

Structure atomique et microstructures de films minces de BiFeO₃ “super-quadratique” révélées par STEM-ABF/HAADF et EELS

Frédéric Pailloux¹, Martin Couillard^{2,*}, Wajdi Saidi¹, Stéphane Fusil³, Manuel Bibes³, Agnès Barthélémy³, Gianluigi A. Botton² et Jérôme Pcaud¹

¹ Institut Pprime – UPR 3346 CNRS/Université de Poitiers, Dpt Physique et Mécanique des Matériaux Bât. SP2MI – 86962 CHASSENEUIL - FRANCE. Email: frederic.pailloux@univ-poitiers.fr

² CCEM/Brockhouse Institute for Materials Research - McMaster University 1280 Main Street West, Hamilton, ON L8S4M1- CANADA.

³ Unité Mixte de Physique CNRS/Thalès – Campus Ecole Polytechnique 1Ave Fresnel – 91767 Palaiseau - FRANCE.

*now at NRC Canada, 1200Montreal road, Ottawa, ON, K1A0R6- CANADA.

L'élaboration de films minces de BiFeO₃ (BFO) sur des substrats présentant un fort désaccord paramétrique, tel que LaAlO₃, conduit à la stabilisation de phases “super-quadratiques” dont la maille élémentaire présente un rapport d'aspect *c/a* géant, proche de 1.24 [1]. En fonction de l'épaisseur des films minces considérés, différentes phases peuvent coexister [2]. Malgré les nombreuses études menées récemment, la structure atomique de la phase “super-quadratique” n'a pu être élucidée expérimentalement.

Dans cette étude, nous revisitons la structure atomique des films minces de BFO (8nm et 56 nm d'épaisseur) fortement contraints et analysons leurs microstructures. La microscopie électronique en transmission à balayage (STEM) corrigée des aberrations de sphéricité est mise en œuvre pour imager la position des atomes. L'analyse quantitative des déformations est obtenue par l'analyse du déphasage géométrique des images STEM-HAADF. En outre, la spectroscopie de perte d'énergie des électrons (EELS) a été utilisée pour préciser ces résultats. La phase monoclinique *Cm*, suggérée par la diffraction électronique et prédite par des calculs *ab initio* [3], est confirmée par les images STEM obtenues en mode fond clair annulaire (ABF). La Figure 1 a été obtenue par analyse statistique multivariée (PCA) d'une image STEM-ABF. Elle montre les positions relatives des atomes de Bi, Fe et O, confirmant la réorganisation des octaèdres FeO₆ en pyramides FeO₅; l'alternance de la direction d'inclinaison du grand axe de ces pyramides d'une maille à l'autre, caractéristique de la structure *Cm*, est également mise en évidence (Fig. 1b). Dans le cas du film de 56nm d'épaisseur, des nano-macles sont observées. L'EELS a été employée pour confirmer le caractère abrupt des interfaces film/substrat. La comparaison des seuils O K (Fig. 2a) et Fe L₂₃ obtenus sur les différents échantillons fait apparaître de subtiles modifications de leur structures fines. La cartographie de ces structures fines (Fig. 2b) montre une évolution de la structure électronique du film de 8nm d'épaisseur alors qu'il semble être monocristallin. Ceci suggère une distorsion particulière de la maille élémentaire, non décelée par l'imagerie atomique, dans la partie la plus contrainte du film mince [4].

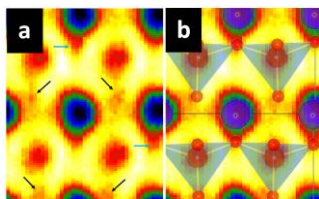


Fig. 1a Image STEM-ABF traitée par PCA ; les flèches indique les positions des atomes d'O. Fig. 1b Superposition du modèle atomique de la phase Cm sur la Figure 1a ; les atomes de Bi (en mauve) sont distants d'environ 0,4 nm.

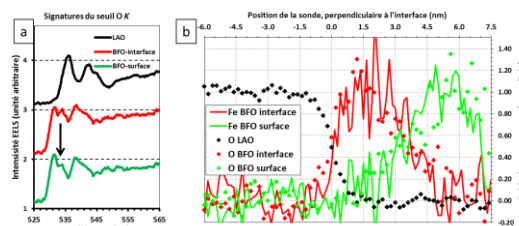


Fig. 2a) Structures fines caractéristiques du seuil O K dans le film de BiFeO₃ de 8nm d'épaisseur : la flèche pointe le changement d'intensité du second pic après le seuil. Fig. 2b) Cartographie des structures fines des seuils O K et Fe L₂₃ montrant la présence de deux signatures distinctes (en rouge et vert) dans le film mince de BiFeO₃ ; l'interface film/substrat est située à l'abscisse 0.

Références

- [1] H. Béa et al., *Phys. Rev. Lett.*, **102** (2009), 217603.
- [2] I.C. Infante et al., *Phys. Rev. Lett.*, **107** (2011), 237601.
- [3] O. Diéguez et al., *Phys. Rev. B*, **83** (2011), 0940105.
- [4] F. Pailloux et al. *Phys Rev B*, **89** (2014), 104106.