

Sur les Possibilités d'Observation de Lignes de Vortex en Microscopie Electronique par Transmission

PAR C. COLLIEX ET B. JOUFFREY

Laboratoire de Physique des Solides associé au C.N.R. S. Faculté des Sciences, 91 Orsay, France

ET M. KLEMAN

I.R.S.I.D., 78 Saint-Germain-en-Laye, France

(Reçu le 29 avril 1968)

A thin superconducting film when placed under a perpendicular magnetic field is supposed to contain a triangular lattice of flux lines. A study is made from a theoretical point of view of the contrast of vortex lines parallel to the electron beam. The tangential component of the field at the specimen surface may be responsible for the deflection of the electrons which is estimated to be of the order of 10^{-6} radians. This deviation from the incidence angle is too weak to allow for the visibility of the fluxoids by diffraction contrast effects, even under particularly favourable conditions. The various factors which may increase the possibilities of imaging the vortex lines are reviewed during the calculation.

La réalisation dans un certain nombre de laboratoires de porte-objets permettant l'observation d'échantillons refroidis à des températures voisines de $4,2^\circ\text{K}$ a permis d'envisager un champ d'applications nouvelles – en particulier la mise en évidence des lignes de vortex dans un supraconducteur de seconde espèce.

Si aucun résultat expérimental positif ne semble avoir été publié, la méthode utilisée par Essmann & Trauble (1967) n'utilise pas directement la microscopie électronique par transmission, plusieurs auteurs ont étudié d'un point de vue théorique la diffraction des électrons par des lignes de flux magnétique.

Cependant à notre connaissance (Yoshioka, 1966; Guigay & Bourret, 1967; Goringe & Jakubovics, 1967; Wohlleben, 1967) tous considèrent une ligne de vortex parallèle à la surface de l'échantillon (donc perpendiculaire au faisceau incident) et utilisent l'effet Aharonov & Bohm (1959) suivant lequel une ligne de vortex constitue un objet déphasant.

Dans les expériences que nous poursuivons actuellement (Colliex & Jouffrey, 1968) l'échantillon est plongé dans le champ magnétique de l'objectif et soumis par conséquent à un champ perpendiculaire. Quel contraste peut-on prévoir dans ces conditions?

1. Propriétés magnétiques d'un film mince en champ perpendiculaire

Définissons pour un corps supraconducteur de seconde espèce (Nb_3Sn ou Nb_3Al par exemple), supposé monocristallin (ou du moins à gros grains) les grandeurs caractéristiques de la supraconductivité: λ = profondeur de pénétration = 1000 \AA et ξ = longueur de cohérence = 30 \AA , d'où un rapport $K = \lambda/\xi$ élevé de l'ordre de 30. H_{c1} = champ de première pénétration = 100 G et H_{c2} = champ critique supérieur = 100000 G .

(1) Cas d'un échantillon massif

Soumis à un champ perpendiculaire uniforme H_0 compris entre H_{c1} et H_{c2} de la part de l'objectif, un échantillon relativement épais (épaisseur $e \gg \lambda$) est traversé par un réseau triangulaire de lignes de vortex. On peut trouver dans la thèse de Matricon (1966) tous les résultats nécessaires pour représenter la pénétration du champ magnétique suivant ces lignes de flux privilégiées. On considère une ligne de vortex isolée comme un tube de champ magnétique uniforme de rayon λ transportant un quantum de flux $\varphi_0 = ch/2e = 2.10^{-7} \text{ G.cm}^2$. En fait le champ magnétique est maximum au centre et les supracourants qui circulent autour de la ligne l'écrantent rapidement. A une distance $q \gg \xi$ du centre il est donné par $H(q) = (\varphi_0/2\pi\lambda^2)K_0(q/\lambda)$ où K_0 est une fonction de Bessel d'ordre zéro d'argument imaginaire (de Gennes, 1966). On définit H_m par:

$$\varphi_0 = 2\pi \int_0^\infty H(q) q dq = \pi\lambda^2 H_m.$$

Dans le cas qui nous intéresse pour nos expériences $H_{c1} \lesssim H_0 \ll H_{c2}$ la densité de lignes de vortex $n = H_0/\varphi_0$

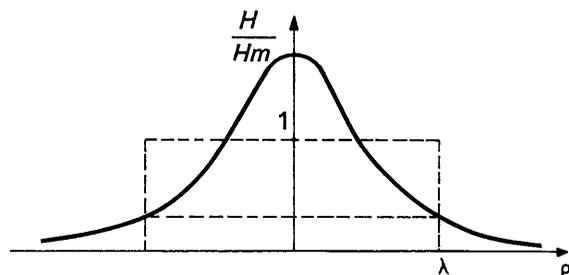


Fig. 1. Distribution du champ magnétique à l'intérieur d'une ligne de vortex isolée.

est faible. La distance entre fluxoids est donc de l'ordre de d tel que $d^2 = \varphi_0/H_0$ (plus exactement $d^2 = (2/\sqrt{3})(\varphi_0/H_0)$ dans le cas d'un réseau triangulaire). Ainsi pour :

$$\begin{aligned} H_0 &= 150 \text{ G} & d &\sim 4\lambda \\ H_0 &= 300 \text{ G} & d &\sim 3\lambda \\ H_0 &= 600 \text{ G} & d &\sim 2\lambda \text{ (auquel cas les} \\ & & & \text{lignes deviennent} \\ & & & \text{jointives).} \end{aligned}$$

(2) Cas d'une lame mince

On appelle généralement film mince au point de vue des propriétés magnétiques une couche d'épaisseur $e \ll \lambda$. En fait dans des expériences de microscopie électronique nous avons des échantillons d'épaisseur variable de l'ordre de une à plusieurs profondeurs de pénétration. Nous sommes donc à la limite de ce que l'on considère comme un film mince.

La structure magnétique de ces films sous champ perpendiculaire n'a pas encore été observée à notre connaissance mais a fait l'objet d'un certain nombre d'études théoriques (Maki, 1965; Pearl, 1965; Fetter & Hohenberg, 1967).

Du fait même de la géométrie envisagée, on est obligé d'introduire un facteur démagnétisant N qui vaut pour un disque plat $N = [1 - (\pi/2)(e/R)]$ où R est une dimension typique perpendiculaire à e . Le champ de première pénétration est alors réduit à: $H_{c1}^0 = (1-N) \cdot H_{c1}$ qui se comporte comme e/R pour un disque plat ($e/R \sim 10^{-3}$). Donc même en champ quasiment nul, un film mince présente une structure de vortex. Entre H_{c1}^0 et H_{c1} les lignes de vortex apparaissent progressivement et de façon très mal définie; mais il est certain qu'elles sont très éloignées les unes des

autres et on peut considérer valablement la ligne de vortex isolée dans ce cas. Il est admis généralement, à partir de considérations énergétiques, que la ligne de vortex transporte un quantum de flux. Ceci ne semble plus imposé quand on étudie la première pénétration du champ magnétique dans la lame supraconductrice. Si la ligne transporte ν quanta de flux la distribution du champ devient:

$$H(\varrho) = \frac{\nu\varphi_0}{2\pi\lambda^2} K_0\left(\frac{\varrho}{\lambda}\right).$$

Néanmoins nous avons supposé dans le calcul qui suit que ν était égal à 1.

En champ $H_{c1} \lesssim H_0 \ll H_{c2}$, les propriétés distinctives des fluxoids proviennent de leurs interactions électromagnétiques à longue distance; ils interagissent principalement à travers l'espace libre de chaque côté du film où aucun courant d'écran ne peut circuler. Ce qui a pour effet de modifier la portée du champ magnétique autour d'une ligne de vortex: $A = 2\lambda^2/e$ profondeur effective de pénétration au lieu de λ .

Enfin d'après Fetter & Hohenberg (1967) la structure en réseau triangulaire est toujours stable dans le cas des faibles densités de fluxoids n ; c'est-à-dire $d \gg A$, d étant le paramètre du réseau de vortex tel que

$$n = \frac{B}{\varphi_0} = \frac{2}{d^2\sqrt{3}}.$$

Il est bien entendu que ceci ne s'applique qu'aux échantillons parfaits où aucun défaut cristallin ne vient perturber le comportement des lignes de vortex.

2. Modèle choisi

(1) Cas d'une ligne de vortex isolée

D'après ce qui précède, si nous supposons notre échantillon d'épaisseur $e = 2\lambda$ (ce qui entraîne $A = \lambda$), nous pouvons considérer une ligne de vortex isolée de rayon λ , vers laquelle convergent les lignes de flux magnétique recueillies sur une région de rayon $\alpha\lambda$. Il est raisonnable de prendre une zone de transition d'épaisseur égale à $\alpha\lambda$. La conservation du flux entraîne

$$\pi\alpha^2\lambda^2 H_0 = \varphi_0 \Rightarrow \alpha^2 H_0 = \text{Cte} = H_m.$$

La convergence des lignes de champ avant l'échantillon modifie la trajectoire des électrons incidents: les conditions d'incidence sont donc variables d'un point à l'autre de la surface de la lame, ce qui entraîne des conditions de diffraction différentes.

Le champ dans la lame elle-même contribue à modifier la trajectoire des électrons mais nous montrerons que cette contribution est faible devant celle due au champ extérieur.

Nous calculerons le contraste à la sortie de la lame: c'est ce plan qui est observé habituellement en microscopie électronique. Les lignes de fuite à la sortie de l'échantillon ne modifient pas le contraste, mais simplement la qualité optique de l'image.

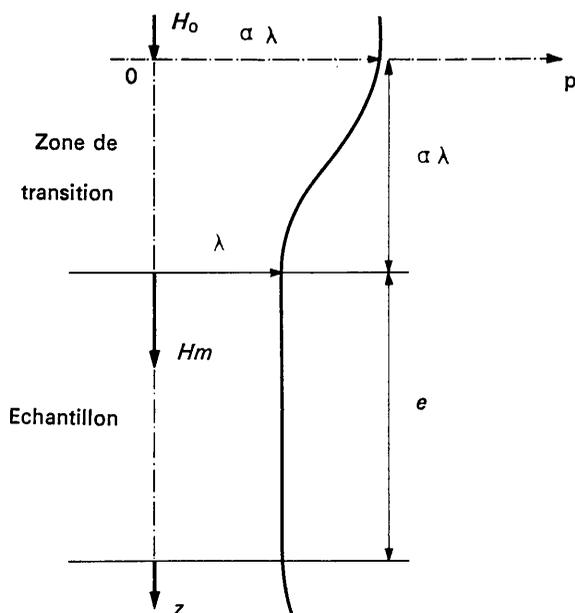


Fig. 2. Modèle de représentation du champ au voisinage de la ligne de vortex.

Nous avons adopté le modèle suivant: (a) pour $z \leq 0$, le champ magnétique est uniforme et dirigé suivant Oz soit, en utilisant les notations habituelles en coordonnées cylindriques:

$$\begin{cases} H_\rho = 0 \\ H_\theta = 0 \\ H_z = H_0 \end{cases}$$

(b) pour $\alpha\lambda \leq z \leq \alpha\lambda + e$, c'est-à-dire dans l'échantillon, le champ est nul en dehors de la ligne de vortex et uniforme à l'intérieur:

$$\begin{cases} H_\rho = 0 \\ H_\theta = 0 \\ H_z = H_m = \alpha^2 H_0 \text{ pour } \rho < \lambda \\ = 0 \text{ pour } \rho > \lambda \end{cases}$$

(c) pour $0 < z < \alpha\lambda$, soit pour la zone intermédiaire, on a comme dans les deux régions décrites ci-dessus la composante $H_\theta = 0$. De plus H_z est uniquement fonction de la cote z , ce qui signifie que nous remplaçons la distribution de la Fig. 1 par une fonction en créneau et $H(z)$ est donc constant pour une cote donnée à l'intérieur de l'enveloppe des lignes de champ, et nul à l'extérieur. Donc:

$$\begin{aligned} H(z) &= \text{Cte pour un } z \text{ donné et } 0 \leq \rho \leq \rho_m(z) \\ H(z) &= 0 \text{ quelque soit } z \text{ pour } \rho > \rho_m(z). \end{aligned}$$

La conservation de flux à l'intérieur du cylindre de hauteur dz et de rayon $\rho(z)$ entraîne en négligeant les termes petits et compte tenu des remarques précédentes,

$$H_\rho = -\frac{1}{2} \rho \frac{dH_z}{dz}.$$

On a ainsi les composantes

$$\begin{cases} H_\rho = -\frac{1}{2} \rho \frac{dH_z}{dz} & (1) \\ H_\theta = 0 & (2) \\ H_z = H(z) & (3) \end{cases}$$

D'autre part les conditions aux limites suivant z sont: - pour $z=0$, $H_z = H_0$; - pour $z=\alpha\lambda$, $H_z = H_m = \alpha^2 H_0$, puisque $\pi\alpha^2\lambda^2 H_0 = \pi\lambda^2 H_m$.

Trajectoire des électrons

La loi de Lorentz en coordonnées cylindriques conduit aux équations du mouvement suivantes:

$$m \left[\frac{d^2 \rho}{dt^2} - \rho \left(\frac{d\theta}{dt} \right)^2 \right] = -\frac{e}{c} \rho \frac{d\theta}{dt} H_z \quad (4)$$

$$m \left[\rho \frac{d^2 \theta}{dt^2} + 2 \frac{d\rho}{dt} \cdot \frac{d\theta}{dt} \right] = -\frac{e}{c} \left(\frac{dz}{dt} H_\rho - \frac{d\rho}{dt} H_z \right) \quad (5)$$

$$m \frac{d^2 z}{dt^2} = \frac{e}{c} \rho \frac{d\theta}{dt} H_\rho. \quad (6)$$

Afin d'effectuer l'intégration de ces équations, nous supposons à-priori que $d\rho/dt$ et $\rho(d\theta/dt) \ll (dz/dt) \sim v$,

ce qui semble justifié pour des électrons de 100 kV. $d\rho/dt$ est au moins 10^5 fois plus faible que dz/dt et quoique H_z soit à peu près 10 fois plus grand que la composante radiale H_ρ le terme $(d\rho/dt)H_z$ est très inférieur à $(dz/dt)H_\rho$. Nous supposons aussi que l'effet focalisant des lignes de fuite est négligeable: celles-ci fournissent à l'électron une impulsion purement tangentielle L'équation (4) nous permet de comparer $(d\rho/dt)/v$ et $\rho(d\theta/dt)/v$ nous trouvons un rapport inférieur à 10^{-3} donc $(\Delta\theta_r) \ll (\Delta\theta_t)$. Dans ces conditions d'approximation, l'intégration de l'équation (5) conduit à

$$\Delta\theta_t = \frac{\rho}{v} \frac{d\theta}{dt} = \frac{e}{2mc} \cdot \frac{\rho}{v} \cdot (H_z - H_0).$$

Cet angle de déviation est maximum sur la surface d'entrée de l'échantillon et au bord de la ligne de vortex pour $\rho = \lambda$.

$$(\Delta\theta_t)_{\max} = \frac{e}{2mc} \cdot \frac{\lambda}{v} (\alpha^2 - 1) H_0$$

avec

$$\alpha^2 H_0 = \text{Cte} \sim 600 \text{ G}.$$

Pour augmenter $(\Delta\theta_t)_{\max}$, on a donc intérêt à travailler en champ aussi faible que possible. Expérimentalement, il semble correct d'adopter une valeur $H_0 = 300 \text{ G}$ (réalisée en soulevant l'échantillon), valeur pour laquelle la résolution du microscope est encore suffisamment bonne et les lignes de vortex bien séparées.

Nous calculons dans ce cas un $(\Delta\theta_t)_{\max} = 1,5 \cdot 10^{-6}$ rad.

Corrections à l'intérieur de la lame

Le champ magnétique supposé uniforme à l'intérieur de la ligne de vortex produit sur les électrons un effet cyclotron, c'est-à-dire leur trajectoire va avoir tendance à s'enrouler sur un cylindre, tout en conservant une inclinaison constante par rapport à l'axe vertical. Mais ce mouvement de rotation est si faible, bien inférieur en tout cas à celui dû à l'incidence oblique des

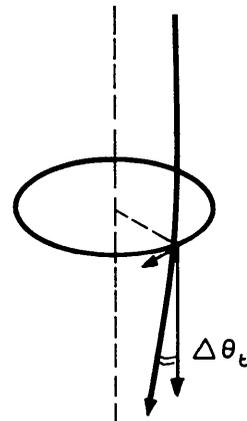


Fig. 3. Déviation des électrons sur la face d'entrée de la lame.

électrons (l'angle de Bragg correspondant à une réflexion courante est de 10^{-2} rad), qu'il ne modifie pas les conditions de réflexion au fur et à mesure que l'électron pénètre dans l'échantillon et sera par conséquent sans influence sur le contraste observé.

(2) Cas du réseau de lignes de vortex

Dans le modèle utilisé, si nous plaçons aux noeuds d'un réseau déterminé, des tubes de champ magnétique uniforme, les lignes de vortex, séparés par du matériau

supraconducteur parfait (avec effet Meissner), nous pouvons avoir facilement une idée qualitative des effets de déviation à prévoir. Suivant une ligne joignant deux coeurs, l'angle de déviation ($\Delta\theta_t$) est maximum sur la périphérie d'une ligne de vortex ($\varrho = \lambda$); il décroît régulièrement entre $\varrho = \lambda$ et $\varrho = \alpha\lambda$ jusqu'à ce point à égale distance des deux coeurs. Il se remet à croître lorsque nous approchons du second vortex mais il est de sens opposé.

En fait il semble logique de traduire la décroissance exponentielle du champ pour $\varrho > \lambda$ en remplaçant la courbe en dents de scie obtenue dans notre modèle en crèneau, par une fonction sinusoïdale possédant les caractéristiques suivantes: (a) mêmes points d'annulation de la fonction $\Delta\theta_t(\varrho)$ pour $\varrho = 0, \alpha\lambda, 2\alpha\lambda$. (b) même pente à l'origine car c'est dans ce domaine que notre modèle est le plus valable. Donc:

$$\Delta\theta_t = (\Delta\theta_t)^\circ \sin \frac{\pi\varrho}{\alpha\lambda}$$

Le problème est de déterminer maintenant la valeur $(\Delta\theta_t)^\circ$ maximale de cette fonction. Si l'on tient compte de la condition de tangence énoncée ci-dessus, nous sommes amenés à prendre $(\Delta\theta_t)^\circ \sim 2/\pi(\Delta\theta_t)_{\max} \sim 10^{-6}$ rad. C'est cette valeur que nous adopterons dans la suite pour nos calculs de contraste.

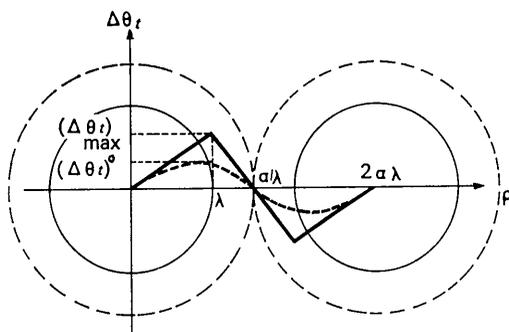


Fig. 4. Déviation des électrons suivant une ligne joignant deux coeurs de vortex.

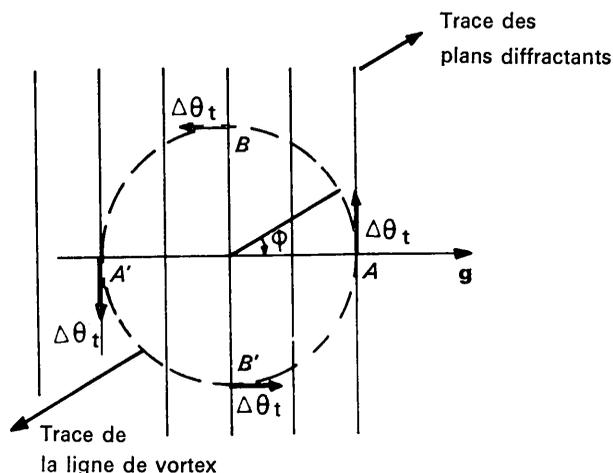


Fig. 5. Orientation des plans diffractants par rapport à la ligne de vortex.

3. Effets de contraste

Dans la théorie à deux ondes avec une famille de plans diffractants repérés par g , l'écart à l'incidence de Bragg défini par $\Delta s = g \cdot \Delta\theta$ sera maximum en B et B' et pratiquement nul en A et A' . Donc en tout point de la surface d'entrée, sur une ligne joignant deux coeurs par exemple, on peut écrire:

$$\Delta s_{\max} = (\Delta\theta_t)^\circ \cdot 1/a \cdot \sqrt{h^2 + k^2 + l^2} \cdot \sin \varphi \sin \frac{\pi\varrho}{\alpha\lambda}$$

Pour du niobium $a \sim 3 \cdot 10^{-8}$ cm. On calcule donc: $\Delta s_{\max} \sim 50 \cdot \sqrt{h^2 + k^2 + l^2} \text{ cm}^{-1}$ pour $\varphi = \pi/2$, c'est-à-dire en B et pour $\varrho = \alpha\lambda/2$, c'est-à-dire à une distance du coeur légèrement inférieure au rayon de la ligne de vortex. Mais $\Delta s = 0$ pour $\varphi = 0$, c'est-à-dire en A et A' .

Il y aura une ligne de non-contraste parallèlement à la direction de g , s sera positif pour $\varphi = \pi/2$ et négatif pour $\varphi = -\pi/2$. On voit aussi à partir de ces formules qu'il y aura intérêt à utiliser des réflexions lointaines à grand vecteur g pour espérer observer un contraste provenant des lignes de vortex.

Nous introduisons cet écart à l'angle d'incidence dans les formules de la théorie dynamique avec absorption anormale. Le calcul a été effectué dans le cas d'une lame de niobium d'épaisseur $4\xi_g$ observée en fondclair avec une réflexion 420 pour laquelle $\xi_g = 1025 \text{ \AA}$. Le contraste est maximum pour $-0,2 \leq w \leq 0$ où $w = s \cdot \xi_g$ et il a été évalué dans ce cas à 0,5% =

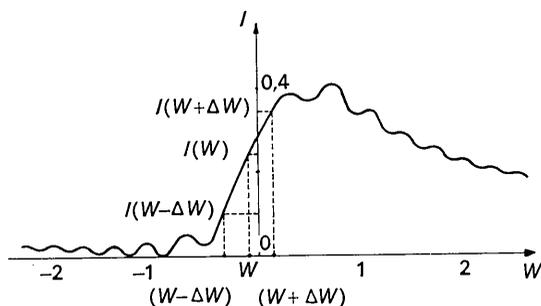


Fig. 6. Intensité transmise calculée dans le cadre de la théorie dynamique ($\xi_g/\xi_g' = 10$).

$$[I(w + \Delta w) - I(w - \Delta w)]/I(w)$$

Comme on admet ordinairement le contraste décelable sur le cliché du microscope à 10%, il semble donc très improbable avec la géométrie envisagée (champ perpendiculaire et un seul quantum de flux par ligne) de pouvoir mettre en évidence les lignes de vortex. Quoique l'absorption ne soit pas introduite d'une manière très rigoureuse, les ordres de grandeur obtenus sont significatifs.

4. Conclusion

Contrairement aux parois magnétiques qui sont visibles par contraste de diffraction dans des conditions particulièrement favorables (effet de zigzag et effet de marche sur des contours d'extinction), il ne semble pas, étant donné la faiblesse des angles de déviation mis en jeu par les inhomogénéités du champ, qu'il puisse en être de même pour les lignes de vortex. Ce qui expliquerait le peu de succès des expériences à l'heure actuelle.

Il est peut-être possible également que les régions observées soient trop près des bords de l'échantillon pour que le flux soit distribué en lignes de vortex.

Le calcul que nous avons effectué, pour une observation en fond clair nous permet, cependant, de prévoir l'image qui serait observée si nous disposions d'un récepteur particulièrement sensible aux variations de contraste. *i. e.* ligne de non contraste avec d'une

part une auréole semi-circulaire plus sombre, et d'autre part une auréole semi-circulaire plus claire, que le fond continu.

Nous n'avons pas effectué les calculs en fond noir mais il est probable qu'étant donnée la faible intensité du fond continu en fond noir ou en utilisant les électrons diffusés hors des taches de Bragg le contraste pourrait atteindre une valeur plus importante mais qu'il est difficile d'évaluer.

Références

- AHARONOV, Y. & BOHM, D. (1959). *Phys. Rev.* **115**, 485.
 COLLIEUX, C. & JOUFFREY, B. (1968). À paraître.
 ESSMANN, U. & TRAÜBLE, H. (1967). *Physics Letters*, **24A**, 10, 526.
 FETTER, A. L. & HOHENBERG, P. C. (1967). *Phys. Rev.* **159**, 330.
 GENNES, P. G. DE (1966). *Superconductivity of Metals and Alloys*, p. 59. Edited by Benjamin.
 GORINGE, M. J. & JAKUBOVICS, J. P. (1967). *Phil. Mag.* **15**, 134, 393.
 GUIGAY, J. P. & BOURRET, A. (1967). *C. r. Acad. Sci. Paris*, **264B**, 138.
 MAKI, K. (1965). *Ann. Phys., New York*, **34**, 363.
 MATRICON, J. (1966). Thèse, Orsay.
 PEARL, J. (1965). *Low Temperature Physics*, L.T. 9. Part A, 566.
 WOHLLEBEN, D. (1967). *J. Appl. Phys.* **38**, 8, 33.
 YOSHIOKA, H. (1966). *J. Phys. Soc. Japan*, **21**, 5, 948.