

Aspects structuraux et magnétiques de cristaux de ZnO et de films $Zn_{1-x}M_xO$ (M=Co, Mn) épitaxiés par ablation laser sur substrats de ZnO(00.1)

Y. Zheng, J.C. Boulliard, D. Demaille, A. Soyer, J.F. Pétroff

Laboratoire de Minéralogie – Cristallographie,
Universités Pierre et Marie Curie (Paris VI) et Paris VII, CNRS UMR 7590,
Case 115, 4 place Jussieu, 75252 Paris Cedex 05, France.
Tel.: 33-1-44275212 ; E-mail : zheng@lmcp.jussieu.fr

La qualité cristalline de cristaux de ZnO de type SCVT (Seeded Chemical Vapour Transport) et hydrothermal a été analysée par topographie aux rayons X et diffraction des rayons X [1]. Les cristaux de ZnO-SCVT sont constitués de sous-grains de quelques centaines de microns en tailles (Fig.1b). Les sous-grains sont intrinsèquement d'une bonne cristallinité, par contre ils présentent une mosaïcité avec une désorientation de presque 1 degré sur une lame de 1 cm de largeur (Fig.2). Les cristaux de ZnO hydrothermal sont monocristallins (Fig.1a et Fig.2) et les principaux défauts observés sont des dislocations regroupées en bandes dans les plans de glissement $\{10.0\}$. Ainsi, les cristaux de ZnO hydrothermal sont mieux appropriés que ceux de SCVT, en tant que substrats pour l'homoépitaxie de films $Zn_{1-x}M_xO$ (M=Co, Mn).

Des films de $Zn_{1-x}M_xO$ ont été élaborés par ablation laser sur ZnO(00.1) hydrothermal. Des films de $Zn_{1-x}Co_xO$ de haute qualité ont été obtenus, tandis que l'insertion d'atomes Mn semble perturber d'avantage la matrice de ZnO (Fig.3). Une augmentation des bandes de dislocations a été observée en topographie en fonction des contraintes d'épitaxie, ce qui démontre une relaxation partielle des contraintes dans les films à travers les dislocations (Fig.4). Par ailleurs, des contraintes élastiques résiduelles, à longue portée, ont été mesurées par la courbure des échantillons et des contours de Bragg en topographie en réflexion en faisceau monochromatique. La mesure des contraintes emmagasinées dans les films fournit un paramètre important qui devrait être corrélé avec d'autres propriétés physiques de ces films. Dans le cas de $Zn_{1-x}Co_xO$, l'ordre atomique dans le film a été sondé par ondes stationnaires des rayons X, en analysant les fluorescences de Zn $K\alpha$ et Co $K\alpha$ à la traversée d'une réflexion de Bragg du film [2]. Il a été démontré que d'une part le film épouse bien la polarité du substrat et que d'autre part les atomes de Co occupent les sites substitutionnels de Zn.

Des mesures magnétiques en Squid ont été effectuées sur des films de $Zn_{1-x}Co_xO$. Un comportement paramagnétique a été observé dans ces films avec une faible magnétisation (une fraction de μ_B par atome Co). Un comportement ferromagnétique a été trouvé uniquement dans le cas où des atomes de Al ont été insérés dans le film (Fig.5). Néanmoins, le caractère ferromagnétique reste faible dans ce cas avec une faible rémanence et un champ coercitif d'environ 109 Oe et un moment à saturation qui correspond à 0,11 μ_B/Co . La faible magnétisation et une certaine variabilité des mesures magnétiques nous laissent penser qu'il n'y pas évidence d'un ferromagnétisme intrinsèque dans ces films $Zn_{1-x}Co_xO$ [1,3].

[1] Y. Zheng, J.C. Boulliard, D. Demaille, Y. Bernard & J.F. Pétroff, Study of ZnO crystals and $Zn_{1-x}M_xO$ (M=Co, Mn) epilayers grown by pulsed laser deposition on ZnO(00.1) substrate, *J. Crystal Growth*, to be published.

[2] Y. Zheng, J.C. Boulliard, A. Soyer & J.F. Pétroff, X-ray standing waves in a heterostructure - application to a $Zn_{1-x}Co_xO$ epilayer on ZnO(00.1)-O substrate, *Acta Cryst.*, **A60** (2004), 339-350.

[3] N. Jedrecy, H.J. von Bardeleben, Y. Zheng & J.L. Cantin, Electron paramagnetic resonance study of $Zn_{1-x}Co_xO$: a predicted high-temperature ferromagnetic semiconductor, *Phys. Rev.*, **B69** (2004), R041308-1.

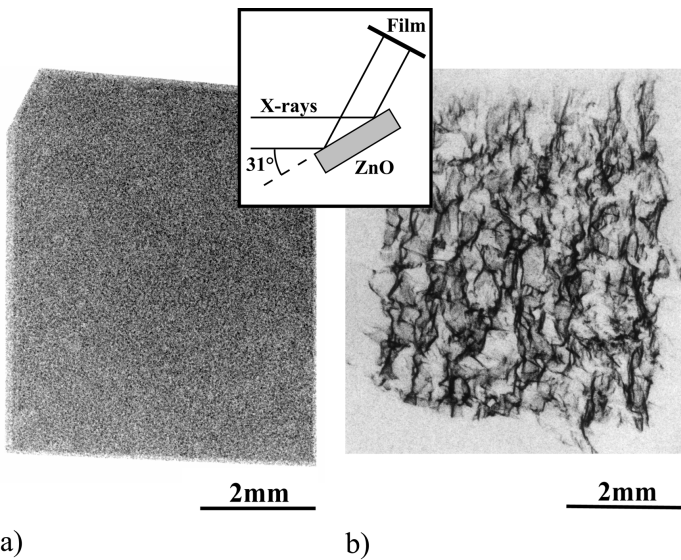


Fig.1 Topographies en réflexion en rayonnement synchrotron des cristaux de ZnO hydrothermal (a) et SCVT (b)

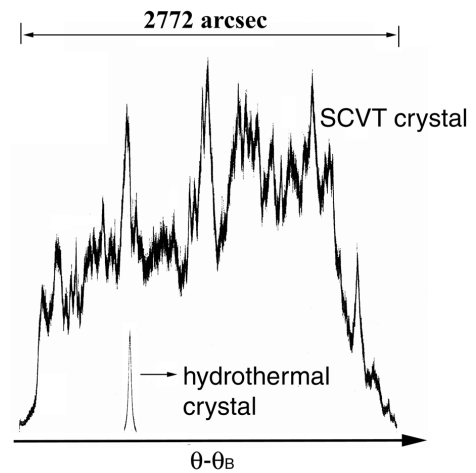


Fig.2 Profils de réflexion des cristaux de ZnO hydrothermal (a) et SCVT (b); réflexion 004, $\lambda = 1.3 \text{ \AA}$

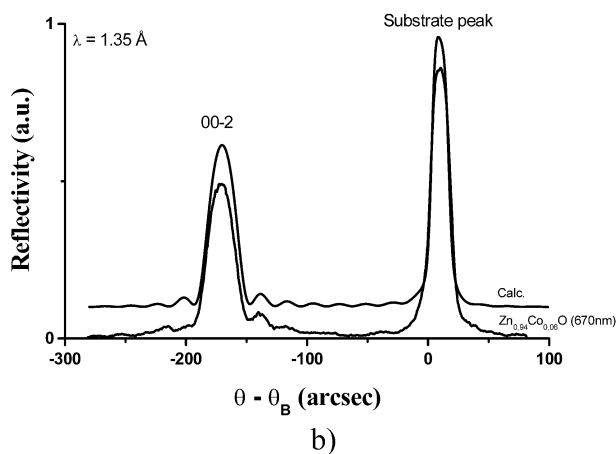
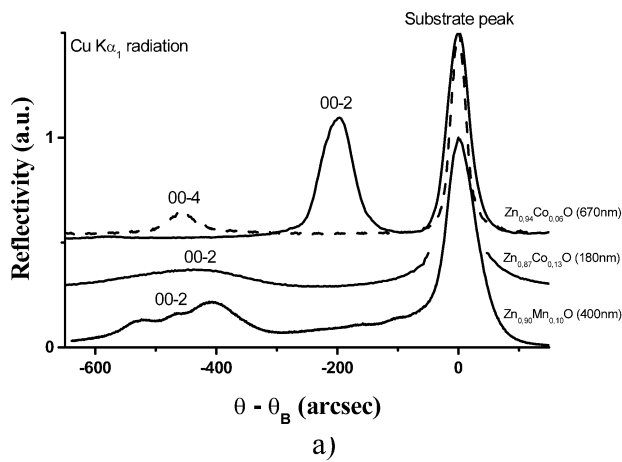


Fig.3 Profils de réflexion des films Zn_{1-x}M_xO (M=Co ou Mn). a) radiation Cu $K\alpha_1$, monochromateur ZnO. b) courbes expérimentale et calculée pour Zn_{0.94}Co_{0.06}O : réflexion 002, $\lambda = 1.35 \text{ \AA}$, monochromateur Si 111 channel-cut à 4 réflexions.



Fig.4 Topographie en transmission du film Zn_{0.9}Mn_{0.1}O (400nm) : réflexion 110, radiation Mo $K\alpha_1$.

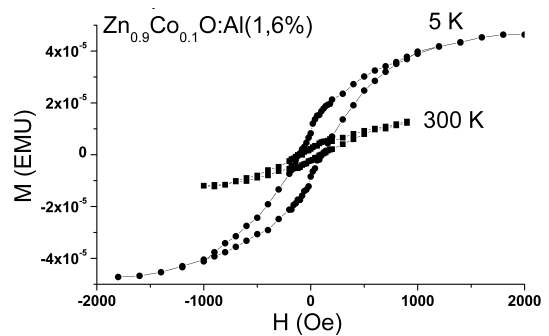


Fig.5 Mesure magnétique SQUID du film Zn_{0.9}Co_{0.1}O:Al(1.6%) (200nm) à 5 et 300K.