modèles M1 (trait plein) et M2 (trait pointillé), pour une multicouche $[Cu_{16,9\text{\AA}}/Co_{37,9\text{\AA}}]_{15}$ au seuil L_{III} de Co à 780 eV

Les amplitudes obtenues pour le rapport d'asymétrie à l'ordre 2 (-22% pour le modèle M1, et -16% pour le modèle M2) et à l'ordre 3 (-50% pour le modèle M1, et 73% pour le modèle M2) se compare bien avec celles obtenues au chapitre III dans une approche cinématique et présentées sur la figure 3.24. L'effet d'empilement multicouche augmente donc beaucoup la sensibilité à la présence de plans magnétiquement inertes aux interfaces.

Ces deux simulations montrent que les effets de "structure magnétique", c'est à dire la différence entre le profil magnétique et le profil de structure est surtout sensible aux plus grands angles. Les différences d'amplitude de réflectivité pour les différents cas que nous avons envisagés restent cependant faibles. Pour un développement futur de cette technique il est donc nécessaire de bénéficier d'un haut flux pour le faisceau incident, et d'un système de détection permettant une dynamique de comptage élevée.

Les extensions prévisibles de cette technique sont nombreuses. Citons, outre celles montrées dans les deux cas précédent, par exemple la possibilité, dans un cas "simple" (i.e.

présence d'une seule couche d'un même élément magnétique de structure connue) de déterminer les constantes diélectrique isotrope (ϵ) et magnétique résonante (η). La mesure de 2 spectres chacun pour deux orientations de champ, à un angle donné en fonction de l'énergie devrait permettre d'extraire les parties imaginaires de la partie isotrope et magnétique du facteur de diffusion, et donc de pouvoir appliquer les règles de sommes pour la détermination des moments magnétiques pour des couches encapsulées. Cette méthode est appliquée avec succès dans la gamme des longueurs d'onde correspondant au rayonnement visible (quelques eV) [29]. Son extension aux rayons X mous permettrait, par rapport à la mesure en XMCD, d'éviter d'une part les limitations de détection suivant la méthode de détection d'électrons (sensibilité uniquement aux atomes de la proche surface), et d'autre part les limites dues à la correction de réabsorption dans le cas de la mesure en mode de détection de fluorescence (importante dans cette gamme en énergie 500-1500 eV).

8.2./ Autres géométries

Deux autres géométries sont possibles pour les effets de type Kerr en mode de réflexion : la géométrie longitudinale et la géométrie polaire. La géométrie longitudinale est accessible avec les montages expérimentaux existant. Cependant la simulation des spectres de réflectivité s'avère plus complexe car la prise en compte des rugosités d'interface est compliquée par l'existence de 2 états de polarisation du faisceau. De plus, dans le cas d'un calcul en strates, l'état de polarisation du faisceau est donné dans le calcul pour la couche substrat. L'état de polarisation du faisceau incident est donc calculé une fois la simulation effectuée. Le taux de polarisation circulaire constitue donc un paramètre supplémentaire dans le calcul (ou l'affinement) dont la prise en compte imposera une méthode itérative qui reste à développer.

Enfin, la géométrie de réflexion polaire, encore inutilisée dans cette gamme de longueur d'onde, devrait permettre de mesurer des moments perpendiculaires aux plans des couches, ce qui est intéressant pour les échantillons présentant une anisotropie perpendiculaire, d'intérêt pour l'enregistrement magnétique à haute densité. A notre connaissance aucune mesure ou calcul n'ont encore été effectués pour cette dernière géométrie.

9. / Conclusions

Ce chapitre montre les développements que nous avons apportés à la technique magnéto-optique constituée par la réflectivité magnétique résonante des rayons X.

L'approche matricielle pour le calcul de l'effet Kerr a été appliquée au cas de la gamme des rayons X-mous. L'approche choisie permet d'inclure directement la constante diélectrique dans le calcul des interférences. Cette approche est donc valide quelle que soit la gamme de longueur d'onde, pourvu que la constante diélectrique soit calculée de manière adéquate.

La limitation au cas de la géométrie transverse nous a permis d'inclure dans le calcul l'effet des rugosités. Cette contribution est généralement négligée dans le cas de l'optique visible, mais s'avère avoir une grande influence pour des photons dont la longueur d'onde, inférieure à quelques dizaines d'angström, n'est pas beaucoup plus grande que les rugosités. L'extension est possible au cas de la réflectivité magnétique pour des X-durs. Les effets observés devraient être cependant faibles d'une part à cause de la faiblesse de la composante hors-diagonale de la constante diélectrique, particulièrement pour les seuils K, et à cause des faibles angles accessibles (terme géométrique du type $\sin(2\theta)$ dans le rapport d'asymétrie en géométrie transverse). Une simulation effectuée pour le seuil K du Fer et pour une couche d'épaisseur 300Å, en fonction de l'angle d'incidence, montre des rapports d'asymétrie très faibles, de l'ordre de quelques 10^{-5} , pour la géométrie transverse.

L'utilisation des géométries polaires et longitudinales devrait permettre de contourner cette dernière difficulté. Cependant dans ces deux cas, la prise en compte de la rugosité d'interface, qui reste à développer, est plus difficile puisqu'il y a couplage des deux états de polarisation de l'onde électromagnétique. Les effets de réflectivité magnétique sont cependant plus forts pour la géométrie longitudinale, notamment pour les faibles angles.

En principe, il est concevable d'effectuer un maillage de l'espace à trois dimensions dont les axes sont constitués par l'intensité réfléchie, l'énergie des photons incidents, et l'angle de réflexion. La simulation d'un tel spectre à 3 dimensions permettrait de déterminer le moment magnétique (en utilisant les règles de somme) pour chacune des couches constitutives de l'échantillon, ou bien à l'intérieur d'une même couche en utilisant une méthode de discrétisation. Une telle approche, bien que possible, s'avère difficile, étant données les contraintes que nous avons mentionnées : calibration du faisceau, temps de mesure ...

En outre l'affinement d'un spectre de réflectivité demande au préalable la connaissance des facteurs de diffusion anomaux isotrope et magnétique. Dans le cas où ceux-ci sont connus pour l'élément magnétique, aux seuils duquel est effectuée l'étude, il serait alors possible de développer une procédure d'affinement permettant d'extraire une information sur la structure magnétique des couches.

Pour cette raison il nous apparaît que deux axes principaux de développement sont à envisager :

- Problème de l'inversion du signal contenant l'information magnétique. Une mesure en fonction de l'angle permet d'obtenir la structure (réflectivité des rayons X en polarisation linéaire et géométrie transverse). Plusieurs mesures en fonction de l'énergie permettent d'obtenir un système d'équation dont la résolution donne la variation en fonction de l'énergie de la partie imaginaire du facteur de diffusion magnétique résonant. Cette approche a déjà été utilisée avec succès aux seuils $M_{2,3}$ de Fe [30, 31]. Cependant, elle est plus ardue dans le cas des seuils L de métaux de transition car l'influence de la structure y est plus importante (rugosité ...).

- Des mesures à énergie fixe, en fonction de l'angle d'incidence, permettent d'obtenir une information sur le profil magnétique à l'intérieur de la ou des couches comportant l'élément magnétique au seuil duquel est effectuée la mesure. Dans ce cas l'information sur le moment magnétique moyen porté par l'élément n'est pas nécessaire et peut être obtenue par d'autres techniques. Un affinement simultané des facteurs de diffusion isotrope et magnétique est nécessaire.

Cette technique de réflectivité magnétique résonante des rayons X, bien que présentant des difficultés, pourrait donc apporter de nombreuses informations sur le magnétisme des éléments dans une couche mince. Elle constituerait alors une méthode complémentaire aux techniques de réflectométrie neutronique, notamment pour le cas des échantillons présentant une aimantation perpendiculaire.

Références bibliographiques du chapitre V:

- [1] A.V. Sokolov, Optical properties of Metals (Blackie and Son Limited, London, 1967) 470.
- [2] L.G. Parratt, Physical Review, **95** (1954) 359.
- [3] J.L. Erskine, E.A. Stern, Physical Review B, **12** (1975) 5016.
- [4] P.M. Platzman, N. Tzoar, Physical Review B, **2** (1970) 3556.
- [5] C.C. Kao, J.B. Hastings, E.D. Johnson, D.P. Siddons, G.C. Smith, G.A. Prinz, Physical Review Letters, **65** (1990) 373.
- [6] C.C. Kao, C.T. Chen, E.D. Johnson, J.B. Hastings, H.J. Lin, G.H. Ho, G. Meigs, J.M. Brot, S.L. Hulbert, Y.U. Idzerda, C. Vettier, Physical Review B, **50** (1994) 9599.
- [7] V. Chakarian, Y.U. Idzerda, C.-C. Kao, C.T. Chen, J.M.M.M., **165** (1997) 52.
- [8] M. Sacchi, J. Vogel, S. iacobucci, J.M.M.M., **147** (1995) L11.
- [9] P.N. Argyres, Physical Review, **97** (1955) 334.
- [10] M.J. Freiser, IEEE Trans. on Magnetics, **4** (1963) 152.
- [11] M. Mansuripur, Journal of Applied Physics, **67** (1990) 6466.
- [12] Landau, Lifchitz, Electrodynamique des milieux continus Moscou, 1969)
- [13] P. Yeh, Optical Waves in Layered Media (Wiley, New York, 1988)
- [14] M. Born, E. Wolf, Principles of optics (Pergamon Press, New York, 1993)
- [15] L. Nevot, P. Croce, Journal of Applied Physics, **8** (1975) 304.
- [16] L. Nevot, P. Croce, Revue de Physique Appliquée, **15** (1980) 761.
- [17] B. Vidal, P. Vincent, Applied Optics, **23** (1984) 1794.
- [18] A.H. Compton, S.K. Allison, X-rays in theory and experiment (D. Van Nostrand Company, Princeton, 1935)
- [19] R. James, The Optical Principles of the Diffraction of X-Rays (Cornell University Press, Ithaca, 1965)
- [20] L. Ortega, Caracterisation par rayons X des isolants amorphes d'oxynitrures de silicium, SiOxNyHz, prepares en couches minces par P.E.C.V.D (Université Joseph Fourier - Grenoble 1) 1993.
- [21] J.M. André, A. Maquet, R. Barchewitz, Physical Review B, **25** (1982) 5671.
- [22] C.T. Chen, Communication privée,
- [23] C.T. Chen, Y.U. Idzerda, H.J. Lin, N.V. Smith, G. Meigs, E. Chaban, G.H. Ho, E. Pellegrin, F. Sette, Physical Review Letters, **75** (1995) 152.
- [24] O. Fruchart, J.-P. Nozières, D. Givord, J.M.M.M., **165** (1997) 508.
- [25] C.T. Chen, Y.U. Idzerda, H.J. Lin, G. Meigs, A. Chaiken, G.A. Prinz, G.H. Ho, Physical Review B, **48** (1993) 642.

- [26] A. Barbara-Déchelette, (Université Grenoble I) 1997.
- [27] Endoh, Ishikawa, J. Phys. Soc. Jpn, **30** (1971) 1614.
- [28] S. Andrieu, M. Finazzi, P. Bauer, H.M. Fischer, P. Arcade, L. Hennet, K. Hricovini, G. Krill, M. Piecuch, P. Lefevre, A. Traverse, H. Magnan, D. Chandesris, A paraître,
- [29] J.L. Erskine, E.A. Stern, Physical Review Letters, **30** (1973) 1329.
- [30] D. Rioux, B. allen, H. Höchst, D. Zhao, D.L. Huber, Physical Review B, (Soumis)
- [31] H. Höchst, D. Zhao, D.L. Huber, Journal of Surface Science, **352-354** (1995) 998.

CONCLUSION GENERALE

CONCLUSION

L'objectif principal de ce travail de thèse était de contribuer au développement de certains aspects de la diffraction magnétique résonante afin d'en voir les apports potentiels à l'étude des propriétés magnétiques des matériaux. Nous nous sommes plus particulièrement intéressés à son application dans la gamme des rayons X-mous, où les effets dépendant du magnétisme sur les facteurs de diffusion atomiques sont les plus importants, en corrélation avec le fort couplage spin-orbite des niveaux de coeur à l'origine de la transition électronique.

Trois thèmes ont été abordés dans ce travail :

- le développement de la technique de diffraction proprement dite. Cette étude a été réalisée sur des échantillons multicouches, présentant des pics de Bragg accessibles pour des énergies de photons correspondant aux seuils L de métaux de transition et M de métaux de terres rares. Une première approche en utilisant une polarisation elliptique a permis de démontrer expérimentalement l'équivalence entre les termes spectroscopiques décrivant le facteur de diffusion magnétique et le signal de dichroïsme magnétique circulaire. Cette démonstration a été effectuée en utilisant le système multicouche Ag/Ni, aux seuils L_{II} et L_{III} de Ni. L'application des règles de somme magnéto-optique au signal de diffusion magnétique extrait des données donne un moment porté par le Ni de $0.42 \mu_B$ en accord avec les mesures d'aimantation, ce qui valide la méthode.

Dans un deuxième temps, l'utilisation de la polarisation linéaire a permis de mettre en évidence des effets encore plus importants : jusqu'à 75 % d'asymétrie au seuil L_{III} de Fe et pour le pic de Bragg d'ordre 1 pour une multicouche Ag/NiFe. La mesure aux seuils de chacun des éléments constitutifs (Fe et Ni) permet d'évaluer séparément les moments magnétiques portés par la bande 3d de Fe et Ni. La mesure du rapport d'asymétrie sur plusieurs ordres de diffraction permet de décorrélérer les contributions dues à l'amplitude du facteur de diffusion magnétique de celles liées à la structure magnétique des couches, comme par exemple

CONCLUSION

l'influence des plans magnétiquement morts. Ceci a été montré dans le cas plus simple des multicouches Cu/Co où l'absence de plan mort à l'interface entre les deux matériaux a été mise en évidence.

Bien que de géométrie plus simple, étant donné les contraintes expérimentales existantes, la diffraction magnétique résonante utilisant un faisceau polarisé circulairement s'avère plus complexe à analyser du fait des états de polarisation complexes des faisceaux incident et diffracté ainsi que des effets d'absorption dichroïque qui font varier l'ellipticité de l'onde dans sa propagation à l'intérieure de la couche. La géométrie de diffraction utilisant la polarisation linéaire est beaucoup plus directe d'analyse. Elle nécessite cependant l'utilisation d'un diffractomètre d'axe vertical qui n'existe pas, ni au L.U.R.E, ni à l'E.S.R.F.

- Nous avons réalisée une expérience de XRMS afin d'étudier le profil de polarisation induit dans un matériau non-magnétique, en utilisant d'une part la sélectivité atomique donnée par ces méthodes résonantes, et d'autre part la sélectivité de la couche électronique sondée. Ce type d'analyse s'avère compliquée car il faut tenir compte de la structure chimique, de quatre facteurs anomaux (f' , f'' , m' et m'') par élément au seuil duquel s'effectue l'expérience. Un modèle simple, et une approche cinématique nous ont permis de déterminer un profil de polarisation des états 5d du La pour une multicouche La/Fe, qui présente une localisation aux interfaces de la couche de La et de Fe. Pour une multicouche Ce/Fe, l'utilisation de la même approche conduit à un profil oscillant au travers de la couche de Ce, et ce résultat demande une confirmation, soit par une autre technique, soit par l'étude d'une multicouche présentant une épaisseur de Ce plus grande.

- Dans un dernier temps, nous avons commencé à développer la technique de réflectivité magnétique résonante. Celle-ci apparaît beaucoup plus versatile que la diffraction, pour la gamme des rayons X-mous, puisqu'elle peut être utilisée pour des échantillons ne présentant aucune périodicité particulière. Nous nous sommes attachés au cas de la réflectivité en mode transverse, par référence à l'effet Kerr magnéto-optique dans la gamme du visible. L'analyse plus simple dans cette géométrie permet de façon relativement directe la prise en compte de la rugosité des interfaces, paramètre essentiel pour les calculs de réflectivité. Nous avons montré le caractère extrêmement résonant de cette technique, à la fois vis-à-vis des paramètres structuraux mais également de l'énergie des photons incidents.

Les développements futurs pour l'utilisation de cette technique nécessitent donc :

- des développements techniques : il n'existe actuellement aucune ligne de lumière, permettant ce type d'étude de manière efficace. Nous avons adapté différents goniomètres sur différentes lignes de lumière afin d'effectuer ces diverses analyses. Le caractère résonant nécessite un réglage optimal à la fois de l'optique pour la monochromatisation et de l'alignement du goniomètre sur le faisceau.

- Un développement plus important des méthodes d'analyse des données avec notamment la mise en place de procédures d'affinement dans le cas de la réflectivité magnétique résonante.

Comme nous l'avons montré dans ce travail, les applications potentielles sont nombreuses : détermination de moments magnétique (pour des éléments constituant d'une multicouche, d'un film mince ou d'une couche encapsulée), détermination de la "structure" magnétique (présence de plans morts, couplages, structure magnétique à l'intérieur d'une couche).

En conclusion, ce type d'expérience peut apporter beaucoup à l'analyse des composés magnétiquement ordonnés, mais nécessite encore un développement à la fois expérimental (appareillage) et méthodologique (affinements).

ANNEXES

Annexe 1 : Environnement Echantillon	A.1.1
Annexe 2 : Propriétés de Polarisation du rayonnement synchrotron	A.2.1
I./ Taux de polarisation pour le rayonnement émis par une machine sans émittance ..	A.2.1
II./ Taux de polarisation en tenant compte de l'émittance de la source électronique ..	A.2.3
III./ Variations des taux de polarisation pour la ligne SB3 (SACO)	A.2.10
Annexe 3 : Equivalence des transformée de Kramers-Kronig pour la constante diélectrique et le facteur de diffusion atomique.....	A.3.1
Annexe 4 : Calcul du rapport d'asymétrie en diffraction magnétique résonante pour une multicouche et pour les géométries transverse et longitudinale.....	A.4.1
I./ Notations.....	A.4.1
II./ Modèle structural pour une multicouche.....	A.4.2
III./ Géométrie transverse.....	A.4.5
IV./ Géométrie longitudinale	A.4.7
V./ Absorption	A.4.10

ANNEXE 1

Environnement Echantillon

Environnement d'échantillon

Pour les diverses géométries possibles pour la XRMS, qui utilisent différentes configurations du goniomètre par rapport à l'orbite synchrotron, ainsi que des champs appliqués selon deux orientations par rapport à l'échantillon, nous avons développé un support d'échantillon incorporant une bobine fournissant un champ magnétique au niveau de l'échantillon. Ce support qui peut s'adapter à différents goniomètres permet l'application d'un champ magnétique longitudinal ou transverse de l'ordre du kiloOersted.

L'échantillon est plaqué contre une surface de référence alignée mécaniquement sur l'axe de rotation de la platine θ , elle même centrée sur l'axe du goniomètre. L'âme de la bobine, usinée dans du fer doux présente une forme de fer à cheval (figure a1.1), dont les deux pièces polaires enserrant l'échantillon de part et d'autre. Ces pièces polaires présentent vers l'extérieur une face plane, permettant ainsi de plaquer l'ensemble de la bobine sur la surface de référence du porte échantillon, définie par l'axe de rotation.

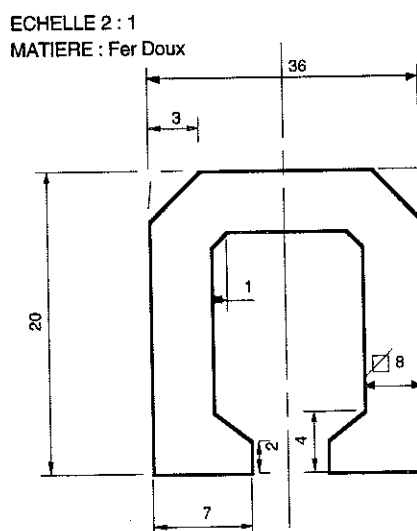


Figure a1.1 : Forme de l'âme centrale de la bobine

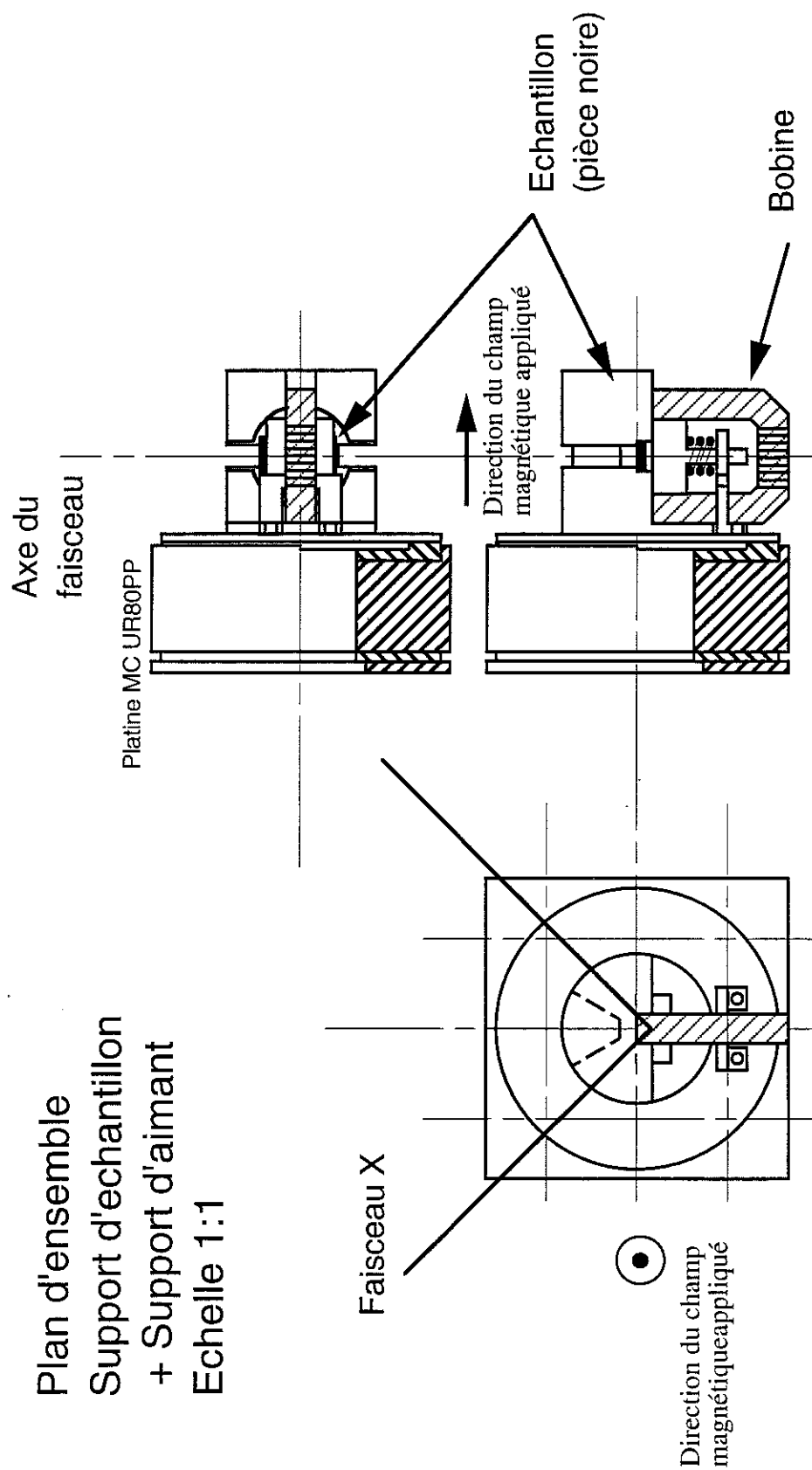


Figure a1.2 : Schéma technique du porte échantillon utilisable pour une géométrie transverse et longitudinale pour la diffraction magnétique des rayons X

L'ensemble "porte échantillon + bobine" est montré sur la figure a1.2 dans la configuration de la géométrie transverse (champ magnétique perpendiculaire au plan de réflexion).

L'échantillon est inséré dans l'entrefer de la bobine. La fixation de l'ensemble bobine et échantillon est assurée par deux ressorts, l'un exerçant une pression sur la bobine et l'autre prenant appui sur le premier et exerçant une pression sur l'échantillon. Ce dernier ressort est constitué de Béryllium, non magnétique.

Champ magnétique

Le Fer à cheval est bobiné manuellement au moyen d'un fil de cuivre émaillé sur environ 1400 tours. Ceci permet d'obtenir un champ au niveau de l'entrefer de l'ordre de 1000 Oe pour un courant de 1 Ampère. La caractéristique champ/courant de la bobine a été mesurée au moyen d'un gaussmètre, et est présentée sur la figure a1.3. Afin de réduire l'entrefer pour les petits échantillons (faibles largeurs), nous avons construit un berceau permettant de supporter l'échantillon. Les parties latérales du berceau sont constituées de fer doux afin de prolonger les parties polaires du fer à cheval. Ceci permet d'obtenir des champs un peu plus intenses que dans le cas sans berceau pour des courants identiques, et limite donc l'échauffement de la bobine pour un fonctionnement sous vide (typiquement 10^{-6} Torr).

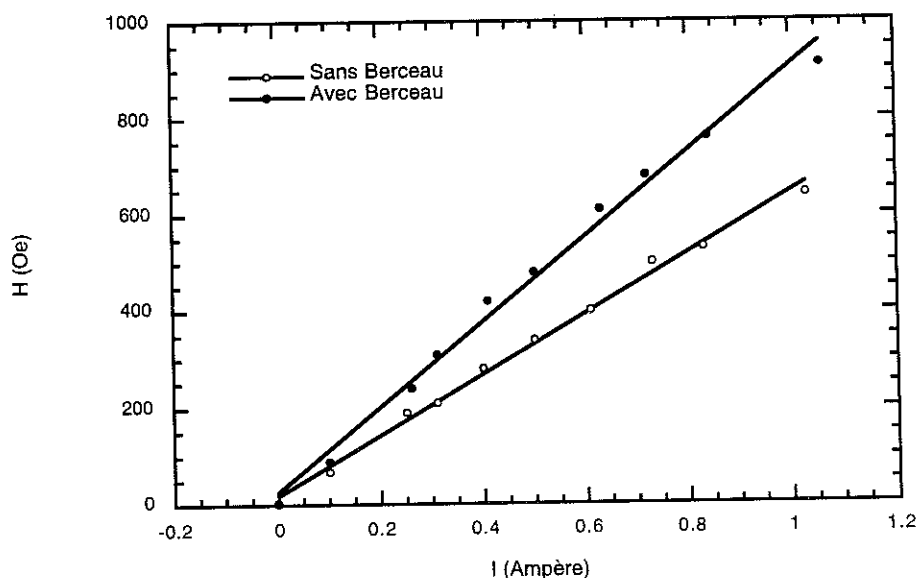


Figure a1.3 : Caractéristique du champ délivré par la bobine avec et sans berceau

Les caractéristiques champ-courant de la bobine sont les suivantes :

- Avec berceau : 900 Oe / Ampère
 Champ rémanent dans l'entrefer : 5 Oe.
- Sans berceau : 640 Oe / Ampère
 Champ rémanent dans l'entrefer : 3 Oe.

Une intensité maximale de 0.8 à 1 Ampère peut être utilisée lorsque le porte échantillon est monté dans un goniomètre sous vide à 10^{-6} Torr, sans provoquer d'échauffement notable.

ANNEXE 2

Propriétés de Polarisation du Rayonnement Synchrotron

Le calcul des propriétés de polarisation circulaire du faisceau synchrotron est essentiel pour les expériences de diffraction magnétiques en lumière elliptique effectuées en se déplaçant par rapport au centre de la nappe. En polarisation linéaire, et en se centrant sur le maximum d'émission de la source, le taux de polarisation linéaire est proche de 1. Son calcul est donc moins important.

I./ Taux de polarisation pour le rayonnement émis par une machine sans émittance.

Les intensités des faisceaux de photon émis par une source ponctuelle dans des états propres de polarisation linéaire parallèle et perpendiculaire au plan de l'orbite, et de polarisation circulaire sont données par les formules ([1] et [2]) :

$$\left\{ \begin{array}{l} B_{\sigma,\pi} = 1,327 \cdot 10^{13} E^2 I \frac{\omega^2}{\omega_c^2} (1+X^2)^2 \left| \frac{K_{2/3}^2(y)}{K_{1/3}^2(y) \frac{X}{1+X^2}} \right| \\ B_{\pm} = \frac{1}{2} 1,327 \cdot 10^{13} E^2 I \frac{\omega^2}{\omega_c^2} (1+X^2)^2 \left| K_{2/3}^2(y) \pm K_{1/3}^2(y) \frac{X}{\sqrt{1+X^2}} \right|^2 \end{array} \right.$$

$$\text{avec : } \left\{ \begin{array}{l} X = \gamma \psi \\ y = (1+X^2)^{3/2} \frac{\omega}{2\omega_c} \end{array} \right.$$

- E : énergie des électrons en GeV.
- γ : $E/mc^2 = 1957 E$ (GeV) avec $m_0 c^2$: énergie de masse des électrons.
- ψ : déviation angulaire verticale des photons par rapport au plan de l'anneau
- ω_c : pulsation de coupure de l'anneau.
- I : courant machine en ampère.
- ω : pulsation des photons émis
- $K_{1/3}$ et $K_{2/3}$ sont les fonctions de Bessel modifiées .

A partir de ces expressions, on obtient les taux de polarisation linéaire et circulaire du faisceau émis (τ^L_{faisceau} et τ^C_{faisceau}). Si le faisceau subit 2 réflexions en traversant un double monochromateur, le taux de polarisation est changé par les deux réflexions. En appelant ξ_σ et ξ_π le rapport des amplitudes respectivement parallèlement aux polarisations σ et π aux amplitudes incidentes, on peut calculer les coefficients de polarisation linéaire et circulaire après le monochromateur [3] (τ^L_{mono} et τ^C_{mono}).

On a [2]:

$$\left| \begin{aligned} \tau^C_{\text{faisceau}} &= \frac{I_+ - I_-}{I_+ + I_-} \\ \tau^C_{\text{Mono}} &= \frac{\left(\int \text{Re}(\xi_\sigma \xi_\pi) \right) (I_+ - I_-)}{\int |\xi_\sigma|^2 I_\sigma + \int |\xi_\pi|^2 I_\pi} \\ \tau^L_{\text{faisceau}} &= \frac{I_\sigma - I_\pi}{I_\sigma + I_\pi} \\ \tau^C_{\text{Mono}} &= \frac{\int |\xi_\sigma|^2 I_\sigma - \int |\xi_\pi|^2 I_\pi}{\int |\xi_\sigma|^2 I_\sigma + \int |\xi_\pi|^2 I_\pi} \end{aligned} \right|$$

Nous avons utilisé des valeurs tabulées pour ξ_σ et ξ_π [4]

II./ Taux de polarisation en tenant compte de l'émittance de la source électronique.

1. / Calcul de la convolution.

Dans le cas d'une source électronique réelle, il nous faut considérer la taille finie du paquet d'électrons et leur distribution angulaire. La prise en compte de cet effet conduit à incorporer, dans le calcul de l'intensité émise, un terme décrivant la taille de la source (σ) et un terme décrivant la dispersion angulaire d'émission de la source (σ').

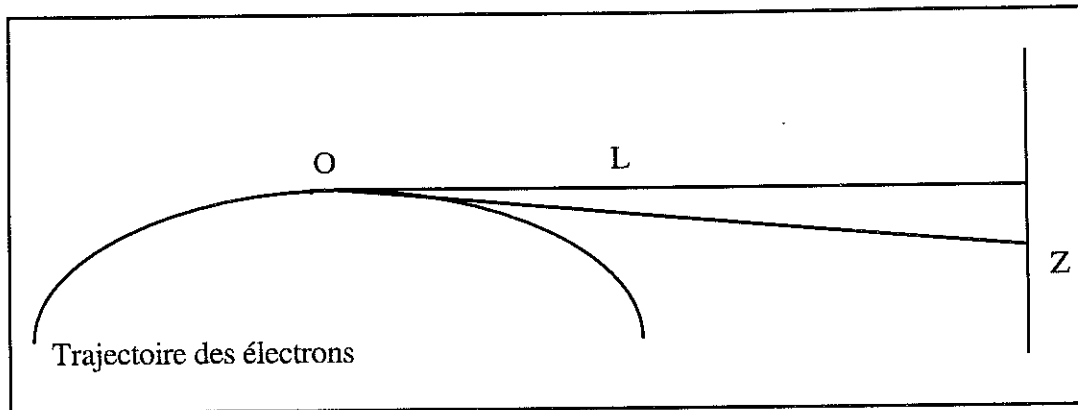


Figure a2.1 : Schéma de la source synchrotron : les photons sont émis en O et arrivent en Z

Les électrons sont considérés comme formant une source optique émettant des photons au point O avec :

σ : dimension transverse de la source.

σ' : dispersion angulaire de la source.

Les électrons oscillent autour de la trajectoire moyenne circulaire (dans les 2 directions d'espace, z et x perpendiculaires à la vitesse moyenne). Les mouvements des électrons sont tels que z et z' sont corrélés (z représente la côte par rapport à la trajectoire idéale circulaire dans le plan de l'anneau, et z' la vitesse des électrons). β_z est la longueur d'onde bétatron : longueur d'onde locale des oscillations bétatrons le long de z (qui varie le long de l'orbite). On suppose ici que $\beta' = d\beta/ds = 0$, ce qui suppose le faisceau d'électrons parallèle en moyenne. z et z' évoluent sur une ellipse telle que :

$$z^2 + z'^2 \beta^2 = a^2 \beta$$

a^2 est relié à l'énergie totale (cinétique + potentielle) des particules dans leur mouvement d'oscillation. On a :

$$\varepsilon_z = \langle a^2 \rangle = \text{émittance}$$

$$\sigma_z^2 = \beta \langle a^2 \rangle = \text{dimension de la source.}$$

$$\sigma_z'^2 = \frac{\langle a^2 \rangle}{\beta} = \text{dispersion de la source.}$$

$P(z, z') = \text{probabilité pour un électron d'être en } z \text{ avec une vitesse } z'$

C'est la probabilité pour que l'électron soit dans un état d'oscillation d'énergie a^2 . On suppose des processus stochastiques, donc cette probabilité est de la forme :

$$P(z, z) = \frac{1}{2\pi\epsilon} \exp\left(-\frac{a^2}{2\epsilon}\right)$$

Equation de l'ellipse des phases :

$$\left\{ \begin{array}{l} z = a\sqrt{\beta} \cos(\varphi) \\ \dot{z} = \frac{a}{\sqrt{\beta}} \sin(\varphi) \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} z^2 = a^2\beta \cos^2(\varphi) \\ \beta^2 \dot{z}^2 = a^2\beta \sin^2(\varphi) \end{array} \right\} \Rightarrow z^2 + \beta^2 \dot{z}^2 = a^2\beta$$

$$dz d\dot{z} = \frac{1}{\beta} d(\beta\pi a^2) = d\varphi da$$

Soit :

$$P(z, \dot{z}) = \frac{1}{2\pi\sigma_z\sigma'_z} e^{-a^2/2\epsilon}$$

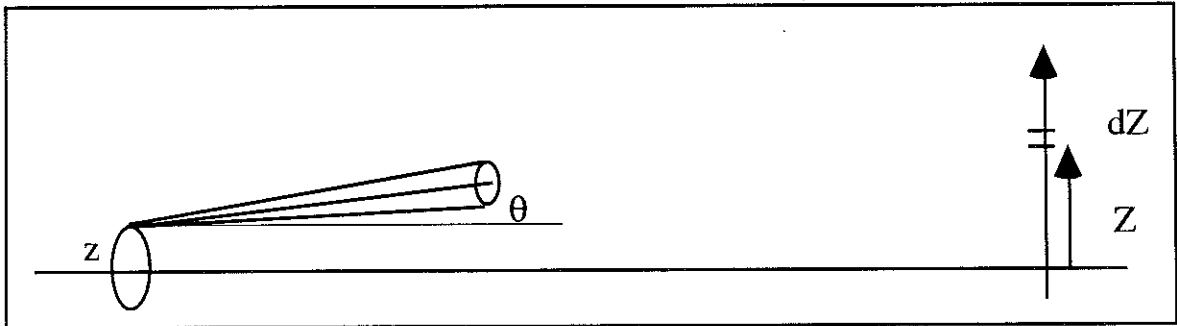


Figure a2.2 : Schéma d'émission par une source électronique de dimension finie

$N(\psi)$ = nombre de photons émis par un électron dans la direction ψ par rapport à sa vitesse laquelle fait un angle θ par rapport à la tangente à l'orbite circulaire moyenne.

$N_{\sigma}(\psi)$ = polarisation horizontale.

$N_{\pi}(\psi)$ = polarisation verticale.

$$\text{et : } \tan(\theta) = \frac{dz}{ds} = \dot{z} = \theta$$

Pour qu'un photon émis en z par un électron de vitesse z' arrive en Z sur la cible il faut :

$$\begin{aligned} (\theta + \psi)L &= Z - z \\ z \approx \theta &= \frac{Z - z}{L} - \psi = \frac{Z - L\psi}{L} - z/L \end{aligned}$$

En utilisant l'expression de z' donné ci-dessus on obtient :

$$\frac{a^2}{2\varepsilon} = \frac{a^2}{2\sigma_z\sigma_{z'}} = \frac{a^2\beta}{2\sigma_z^2} = \frac{z^2 + \beta^2 z'^2}{2\sigma_z^2} = \frac{1}{2\Sigma_z^2} \left[(z - z_0)^2 + z_1^2 \right]$$

Avec :

$$\begin{cases} z_0 = \frac{(Z - L\psi)\beta^2}{(L^2 + \beta^2)} \\ z_1 = \frac{(Z - L\psi)\beta L}{(L^2 + \beta^2)} \\ \Sigma_z^2 = \frac{\sigma_z^2 L^2}{(L^2 + \beta^2)} \end{cases}$$

Donc :

$$\boxed{\begin{aligned} P(z, z) &= P(z, Z, \psi) = \frac{1}{2\pi\sigma_z\sigma_{z'}} \exp\left[-\frac{K^2}{2}\right] \exp\left[-\frac{(z - z_0)^2}{2\Sigma_z^2}\right] \\ \text{avec } K &= \left(\frac{(Z - L\psi)\beta}{\sigma_z \sqrt{L^2 + \beta^2}} \right) \end{aligned}}$$

Nous sommes intéressés par la densité de photons $F_s(z)$ à une côte Z à la distance L de la source : Z faisant un angle $\theta + \Psi$ avec l'axe horizontal et ayant un état de polarisation s donné.

$$F_s(z) = \frac{1}{L} \int N_s(\psi) P(Z, z, \psi) dz d\psi$$

où N_s représente le nombre de photons dans l'état de polarisation s : linéaire σ ou π , circulaire droite (-) ou gauche (+).

On a en effet :

$$F_s(z) dZ = P(z, z, \psi) dz dZ N_s(\psi) = N_s(\psi) P(z, Z, \psi) dz \frac{dZ}{L} = \frac{1}{L} N_s(\psi) P(z, Z, \psi) dz dZ$$

Soit : $F_s = \frac{1}{L} \int N_s(\psi) P(z, Z, \psi) d\psi dz$
avec $s = \sigma, \pi, +$ ou $-$

$$F_s(Z) = \frac{\beta}{2\pi\sigma_z^2 L} \int N_s(\psi) \exp\left(-\frac{K^2}{2}\right) \int \exp\left[-\frac{(z-z_0)^2}{2\sigma_z^2}\right] dz d\psi$$

En intégrant sur la cote z des électrons, on obtient :

$$F_s(Z) = \frac{\beta}{\sigma_z \sqrt{2\pi(L^2 + \beta^2)}} \int_{-\pi/2}^{\pi/2} N_s(\psi) \exp\left[-\frac{\beta^2(Z - L\psi)^2}{\sigma_z^2(L^2 + \beta^2)}\right] d\psi$$

Avec : - s : $\sigma, \pi, +$ ou $-$
- $N_s(\psi)$: $I\sigma, I\pi$, ou termes croisés

2./ Calcul des taux de polarisation

Grâce aux équations précédemment dérivées, on peut déterminer les taux de polarisation linéaire et circulaire avant et après monochromatisation.

Taux	Avant Mono	Après Mono
Linéaire	τ_{faisceau}^L	τ_{mono}^L
Circulaire	τ_{faisceau}^C	τ_{mono}^C

Avant monochromateur, on a :

$$F_{\sigma}(Z) = \frac{\beta}{\gamma \sigma_z \sqrt{2\pi(L^2 + \beta^2)}} 1,327 \cdot 10^{13} E^2 I \frac{\omega^2}{2\omega_c^2} \int (1 + X^2)^2 K_{2/3}^2(y) \exp\left[-\frac{(X_o - X)^2}{2S^2}\right] dX$$

$$F_{\pi}(Z) = \frac{\beta}{\gamma \sigma_z \sqrt{2\pi(L^2 + \beta^2)}} 1,327 \cdot 10^{13} E^2 I \frac{\omega^2}{2\omega_c^2} \int (1 + X^2)^2 X^2 K_{1/3}^2(y) \exp\left[-\frac{(X_o - X)^2}{2S^2}\right] dX$$

$$F_C(Z) = \frac{2\beta}{\gamma \sigma_z \sqrt{2\pi(L^2 + \beta^2)}} 1,327 \cdot 10^{13} E^2 I \frac{\omega^2}{2\omega_c^2} \int (1 + X^2)^{3/2} X K_{2/3}(y) K_{1/3}(y) \exp\left[-\frac{(X_o - X)^2}{2S^2}\right] dX$$

avec $X = \gamma\psi$

$$y = (1 + X^2)^{3/2} \frac{\omega^2}{2\omega_c^2}$$

$$S^2 = \frac{\sigma_z^2 (L^2 + \beta^2) \gamma^2}{L^2 \beta^2}$$

$$X_o = \frac{\gamma Z}{L}$$

On a alors en posant :

$$\begin{cases} R_1 = \int \text{Re}(\xi_{\sigma} \xi_{\pi}^*) \\ R_2 = \int |\xi_{\sigma}|^2 \\ R_3 = \int |\xi_{\pi}|^2 \end{cases}$$

où $\xi_{\sigma,\pi}$ désigne les réflectances du monochromateur pour les polarisation σ et π . Les valeurs R_1, R_2, R_3 représentent les coefficients de réflexion du monochromateur.

$$\begin{cases} \tau_{L\text{faisceau}} = \frac{F_{\sigma} - F_{\pi}}{F_{\sigma} + F_{\pi}} \\ \tau_{L\text{mono}} = \frac{R_2 F_{\sigma} - R_3 F_{\pi}}{R_2 F_{\sigma} + R_3 F_{\pi}} \\ \tau_{C\text{faisceau}} = \frac{2F_C}{F_{\sigma} + F_{\pi}} \\ \tau_{L\text{mono}} = \frac{2R_1 F_C}{R_2 F_{\sigma} + R_3 F_{\pi}} \end{cases}$$

3./ Calcul des intensités.

$$\begin{aligned} - \text{Avant mono :} & \quad I_T = F_\sigma + F_\pi \\ - \text{Après mono :} & \quad I_T = R_2 F_\sigma + R_3 F_\pi \end{aligned}$$

4./ Calcul dans le cas général avec $\dot{\beta} \neq 0$

Dans le cas du synchrotron DCI, la constante $\dot{\beta}$ (dérivée locale de la fonction β par rapport à l'azimut) est différente de 0. Ceci signifie que le faisceau d'électrons n'est pas parallèle, mais convergent ou divergent puisque $\frac{d\sigma}{ds} = \sqrt{\varepsilon} \frac{\dot{\beta}}{2\beta}$. Il y a donc une source optique virtuelle qui n'est pas localisée sur le paquet d'électron mais en avant ou en arrière. Il faut en tenir compte dans le calcul de la convolution de l'émission des photons par la taille de la source (dimension et divergence).

Soit une source électronique située physiquement en $L=0$ émettant avec β et $\dot{\beta}$. On a :

$$\begin{aligned} \beta \left(\dot{z} - \frac{\dot{\beta}}{2\beta} z \right)^2 + \frac{1}{\beta} z^2 &= a^2 \\ \text{avec } \gamma &= \frac{1}{\beta} \left(1 + \frac{\dot{\beta}^2}{4} \right) \end{aligned} \quad (1)$$

On cherche la source optique équivalente en L_0 telle que l'on garde la même forme d'ellipse dans l'espace des phases, qu'on écrit :

$$\begin{aligned} B \left(\dot{Z} - \frac{\dot{B}}{2B} Z \right)^2 + \frac{1}{B} Z^2 &= a^2 \\ \text{avec } \Gamma &= \frac{1}{B} \left(1 + \frac{\dot{B}^2}{4} \right) \end{aligned} \quad (2)$$

$$\text{Avec } L \text{ telle que : } \begin{cases} Z = z + L\dot{z} \\ \dot{Z} = \dot{z} \end{cases} \quad \text{soit} \quad \begin{cases} z = Z - L\dot{Z} \\ \dot{z} = \dot{Z} \end{cases}$$

En remplaçant dans l'équation (1) on obtient :

$$Z^2 \left[\beta + \frac{L^2 \beta^2}{4\beta} + \beta L + \frac{L^2}{\beta} \right] - ZZ \left[\frac{L \beta^2}{2\beta} + \beta + \frac{2L}{\beta} \right] + Z^2 \left[\frac{\beta^2}{4\beta} + \frac{1}{\beta} \right] = a^2$$

Soit en identifiant à l'équation (2) :

$$\begin{cases} B = L^2 \gamma + \beta + L\beta \\ \dot{B} = 2\gamma L + \beta = 2\gamma[L - L_o] \\ \Gamma = \gamma \end{cases} \quad \text{avec} \quad L_o = -\frac{\beta}{2\gamma}$$

Soit :

$$\begin{cases} \Gamma = \gamma = \frac{1}{\beta} \left(1 + \frac{\dot{\beta}^2}{4} \right) \\ L_o = -\frac{\beta}{2\gamma} \\ \dot{B} = 2\gamma(L - L_o) \\ B = \frac{1 + \gamma^2(L - L_o)^2}{\gamma} \end{cases}$$

On peut donc utiliser le programme écrit dans le cas $\beta=0$ (faisceau électronique parallèle) en le modifiant de façon à prendre en compte les nouveaux paramètres. La modification est aisée dans la mesure où l'on se contente de calculer la nouvelle position de la source optique en L_o et ses nouvelles caractéristiques en ce point.

On aura donc :

$$\begin{cases} L_o = -\frac{\beta}{2\gamma} \\ B = 1/\gamma \\ \dot{B} = 0 \\ L' = L - L_o \end{cases} \quad \text{et} \quad \begin{cases} \Sigma_z = \sigma_z \frac{1}{1 + \beta^2/4} \\ \Sigma'_z = \sigma'_z \left(1 + \beta^2/4 \right) \end{cases}$$

On a donc une nouvelle source électronique apparente plus petite que la source électronique réelle, mais sa dispersion angulaire est plus forte. Cette source correspond à une ellipse des phases dont les axes coïncident avec les axes (z, z') dans l'espace des phases.

III. / Variations des taux de polarisation pour la ligne SB3

Les calculs des intensités du faisceau X pour les états de polarisation σ et π ont été effectués dans le cas de l'aimant de courbure de la ligne SB3 à SACO, en prenant en compte l'effet du monochromateur à double cristaux de Beryl (Figure a2.3).

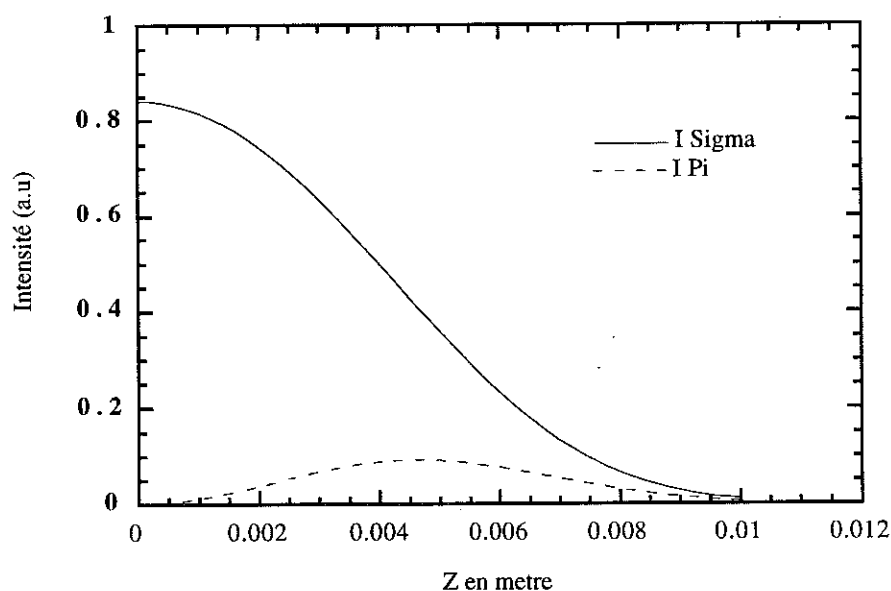


Figure a2.3 : Variation de l'intensité du faisceau synchrotron pour les deux états de polarisation pour une énergie de photon de 852 eV

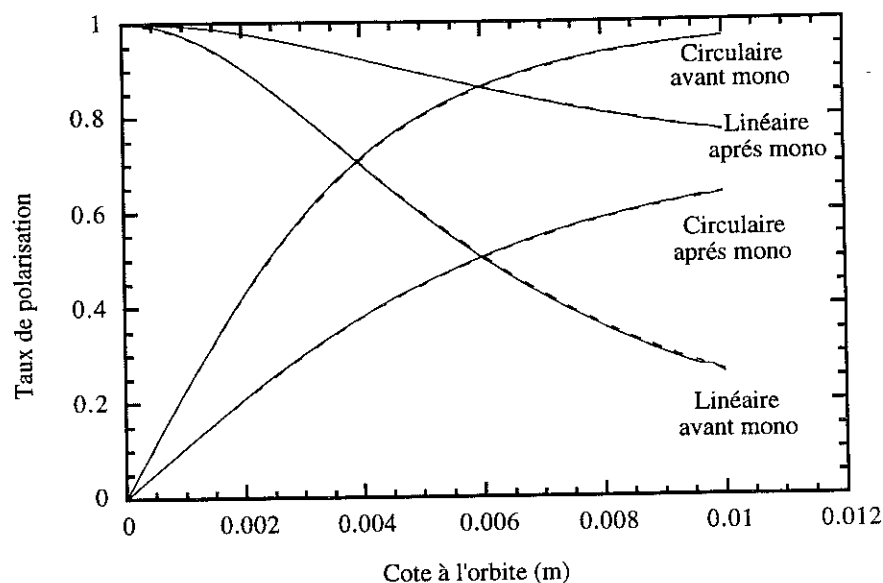


Figure a2.4 : Variations des taux de polarisation en fonction de la cote à l'orbite centrale pour une des photons de 852 eV

A partir des intensités σ et π , on obtient les taux de polarisation linéaire et circulaire en fonction de la cote par rapport à l'orbite synchrotron (Figure a2.4). Les traits pointillés de la figure a2.4 donne le résultat du calcul en tenant compte de la convolution pour la taille de la source. La comparaison au cas non convolué montre que la variation induite sur l'intensité, et donc sur les taux de polarisation linéaire et circulaire reste négligeable pour une machine de basse émittance comme Super ACO. Cela ne serait plus vrai pour une machine comme DCI.

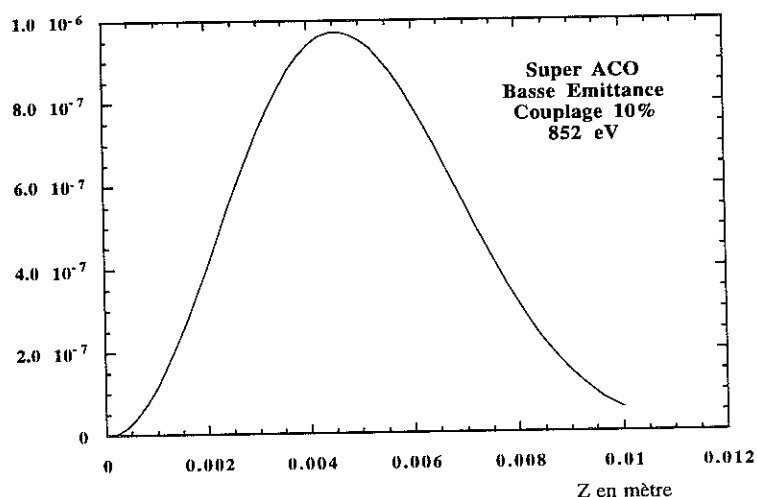


Figure a2.5 : Courbe $I\tau^2$ pris comme critère pour le choix de la position optimale en terme de flux et de polarisation circulaire.

La Figure a2.5 présente la variation en fonction de la cote z du paramètre $I\tau^2$ pris comme critère d'optimisation pour l'utilisation de faisceau polarisé circulairement. Le maximum pointe à 4.5 mm et justifie donc le choix de la position hors de l'orbite pour l'expérience en polarisation circulaire (cf Chap. III).

Références

- [1] D.RAOUX, " Introduction to synchrotron radiation and the physics of storage ring", dans "Neutron and synchrotron radiation for condensed matter studies", Cours HERCULES Volume I, Theory, Instruments and methods, Chaptitre II, p 37
- [2] C.MALGRANGE, C.CARVALHO, L.BRAICOVICH, J.GOULON,
Transfer of circular polarization in Bragg crystal X-Ray monochromators
- [3] D.LAUNDRY, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Research **A290**, 248-253 (1990)
- [4] C. Malgrange, Communication privée

ANNEXE 3

Equivalence des transformées de Kramers-Kronig pour le facteur de diffusion et la constante diélectrique

Les relations de Kramers-Kronig traduisent le principe de causalité stipulant qu'aucun signal ne peut préexister à une action. Ces dernières s'appliquent aux facteurs de diffusion atomique anomaux, ainsi qu'à la constante diélectrique. Ces deux quantités étant reliées par des relations incluant une dépendance en pulsation, une interrogation possible est : faut-il calculer la transformée de Kramers-Kronig sur la constante diélectrique ou sur le facteur de diffusion? Il nous a donc paru intéressant de montrer leur équivalence.

Ecritures des relations de dispersion pour f' et f'' :

$$f'(\omega) = \frac{2}{\pi} P \int_0^{\infty} \frac{\omega' f''(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' \quad [A.III.1]$$

$$f''(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} P \int_0^{\infty} \frac{f'(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' \quad [A.III.2]$$

Ecriture des relations de dispersion pour la constante diélectrique :

$$\epsilon_r(\omega) = 1 + \frac{2}{\pi} P \int_0^{\infty} \frac{\omega' \epsilon_i(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' \quad [A.III.3]$$

$$\epsilon_i(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} P \int_0^{\infty} \frac{\epsilon_r(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' \quad [A.III.4]$$

Lien entre la constante diélectrique et le facteur de diffusion anomal :

$$\begin{aligned}\varepsilon_r(\omega) &= 1 - \frac{r_0 \lambda^2 N}{\pi} (Z + f')(\omega) \\ \varepsilon_i(\omega) &= \frac{r_0 \lambda^2 N}{\pi} f''(\omega)\end{aligned}\quad [\text{A.III.5}]$$

Equivalence des deux transformée :

Partons de la constante diélectrique ε . Celle-ci satisfait aux relations de Kramers-Kronig. Celles-ci s'écrivent avant symétrisation :

$$i\pi\varepsilon(\omega_0) = \text{PP} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\varepsilon(\omega')}{\omega' - \omega_0} d\omega' \quad [\text{A.III.6}]$$

L'intégration se faisant dans le plan complexe sur un contour C. Posons pour simplifier :

$$\varepsilon(\omega) = A \frac{f(\omega)}{\omega^2} \quad [\text{A.III.7}]$$

où A est une constante de proportionnalité.

En remplaçant dans l'équation [A.III.6], il vient :

$$\begin{aligned}A\pi i \frac{f(\omega_0)}{\omega_0^2} &= \oint \frac{Af(\omega')}{\omega'^2(\omega' - \omega_0)} d\omega' \\ &= A \oint \frac{\omega_0^2 f(\omega')}{\omega'^2(\omega' - \omega_0)} d\omega' \\ &= A \left[\oint \frac{\omega_0^2 f(\omega')}{\omega'^2(\omega' - \omega_0)} d\omega' + \oint \frac{\omega'^2 f(\omega') - \omega_0^2 f(\omega')}{\omega'^2(\omega' - \omega_0)} d\omega' \right. \\ &\quad \left. - \oint \frac{(\omega' + \omega_0)}{\omega'^2} f(\omega') d\omega' \right]\end{aligned}$$

En combinant les deux premières équations :

$$\pi if(\omega_o) = \left[\oint \frac{f(\omega')}{(\omega' - \omega_o)} d\omega' - \frac{1}{A} \oint \frac{(\omega' + \omega_o)}{\omega'^2} \varepsilon(\omega') d\omega' \right]$$

La deuxième intégrale (I) est celle d'une fonction analytique ne présentant pas de pôle dans la région d'intégration. Donc I=0.

Soit finalement :

$$if(\omega_o) = \frac{1}{\pi} \oint \frac{f(\omega')}{(\omega' - \omega_o)} d\omega'$$

qui est la forme habituelle de la relation de Kramers-Kronig.

ANNEXE 4

Calcul du rapport d'asymétrie en diffraction magnétique résonante pour une multicouche et pour les géométries transverse et longitudinale

I./ Notations

On rappelle que le facteur de diffusion atomique à la résonance est donné par (pour une transition dipolaire) :

$$f_{E1} = \frac{3}{4} \lambda \left\{ (\hat{\mathbf{e}}'^* \cdot \hat{\mathbf{e}}) [F_{11} + F_{1-1}] - i(\hat{\mathbf{e}}'^* \times \hat{\mathbf{e}}) \cdot \hat{\mathbf{z}}_n [F_{11} - F_{1-1}] + (\hat{\mathbf{e}}'^* \cdot \hat{\mathbf{z}}_n)(\hat{\mathbf{e}} \cdot \hat{\mathbf{z}}_n) [2F_{10} - F_{11} - F_{1-1}] \right\} \quad [\text{A.4.I}]$$

En négligeant le troisième terme de l'équation A.4.I responsable du dichroïsme linéaire, on peut simplifier l'équation précédente en :

$$f = -(\hat{\mathbf{e}}_f^* \cdot \hat{\mathbf{e}}_i) (f_0 + f' - if'') + f_{\text{mag}}^{\text{res}} \quad [\text{A.4.II}]$$

Dans le cas où la résonance magnétique est supposée avoir une dépendance lorentzienne avec l'énergie, on peut écrire :

$$f_{\text{mag}}^{\text{res}} = -i(\hat{\mathbf{e}}_f^* \times \hat{\mathbf{e}}_i) \cdot \hat{\mathbf{z}}_j n_m \frac{x+i}{1+x^2} = -i(\hat{\mathbf{e}}_f^* \times \hat{\mathbf{e}}_i) \cdot \hat{\mathbf{z}}_j F_{\text{res}} \quad [\text{A.4.III}]$$

$$F_{\text{res}} = \frac{x}{1+x^2} - \frac{-i}{1+x^2} = f'_{\text{mag}} - f''_{\text{mag}} \quad [\text{A.4.IV}]$$

Cette notation implique que la résonance de charge non-magnétique (1^o terme de l'équation A.4.I) soit incorporée dans le facteur de diffusion atomique $f - if''$.

$$F_{\text{res}} = \frac{x}{1+x^2} - \frac{-i}{1+x^2} = f'_{\text{mag}} - f''_{\text{mag}} \quad \text{avec} \quad x = \frac{E_s - E}{\Gamma/2}$$

où Γ est la largeur à mi-hauteur de la lorentzienne décrivant la résonance.

On a alors la relation de Kramers-Kronig (KK) suivante qui relie les parties réelle et imaginaire de f_{mag} :

$$\text{KK} \left(\frac{1}{1+x^2} \right) = \frac{-x}{1+x^2}$$

Dans le cas général, le facteur de structure d'une assemblée d'atome est décrit par :

$$H(\mathbf{q}, E, \mathbf{e}_f, \mathbf{e}_i) = \sum_j f_j(\mathbf{q}, E, \mathbf{e}_f, \mathbf{e}_i) e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}_j}$$

où $\mathbf{q}$ est le vecteur de diffusion : $\mathbf{q} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f$.

On peut le décomposer selon une composante non magnétique et la composante magnétique puisque celles-ci sont additives.

$$H(\mathbf{q}, E, \mathbf{e}_f, \mathbf{e}_i) = \sum_j \left[\underbrace{-\left(\hat{\mathbf{e}}_f^* \cdot \hat{\mathbf{e}}_i\right) \left(f_{0,j} + f'_j - if''_j\right)}_{H_c} + \underbrace{f_{\text{mag},j}^{\text{res}}}_{H_m} \right] e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}_j}$$

avec :

$$H_c(\mathbf{q}, E, \mathbf{e}_f, \mathbf{e}_i) = \sum_j -\left(\hat{\mathbf{e}}_f^* \cdot \hat{\mathbf{e}}_i\right) \left(f_{0,j} + f'_j - if''_j\right) e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}_j}$$

Facteur de structure classique calculé en sommant sur tous les atomes.

$$H_m(\mathbf{q}, E, \mathbf{e}_f, \mathbf{e}_i) = \sum_{j \text{ mag}} \left[f_{\text{mag},i}^{\text{res}} \right] e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}_j}$$

Facteur de structure magnétique calculé pour les seules atomes résonants.

II./ Modèle structural pour une multicouche

Le modèle structural décrivant l'empilement multicouche est donné par celui d'une multicouche parfaite (empilement compact parfait).

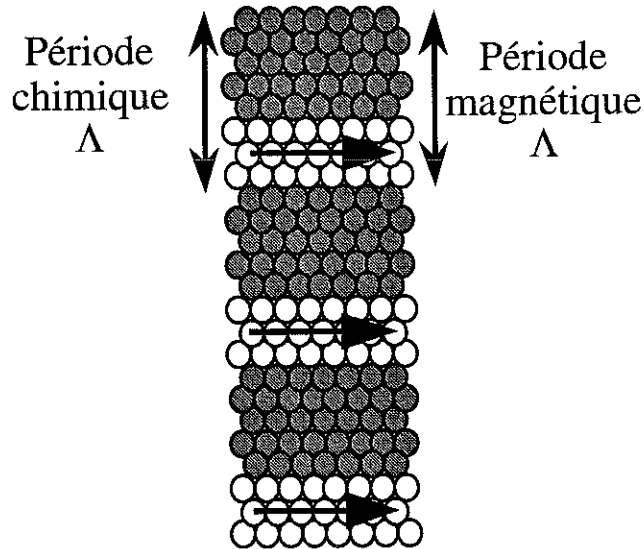


Figure a4.1 : Modèle pour l'empilement multicouche dans le cas d'un couplage ferromagnétique entre couche magnétiquement ordonnée ferromagnétiquement.

Chaque sous couche (noté par les indices a et b) est constituée de n plans portant une densité surfacique atomique σ . On a les relations simples pour une couche atomique composée de l'élément ℓ :

$$\frac{\sigma_{\ell}}{d_{\ell}} = \frac{N_a \rho_{\ell}}{A_{\ell}}$$

$$n_a d_a + n_b d_b = \Lambda$$

où σ_{ℓ} et ρ_{ℓ} sont les densités surfaciques et volumiques de l'espèce ℓ , A_{ℓ} sa masse atomique et N_a le nombre d'Avogadro, Λ est la période de l'empilement.

Pour une multicouche, et en réflexion symétrique où $\mathbf{q}$ est perpendiculaire aux plans atomiques, on peut sommer les contributions des atomes dans un plan atomique et introduire les densités surfaciques σ_{ℓ} des espèces ℓ . On a alors :

$$\sum_j e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_j} = \sum_l \sum_{n=0} \sigma_l e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_n}$$

La sommation ne court alors plus que sur les plans atomiques d'indice n et r_n désigne la distance à la surface.

On la sépare en deux contributions en considérant une sommation à l'intérieur de la maille élémentaire de période Λ et une sommation sur les N périodes réellement sondées.

Avec ces notations, et en prenant l'origine à la surface de la multicouche, l'axe z vertical orienté vers l'intérieur de la multicouche, les deux composantes du facteur de structure se développent en :

$$H_c(\mathbf{q}, \mu, E) = (\hat{\mathbf{e}}_f \cdot \hat{\mathbf{e}}_i) \sum_{j=0}^N \left[\sum_{j_1=0}^{n_a-1} \sigma_a f_a e^{i \frac{q d_a}{2}} e^{i q j_1 d_a} + e^{i q n_a d_a} \sum_{j_2=0}^{n_b-1} \sigma_b f_b e^{i \frac{q d_b}{2}} e^{i q j_2 d_b} \right] e^{i q \Lambda j}$$

$$H_m(\mathbf{q}, \mu, E) = -i(\hat{\mathbf{e}}_f \times \hat{\mathbf{e}}_i) e^{i q n_a d_a} \sum_{j=0}^N \left[\sum_{j_2=0}^{n_b-1} \sigma_b f_{\text{mag}_b}^{\text{res}} e^{i \frac{q d_b}{2}} e^{i q j_2 d_b} \right] e^{i q \Lambda j}$$

Deux cas extrêmes peuvent être envisagés selon l'importance relative de l'épaisseur réelle de la multicouche $N_{\text{réel}}\Lambda$ et de la longueur d'absorption donnée par $1/\mu = N_{\text{abs}}\Lambda$, où μ est le coefficient d'absorption linéaire, N_{abs} correspondant au nombre de bicouches pour la longueur d'extinction :

- $N_{\text{abs}} \gg N_{\text{réel}}$: l'épaisseur sondée est l'épaisseur réelle de l'échantillon. Les pics de Bragg prennent la forme d'une fonction de Laue, dont la largeur donne l'épaisseur de l'échantillon.

- $N_{\text{réel}} \gg N_{\text{abs}}$: le nombre de bicouches sondées est dominé par l'absorption. On peut considérer le cristal comme infiniment épais, et les pics de Bragg prennent une forme lorentzienne dont la largeur est directement liée à l'absorption.

Quel que soit le cas, on peut décomposer les facteurs de structure H_c et H_m en séparant la composante de la maille $H'(\mathbf{q})$ et celle du réseau $S(\mathbf{q})$.

$$H_c(q, \mu, E) = S(q)H'(q)$$

$$H_m(q, \mu, E) = S(q)H''(q)$$

Le développement du terme H' conduit, en négligeant l'absorption à l'intérieur d'une maille à :

$$H'(q) = e^{i \frac{qn_a d_a}{2}} \left[\sigma_a f_a \frac{\sin\left(\frac{qn_a d_a}{2}\right)}{\sin\left(\frac{qd_a}{2}\right)} + e^{i \frac{q\Lambda}{2}} \sigma_b f_b \frac{\sin\left(\frac{qn_b d_b}{2}\right)}{\sin\left(\frac{qd_b}{2}\right)} \right]$$

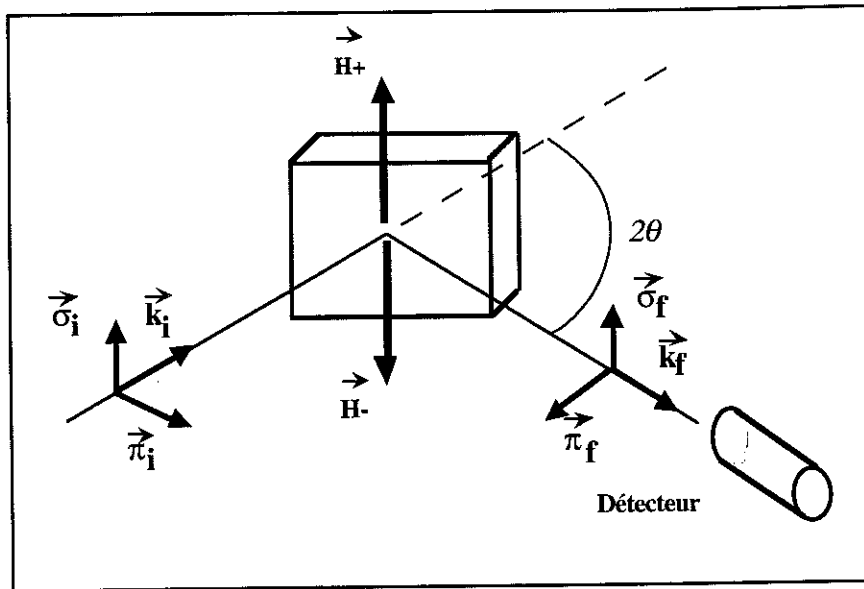
Le développement analogue du facteur de structure magnétique conduit en ne considérant que les atomes b magnétiques à :

$$H''(q) = e^{i \frac{qn_a d_a}{2}} e^{i \frac{q\Lambda}{2}} \sigma_b F_{res} \frac{\sin\left(\frac{qn_b d_b}{2}\right)}{\sin\left(\frac{qd_b}{2}\right)}$$

Nous développons ensuite le calcul du rapport d'asymétrie pour chacune des géométries utilisées : transverse, puis longitudinale.

III./ Géométrie transverse

La géométrie et les notations dans le cas transverse sont présentées sur la figure a.4.2. Dans le calcul qui suit, nous avons conservé la composante σ du faisceau incident, bien que celle-ci soit très faible dans le cas d'un rayonnement synchrotron utilisé dans le plan de l'orbite.



*Figure a4.2 : Géométrie de diffraction transverse.
Le champ magnétique est appliqué perpendiculairement
au plan de diffraction et dans le plan de l'échantillon
Les notations pour les polarisations sont données par convention,
par rapport à la surface de l'échantillon.*

Le transfert des polarisations, au vu des diverses dépendances angulaires données précédemment est telle que :

Contribution de Charge :	$\pi_i \rightarrow \pi_f$
	$\sigma_i \rightarrow \sigma_f$
Contribution Magnétique :	$\pi_i \rightarrow \pi_f$
	$\sigma_i \rightarrow 0$

La composante de la diffraction magnétique résonante se retrouve donc entièrement sur la polarisation π_f finale.

Le facteur de structure total s'écrit donc :

$$H(q) = S(q) \left[H'(q) (A_\sigma \hat{e}_\sigma + i \cos(2\theta) A_\pi \hat{e}_\pi) + \varepsilon H''(q) \sin(2\theta) A_\pi \hat{e}_\pi \right]$$

A_σ et iA_π désignent l'amplitude des polarisations linéaires incidentes qui sont déphasée de $\pi/2$ dans le cas du rayonnement synchrotron. ε peut prendre les valeurs +1 ou -1 selon

l'orientation du champ magnétique. Les vecteur $\mathbf{e}_\sigma$ et $\mathbf{e}_\pi$ désignent les états de polarisation linéaire finals.

On réécrit les facteurs de structure H' et H'' en séparant les parties réelles et imaginaires :

$$H'(q) = e^{\frac{iqn_a d_a}{2}} [F_R - iF_I]$$

$$H''(q) = e^{\frac{iqn_a d_a}{2}} [M_R - iM_I]$$

Au maximum d'un pic de Bragg d'ordre n , la condition de diffraction conduit à $q=2\pi n/\Lambda$.

On obtient alors :

$$\left| H^+ \left(\frac{2\pi n}{\Lambda} \right) \right|^2 = \left| S \left(\frac{2\pi n}{\Lambda} \right) \right|^2 \left[I_\sigma (F_R^2 + F_I^2) + I_\pi \left((F_R \cos 2\theta - M_I \sin 2\theta)^2 + (F_I \cos 2\theta + M_R \sin 2\theta)^2 \right) \right]$$

$$\left| H^- \left(\frac{2\pi n}{\Lambda} \right) \right|^2 = \left| S \left(\frac{2\pi n}{\Lambda} \right) \right|^2 \left[I_\sigma (F_R^2 + F_I^2) + I_\pi \left((F_R \cos 2\theta + M_I \sin 2\theta)^2 + (F_I \cos 2\theta - M_R \sin 2\theta)^2 \right) \right]$$

Le calcul du rapport d'asymétrie donne donc :

$$Ra = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} = \frac{2 \cos 2\theta \sin 2\theta [-F_R M_I + F_I M_R]}{\left(\cos^2 2\theta + \frac{I_\sigma}{I_\pi} \right) (F_R^2 + F_I^2) + \sin^2 2\theta (M_R^2 + M_I^2)}$$

En posant $\tau_L = \frac{I_\pi - I_\sigma}{I_\pi + I_\sigma}$, taux de polarisation linéaire, le rapport d'asymétrie en géométrie

transverse s'écrit finalement en fonction de τ_L :

$$Ra = \frac{2 \tan(2\theta) [F_I M_R - F_R M_I]}{\left(1 + \frac{(1 - \tau_L)}{(1 + \tau_L) \cos^2(2\theta)} \right) (F_R^2 + F_I^2) + \tan^2(2\theta) (M_R^2 + M_I^2)}$$

IV./ Géométrie longitudinale

La description de la géométrie longitudinale est donnée par la figure a.4.3. L'aimantation est orientée dans le plan de diffraction.

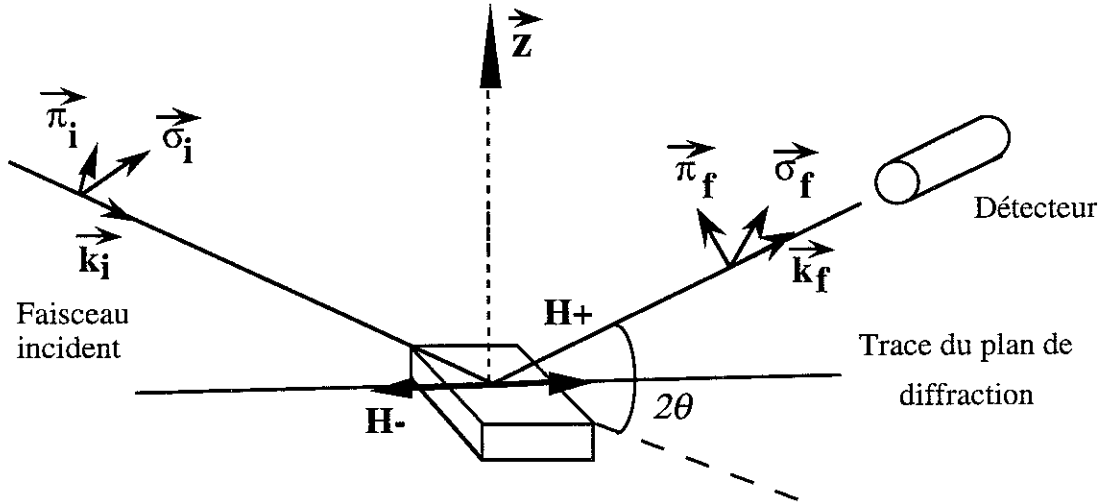


Figure a.4.3 : Géométrie de diffraction longitudinale
Le champ est appliqué parallèlement au plan de diffraction
et dans le plan de la multicouche.

Le transfert des polarisations lors de la diffraction conduit à :

$$\begin{aligned} \text{Contribution de charge :} \quad & \pi_i \rightarrow \pi_f \\ & \sigma_i \rightarrow \sigma_f \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{Contribution magnétique :} \quad & \pi_i \rightarrow \sigma_f \\ & \sigma_i \rightarrow \pi_f \end{aligned}$$

Les contributions de la diffraction magnétique se trouvent donc couplées aux contributions d'origine non magnétique, sur les deux états de polarisation du faisceau diffracté.

On obtient alors :

$$\begin{aligned} H_c(q) &= S(q)H'(q)[-A_\sigma \hat{e}_\sigma - i \cos(2\theta) A_\pi \hat{e}_\pi] \\ H_m(q) &= S(q)H''(q)[\varepsilon \cos(\theta) A_\pi \hat{e}_\sigma + i \varepsilon \cos(\theta) A_\sigma \hat{e}_\pi] \end{aligned}$$

De même que pour le cas transverse on pose :

$$H'(q) = e^{\frac{iqn_a d_a}{2}} [F_R - iF_I]$$

$$H''(q) = e^{\frac{iqn_a d_a}{2}} [M_R - iM_I]$$

Soit :

$$H^E(q) = S(q) \left[[-H'(q)A_\sigma + H''(q)\epsilon \cos(\theta)A_\pi] \hat{e}_\sigma + i[-H'(q)\cos(2\theta)A_\pi + H''(q)\epsilon \cos(\theta)A_\sigma] \hat{e}_\pi \right]$$

Au maximum d'un pic de Bragg d'ordre n , où la condition de diffraction conduit à $q=2\pi n/\Lambda$, on a :

$$I^E = |S(q)|^2 \left[[-H'(q)A_\sigma + H''(q)\epsilon \cos(\theta)A_\pi]^2 + [-H'(q)\cos(2\theta)A_\pi + H''(q)\epsilon \cos(\theta)A_\sigma]^2 \right]$$

Il convient alors de calculer $I^+ - I^-$ et $I^+ + I^-$, en séparant les amplitudes selon les deux états de polarisation :

$$\begin{aligned} I^+ - I^- &= |S(q)|^2 \left[-2 \cos(\theta) A_\sigma A_\pi (H' H''^* + H'^* H'') - 2 \cos(\theta) \cos(2\theta) A_\sigma A_\pi (H' H''^* + H'^* H'') \right] \\ I^+ + I^- &= |S(q)|^2 \left[2(A_\sigma^2 + \cos^2(\theta) A_\pi^2) (H' H'^*) + 2 \cos^2(2\theta) (A_\sigma^2 + A_\pi^2) (H'' H''^*) \right] \end{aligned}$$

Soit finalement le rapport d'asymétrie :

$$Ra = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} = \frac{-2 \cos \theta \left(\frac{1 + \cos(2\theta)}{2} \right) [H' H''^* + H'^* H''] A_\sigma A_\pi}{(A_\sigma^2 + A_\pi^2 \cos^2 2\theta) (H' H'^*) + (A_\sigma^2 + A_\pi^2) (\cos^2 \theta) (H'' H''^*)}$$

En notant que :

$$H' H'^* = F_R^2 + F_I^2$$

$$H'' H''^* = M_R^2 + M_I^2$$

$$H' H''^* + H'' H'^* = 2(F_R M_R + F_I M_I)$$

Le rapport d'asymétrie s'écrit donc pour la géométrie longitudinale :

$$R_a = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} = \frac{-4 \cos^3 \theta \sqrt{(I_\pi I_\sigma)} [F_R M_R + F_I M_I]}{(I_\pi \cos^2 2\theta + I_\sigma) (F_R^2 + F_I^2) + \cos^2 \theta (I_\pi + I_\sigma) (M_R^2 + M_I^2)}$$

V./ Absorption

Les corrections d'absorption sont très importantes en X-mous, à cause des forts coefficients d'absorption linéaire. Celles-ci peuvent également dépendre de l'état d'aimantation du matériau, et du degré de polarisation circulaire. Nous les explicitons donc ici.

Dans le cas d'un échantillon présentant une aimantation, la section efficace d'absorption s'écrit :

$$\sigma(\omega) = \sigma_o(\omega) + i(\hat{\epsilon} \times \hat{\epsilon}^*)(\mathbf{J})\sigma_1(\omega) + \frac{1}{2} \left[\langle (\epsilon \cdot \mathbf{J})(\epsilon^* \cdot \mathbf{J}) - (\epsilon^* \cdot \mathbf{J})(\epsilon \cdot \mathbf{J}) \rangle - \frac{1}{3} J(J+1) \right] \sigma_2(\omega)$$

où $\mathbf{J}$ est l'opérateur de moment, σ_o est l'absorption isotrope obtenue en l'absence d'aimantation, pour $\langle \mathbf{J} \rangle = 0$, σ_1 est la section efficace associée au dichroïsme circulaire et σ_2 celle associée au dichroïsme linéaire, en général négligeable devant σ_1 .

Le vecteur de polarisation ϵ , s'écrit en fonction de ses composante A_σ et A_π :

$$\hat{\epsilon} = (A_\sigma \hat{e}_\sigma + i A_\pi \hat{e}_\pi) \frac{1}{\sqrt{(A_\sigma^2 + A_\pi^2)}}$$

$$\hat{\epsilon} \times \hat{\epsilon}^* = \frac{2i A_\sigma A_\pi}{A_\sigma^2 + A_\pi^2} = i \tau_c \mathbf{k}$$

où $\mathbf{k}$ est la direction de propagation des photons

Donc le premier terme peut se réécrire sous la forme :

$$-\tau_c \langle \mathbf{J} \rangle \sigma_1(\omega)$$

Cas de la géométrie transverse : (cf figure A.4.2)

L'aimantation $\mathbf{J}$ est perpendiculaire aux vecteurs de propagation $\mathbf{k}$, et le dichroïsme circulaire est nul, si $A_g = 0$, ce qui est obtenu en se situant dans le plan de l'orbite circulaire des électrons (attention à l'inversion des conventions entre la dénomination des polarisations dans le référentiel du synchrotron et celui de l'échantillon). Par ailleurs, les termes $\varepsilon \cdot \mathbf{J}$, sont également nuls pour la polarisation π . Si l'on se restreint au cas où la polarisation σ est faible, le troisième terme de dichroïsme linéaire peut donc être négligé.

Dans ces conditions :

$$\sigma(\omega) = \sigma_o(\omega)$$

Il ne reste donc plus que l'absorption isotrope, qui ne dépend pas de l'aimantation du matériau.

Cas de la géométrie longitudinale : (cf figure A.4.3)

L'aimantation est dans le plan de diffraction. Elle fait un angle θ avec les vecteurs de propagation $\mathbf{k}_i$ et $\mathbf{k}_r$. Dans cette géométrie la section efficace d'absorption se réduit à :

$$\sigma(\omega) = \sigma_o(\omega) - \varepsilon \tau_c \cos(\theta) J \sigma_1(\omega) - \frac{1}{3} J(J+1) \sigma_2(\omega)$$

En effet comme $\mathbf{J}$ est parallèle à $\mathbf{k}$, $\mathbf{J} \cdot \varepsilon = 0$

De manière rigoureuse il faudrait prendre en compte l'absorption circulaire différente pour les deux orientations de champ. Cette contribution a été négligée dans ce travail de par la complexité de sa prise en compte dans une approche cinématique.

