

THÈSES

présentées à la

FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR ÈS-SCIENCES PHYSIQUES

par

Claire SCHLENKER

1^{re} thèse

COUPLAGE FERRO-ANTIFERROMAGNÉTIQUE DANS LES COUCHES MINCES - SYSTÈME Co - CoO

2^e thèse

PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ

Soutenues le 18 mars 1970, devant la Commission d'Examen

MM. L. NÉEL

Président

B. DREYFUS

G. AUBERT

B.K. CHAKRAVERTY

} *Examineurs*

Doyen honoraire : Monsieur M. MORET
Doyen : Monsieur E. BONNIER

PROFESSEURS TITULAIRES

MM.	NEEL Louis	Physique Expérimentale
	KRAVTCHENKO Julien	Mécanique Rationnelle
	CHABAUTY Claude	Calcul différentiel et intégral
	BENOIT Jean	Radioélectricité
	CHENE Marcel	Chimie Papetière
	FELICI Noël	Electrostatique
	KUNTZMANN Jean	Mathématiques Appliquées
	BARBIER Reynold	Géologie Appliquée
	SANTON Lucien	Mécanique des Fluides
	OZENDA Paul	Botanique
	FALLOT Maurice	Physique Industrielle
	KOSZUL Jean-Louis	Mathématiques
	GALVANI Octave	Mathématiques
	MOUSSA André	Chimie Nucléaire
	TRAYNARD Philippe	Chimie Générale
	SOUTIF Michel	Physique Générale
	CRAYA Antoine	Hydrodynamique
	REULOS René	Théorie des Champs
	BESSON Jean	Chimie Minérale
	AYANT Yves	Physique Approfondie
	GALLISSOT François	Mathématiques
Melle	LUTZ Elisabeth	Mathématiques
	BLAMBERT Maurice	Mathématiques
	BOUCHEZ Robert	Physique Nucléaire
	LLIBOUTRY Louis	Géophysique
	MICHEL Robert	Minéralogie et Pétrographie
	BONNIER Etienne	Electrochimie et Electrometallurgie
	DESSAUX Georges	Physiologie Animale
	PILLET Emile	Physique Industrielle-Electrotechnique
	YOCOZ Jean	Physique Nucléaire Théorique
	DEBELMAS Jacques	Géologie Générale
	GERBER Robert	Mathématiques
	PAUTHENET René	Electrotechnique
	MALGRANGE Bernard	Mathématiques Pures
	VAUQUOIS Bernard	Calcul Electronique
	BARJON Robert	Physique Nucléaire
	BARBIER Jean-Claude	Physique
	SILBER Robert	Mécanique des Fluides
	BUYLE-BODIN Maurice	Electronique

	DREYFUS Bernard	Thermodynamique
	KLEIN Joseph	Mathématiques
	VAILLANT François	Zoologie et Hydrobiologie
	ARNAUD Paul	Chimie
	SENGEL Philippe	Zoologie
	BARNOUD Fernand	Biosynthèse de la cellulose
	BRISSONNEAU Pierre	Physique
	GAGNAIRE Didier	Chimie Physique
Mme	KOFLER Lucie	Botanique
	DEGRANGE Charles	Zoologie
	PEBAY-PEROULA Jean-Claude	Physique
	RASSAT André	Chimie Systématique
	DUCROS Pierre	Cristallographie Physique
	DODU Jacques	Mécanique Appliquée I.U.T.
	ANGLES D'AURIAC Paul	Mécanique des Fluides
	LACAZE Albert	Thermodynamique
	GASTINEL Noël	Analyse numérique
	GIRAUD Pierre	Géologie
	PERRET René	Servo-mécanisme
	PAYAN Jean-Jacques	Mathématiques Pures

PROFESSEURS SANS CHAIRE

MM.	GIDON Paul	Géologie
Mme	BARBIER M. Jeanne	Electrochimie
Mme	SOUTIF Jeanne	Physique
	COHEN Joseph	Electrotechnique
	DEPASSEL R.	Mecanique des Fluides
	GLENAT René	Chimie
	BARRA Jean	Mathématiques Appliquées
	COUMES André	Electronique
	PERRIAUX Jacques	Géologie et Minéralogie
	ROBERT André	Chimie Papetière
	BIARREZ Jean	Mécanique Physique
	BONNET Georges	Electronique
	CAUQUIS Georges	Chimie Générale
	BONNETAIN Lucien	Chimie Minérale
	DEPOMMIER Pierre	Physique nucléaire-Génie Atomique
	HACQUES Gérard	Calcul numérique
	POLOUJADOFF Michel	Electrotechnique
Mme	KAHANE Josette	Physique
Mme	BONNIER Jane	Chimie
	VALENTIN Jacques	Physique
	REBECQ Jacques	Biologie
	DEPORTES Charles	Chimie
	SARROT-REYNAULD Jean	Géologie
	BERTRANDIAS J. Paul	Mathématiques Appliquées
	AUBERT Guy	Physique

PROFESSEURS ASSOCIES

MM. RODRIGUES Alexandre
MORITA Susumu
RADHAKRISHNA

Mathématiques Pures
Physique Nucléaire
Thermodynamique

MAITRES DE CONFERENCES

MM. LANCIA Roland
Mme BOUCHE Liane
MM. KAHANE André
DOLIQUE Jean Michel
BRIERE Georges
DESRE Georges
LAJZEROWICZ Joseph
LAURENT Pierre
Mme BERTRANDIAS Françoise
LONGEQUEUE J. Pierre
SOHM Jean-Claude
ZADWORNY François
DURAND Francis
CARLIER Georges
PFISTER Jean-Claude
CHIBON Pierre
IDELMAN Simon
BLOCH Daniel
MARTIN-BOUYER Michel
SIBILLE Robert
BRUGEL Lucien
BOUVARD Maurice
RICHARD Lucien
PELMONT Jean
BOUSSARD Jean-Claude
MOREAU René
ARMAND Yves
BOLLIET Louis
KUHN Gérard
PEFFEN René
GERMAIN Jean-Pierre
JOLY Jean René
Melle PIERY Yvette
BERNARD Alain
MOHSEN Tahain
CONTE René
LE JUNTER Noël
LE ROY Philippe

Physique Atomique
Mathématiques
Physique Générale
Electronique
Physique
Chimie
Physique
Mathématiques Appliquées
Mathématiques Pures
Physique
Electrochimie
Electronique
Chimie Physique
Biologie végétale
Physique
Biologie animale
Physiologie animale
Electrotechnique I.P.
Chimie (C.S.U. Chambéry)
Construction mécanique (I.U.T.)
Energétique I.U.T.
Hydrologie
Botanique
Physiologie animale
Mathématiques Appliquées (I.P.G.)
Hydraulique I.P.G.
Chimie I.U.T.
Informatique I.U.T.
Energétique I.U.T.
Chimie I.U.T.
Mécanique
Mathématiques Pures
Biologie animale
Mathématiques Pures
Biologie (C.S.U. Chambéry)
Mesures Physiques I.U.T.
Génie Electrique Electronique I.U.T.
Génie Mécanique I.U.T.

Le travail présenté dans ce mémoire a été effectué au Laboratoire d'Electrostatique et de Physique du Métal, dirigé par Monsieur le Professeur Néel, Membre de l'Institut.

J'exprime ma profonde reconnaissance à Monsieur le Professeur Néel qui m'a accueillie dans son laboratoire, m'a proposé le sujet de cette étude et a dirigé mon travail. L'intérêt qu'il a porté aux résultats expérimentaux m'a vivement encouragée, et ses travaux théoriques constituent la base des interprétations.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude à Monsieur le Professeur Dreyfus, Directeur du Centre de Recherches sur les Très Basses Températures, qui a bien voulu accepter de faire partie du jury.

Je remercie vivement Monsieur le Professeur Aubert pour l'intérêt qu'il a porté à ce travail et les conseils très judicieux qu'il m'a donnés.

Je remercie tout particulièrement Monsieur Chakraverty, Maître de Recherches au C.N.R.S., pour les discussions que j'ai eues avec lui et pour le choix du sujet de la thèse complémentaire.

Mes remerciements s'adressent aussi à Monsieur Yelon, Professeur à l'Université de Yale, qui a guidé mon travail pendant son séjour à Grenoble et à Monsieur Bruyère pour les utiles suggestions qu'il m'a faites.

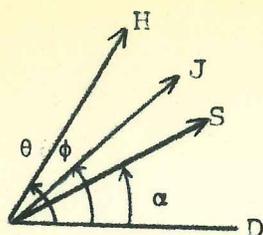
Que les chercheurs et techniciens du Laboratoire, ainsi que tous ceux qui m'ont apporté leur concours, soient assurés de mon amicale reconnaissance. Je remercie en particulier Monsieur Devenyi pour les travaux de diffraction et microscopie électronique et Mademoiselle De Monte pour la compétence et le dévouement avec lesquels elle a dactylographié ce mémoire.

TABLE DES MATIERES

	<u>Pages</u>
<u>INTRODUCTION ET RESUME</u>	1
 <u>CHAPITRE I - GENERALITES</u>	
1.1 - Propriétés d'un matériau ferromagnétique à anisotropie uniaxiale	3
1.2 - Propriétés caractéristiques d'un système avec couplage ferro-antiferromagnétique	4
1.3 - Mécanisme du couplage	5
1.4 - Cas d'une couche ferromagnétique et d'une couche antiferromagnétique accolées, monodomains, à anisotropie uniaxiale, d'axes confondus	6
 <u>CHAPITRE II - METHODES EXPERIMENTALES</u>	10
2.1 - Préparation des échantillons	10
2.1.1 - Couches ferromagnétiques	10
2.1.2 - Oxydation	11
2.2 - Méthodes de mesure	12
2.2.1 - Hystérésiscope	12
2.2.2 - Balance de torsion	13
 <u>CHAPITRE III - PROPRIETES DES COUCHES FERROMAGNETIQUES</u>	15
3.1 - Généralités	15
3.2 - Champ coercitif dans la direction facile	17
3.2.1 - Variation avec la température du support	17
3.2.2 - Variation avec l'épaisseur	18
3.2.3 - Variation avec la température	18
3.3 - Anisotropie uniaxiale	19
3.3.1 - Influence de la température du support	19
3.3.2 - Variation avec la température	19
3.4 - Structure des couches	20
3.4.1 - Diffraction électronique	20
3.4.2 - Microscopie électronique - Taille des cristallites	21

<u>CHAPITRE IV - RESULTATS FONDAMENTAUX</u>	23
4.1 - Description du phénomène	23
4.2 - Structure des couches antiferromagnétiques	24
4.2.1 - Epaisseur	24
4.2.2 - Nature et orientation	25
4.2.3 - Granulométrie	26
4.3 - Modèle des grains antiferromagnétiques	27
4.4 - Etude des cycles d'hystérésis relevés à la fréquence de 1000 Hz	29
4.4.1 - Basculement de l'aimantation à - 180°C	29
4.4.2 - Influence de l'épaisseur de la couche ferromagnétique	31
4.4.3 - Influence des conditions d'oxydation	32
4.4.4 - Influence de la température du support	32
4.4.5 - Influence du mode de refroidissement	33
<u>CHAPITRE V - HYSTERESIS ALTERNATIVE - CONTRACTION DU CYCLE D'HYSTERESIS</u>	36
5.1 - Contraction du cycle d'hystérésis	37
5.2 - Variation entre les deux premiers cycles	38
5.2.1 - Interprétation	38
5.2.2 - Comparaison avec l'expérience	40
5.2.3 - Effet d'un champ alternatif appliqué dans la direction difficile	41
5.3 - Contraction à partir du deuxième cycle	42
5.3.1 - Interprétation	42
5.3.2 - Lois quantitatives	43
5.3.3 - Origine possible des interactions entre grains	44
5.4 - Comparaison de l'hystérésis de rotation et de l'hystérésis alternative	45
<u>CHAPITRE VI - HYSTERESIS OSCILLANTE</u>	47
6.1 - Couche ferromagnétique à anisotropie uniaxiale	47
6.1.1 - Théorie	47
6.1.2 - Résultats	48
6.2 - Couche avec couplage ferro-antiferromagnétique	
Résultats expérimentaux	49
6.2.1 - Théorie	49
6.2.2 - Variation avec l'amplitude ψ de l'oscillation	50

6.2.3 - Variation avec le champ appliqué	51
6.2.4 - Variation avec l'ordre de l'oscillation	51
6.2.5 - Discussion	52
6.3 - Théorie de L. Néel des couches à aimantation déformable	54
6.3.1 - Théorie	54
6.3.2 - Valeurs des paramètres - Comparaison avec l'expérience	58
6.3.3 - Anisotropie antiferromagnétique	60
<u>CHAPITRE VII - VARIATION DES PROPRIETES DES COUCHES AVEC LA TEMPERATURE</u>	63
7.1 - Résultats expérimentaux	63
7.1.1 - Cycle d'hystérésis	63
7.1.2 - Courbe de couple	63
7.2 - Interprétation	64
7.2.1 - Cas des régions antiferromagnétiques rigides	65
7.2.2 - Cas des régions antiferromagnétiques à aimantation déformable à - 180°C	67
7.2.3 - Superparamagnétisme	68
<u>CHAPITRE VIII - TRAINAGE MAGNETIQUE</u>	69
8.1 - Résultats expérimentaux	69
8.1.1 - Variation avec l'intensité du champ magnétique	70
8.1.2 - Variation avec la direction du champ magnétique	70
8.2 - Interprétation	71
8.2.1 - Rappel sur le trainage de fluctuations thermiques dans le cas de grains fins	71
8.2.2 - Cas du couplage ferro-antiferromagnétique	72
8.3 - Valeurs des constantes de temps et des énergies d'activation	75
8.4 - Variation avec la température	78
8.5 - Discussion	79
<u>CONCLUSION</u>	80
<u>ANNEXE I - Courbe critique ou astroïde</u>	82
<u>ANNEXE II - Ecart entre les deux premiers cycles d'hystérésis - Diagramme de Preisach</u>	84
<u>ANNEXE III - Hystérésis oscillante - Première oscillation</u>	86
<u>BIBLIOGRAPHIE</u>	89



Notations

D est la direction facile de la couche ferromagnétique ou de la région antiferromagnétique, selon les cas (cf. texte)

- a Constante d'échange à l'interface ferro-antiferromagnétique
- $A = a S J$ Energie superficielle de couplage ferro-antiferromagnétique
- e Epaisseur de la couche ferromagnétique
- e' Epaisseur de la couche antiferromagnétique
- $h = a J$ Champ fictif de couplage agissant sur l'antiferromagnétique
- H_c Champ coercitif ou demi-largeur du cycle d'hystérésis
- H_e Décalage du cycle d'hystérésis
- H_k Champ d'anisotropie uniaxiale
- J Aimantation par unité de volume de la couche ferromagnétique
- K_{af} Constante d'anisotropie uniaxiale antiferromagnétique par unité de volume
- K_e Constante d'anisotropie unidirectionnelle par unité de volume de la couche ferromagnétique
- K_o Composante constante de la courbe de couple
- K_u Constante d'anisotropie uniaxiale ferromagnétique par unité de volume
- S Aimantation par unité de surface du plan atomique d'interface dans l'antiferromagnétique
- T_s Température du support pendant la préparation de la couche ferromagnétique
- T_t Température de transition de disparition de l'anisotropie unidirectionnelle
- T'_t Température de transition de disparition des pertes par hystérésis de rotation
- $W_r = 2 \pi K_o$ Pertes par hystérésis de rotation par unité de volume de la couche ferromagnétique
- W (ψ) Pertes par hystérésis oscillante pour une oscillation du champ d'un angle ψ

INTRODUCTION ET RESUME

C'est en 1956 que W.H. Meiklejohn et C.P. Bean ont mis en évidence un phénomène de couplage entre le cobalt ferromagnétique et l'oxyde de cobalt antiferromagnétique dans des grains fins de cobalt partiellement oxydés (1). Les propriétés observées étaient interprétées par l'interaction d'échange qui existe à l'interface des deux matériaux entre les spins ferromagnétiques et les spins antiferromagnétiques, et qui se traduit par une énergie superficielle de couplage ferro-antiferromagnétique.

Depuis lors, des travaux analogues ont été effectués sur divers systèmes (2) (3) dont des alliages désordonnés contenant du manganèse constitués de régions ferromagnétiques en contact avec des régions antiferromagnétiques (4) (5).

Ce couplage étant un phénomène de surface, il semblait préférable de l'étudier sur des échantillons dans lesquels l'interface ferro-antiferromagnétique soit définie et de géométrie telle que le rapport de la surface de couplage au volume ferromagnétique soit relativement grand, en particulier dans des couches minces. Un tel travail fut seulement abordé par C.P. Bean en 1959 sur des couches de cobalt oxydées superficiellement (6). Parallèlement à notre étude, O. Massenet découvrit un couplage du même type dans des couches doubles FeNi-Mn dans lesquelles l'antiferromagnétique est un alliage de Fe, Ni et Mn (7 à 11). Le même système fut étudié par A.A. Glazer et al (12 à 17). Signalons aussi des travaux portant sur des couches minces du type FeNi-Cr₂O₃ (18) Fe-FeS (19), FeNi-Cr (20), FeNi oxydé superficiellement (21).

Le but de notre travail étant d'approfondir le mécanisme du couplage plutôt que de mettre en évidence de nouveaux systèmes, il était important de choisir un matériau simple, dans lequel le

composant antiferromagnétique soit aussi bien connu que possible. Nous nous sommes donc limité à un système métal ferromagnétique-oxyde antiferromagnétique et avons entrepris une étude de couches minces polycristallines de cobalt oxydées superficiellement, dans lesquelles le matériau antiferromagnétique est l'oxyde CoO à température de Néel de 18°C . Afin que les propriétés magnétiques de la couche ferromagnétique soient aussi bien définies que possible, nous avons utilisé des couches de cobalt possédant initialement une anisotropie uniaxiale.

Dans le premier chapitre, nous rappelons les principales propriétés du système à couplage ferro-antiferromagnétique, le mécanisme qui permet de les interpréter ainsi qu'un modèle simple et les conséquences qu'il entraîne. Le chapitre II contient une description des appareillages utilisés et des techniques expérimentales. Les propriétés magnétiques de couches minces de cobalt n'ayant pas donné lieu à un grand nombre de travaux antérieurs, il nous a paru utile de donner dans le chapitre III un aperçu des propriétés des couches ferromagnétiques. Le chapitre IV donne les caractéristiques du phénomène de couplage observé sur nos échantillons, l'influence de divers paramètres et un modèle dans lequel on considère la couche antiferromagnétique comme un ensemble de grains indépendants, monodomains à anisotropie uniaxiale. Les chapitres IV et V sont constitués par une étude détaillée de l'hystérésis, d'une part en champ alternatif, d'autre part en champ tournant ou "oscillant". On a mis en évidence une nouvelle propriété de contraction du cycle d'hystérésis que L. Néel a expliqué au moyen de l'hystérésis antiferromagnétique et par analogie avec la bascule dans les ferromagnétiques. Les résultats concernant l'hystérésis oscillante sont justifiés en tenant compte de la théorie de L. Néel de grains antiferromagnétiques à aimantation "déformable" et on montre que le modèle des grains monodomains doit être souvent très approché. On expose et on justifie les propriétés des couches en fonction de la température dans le chapitre VII. Enfin, nos couches présentant des phénomènes importants de traînage magnétique, nous les avons étudiés et en donnons l'interprétation dans le chapitre VIII.

CHAPITRE 1

GENERALITES

1.1 - PROPRIETES D'UN MATERIAU FERROMAGNETIQUE A ANISOTROPIE UNIAXIALE

Dans la direction de facile aimantation, le cycle d'hystérésis d'un matériau ferromagnétique à anisotropie uniaxiale est symétrique et approximativement rectangulaire. Le couple exercé sur l'échantillon par un champ magnétique le saturant est de la forme :

$$\Gamma_h = K_u \sin 2 \theta$$

K_u étant une constante et θ l'angle entre la direction facile et le champ appliqué.

Dans le cas d'une couche mince où l'énergie de champ démagnétisant est négligeable, on justifie ces résultats en considérant que la couche est toujours monodomaine et que son énergie par unité de volume en présence d'un champ H parallèle au plan de la couche est :

$$E = K_u \sin^2 \phi - J H \cos (\theta - \phi)$$

K_u est la constante d'anisotropie uniaxiale et J l'aimantation par unité de volume, ϕ l'angle entre la direction facile et la direction de l'aimantation (Figure 1 b).

On calcule le champ coercitif dans la direction facile en déterminant les valeurs de H pour lesquelles on a simultanément :

$$\frac{\partial E}{\partial \phi} = \frac{\partial^2 E}{\partial \phi^2} = 0$$

$$\text{On obtient : } H = \pm H_K = \pm \frac{2 K_u}{J}$$

H_K est appelé champ d'anisotropie.

En présence d'un champ alternatif parallèle à la direction facile, l'aimantation reste égale à $+J$ tant que H est supérieur à

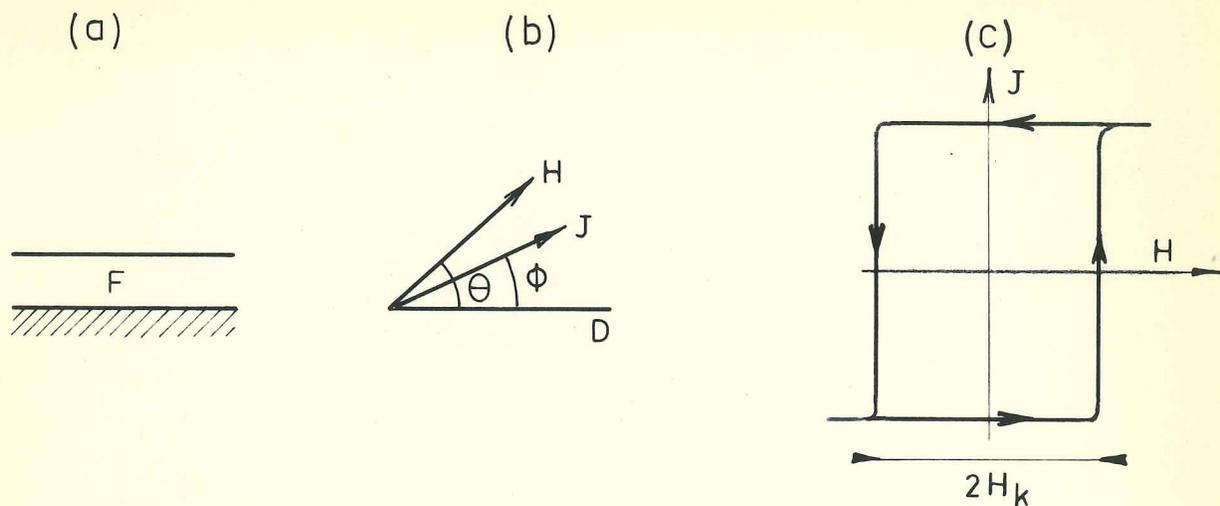


Figure 1 : Couche ferromagnétique à anisotropie uniaxiale.
 c. cycle d'hystérésis dans la direction de facile aimantation.

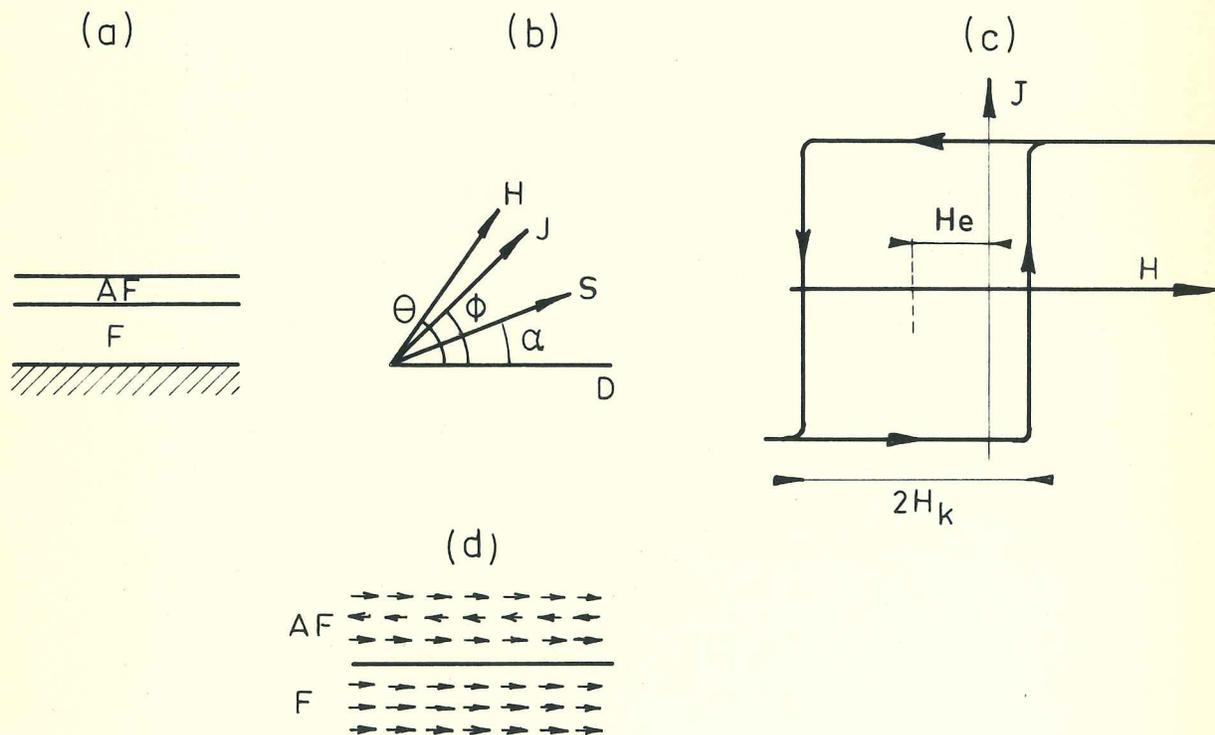


Figure 2 : Couche avec couplage ferro-antiferromagnétique.
 a. Structure de la couche multiple.
 c. Cycle d'hystérésis décalé.
 d. Schéma du mécanisme de couplage. Les plans d'alignement ferromagnétique dans l'antiferromagnétique sont supposés parallèles à l'interface et le couplage positif.

à $- 2 K_u/J$ et à $- J$ tant que H est inférieur à $+ 2 K_u/J$. Le cycle d'hystérésis est rectangulaire, de demi largeur $2 K_u/J$ (figure 1 c).

En champ tournant, l'aimantation dans sa position d'équilibre est soumise au couple d'anisotropie Γ compensé par Γ_h .

$$\Gamma = - \Gamma_h = - J H \sin (\theta - \phi) = - K_u \sin 2 \phi$$

Si H est beaucoup plus grand que H_K , ϕ est très peu différent de θ et :

$$\Gamma = - K_u \sin 2 \theta$$

Le couple d'anisotropie Γ est dit uniaxial. L'aimantation suit alors réversiblement le champ appliqué et il n'y a pas de pertes par hystérésis.

1.2 - PROPRIETES CARACTERISTIQUES D'UN SYSTEME AVEC COUPLAGE FERRO-ANTIFERROMAGNETIQUE

Si l'on refroidit un matériau constitué d'un ferromagnétique à anisotropie uniaxiale et d'un antiferromagnétique en contact, à partir d'une température supérieure au point de Néel T_N de l'antiferromagnétique, en présence d'un champ saturant le ferromagnétique dans la direction facile, on observe dans certains cas à basse température les propriétés suivantes :

- Le cycle d'hystérésis obtenu dans la direction du champ appliqué pendant le refroidissement est dissymétrique par rapport à l'axe des aimantations (figure 2 c). Il est "décalé" ; nous appellerons désormais H_e le décalage.
- Le couple exercé sur l'échantillon par un champ magnétique supérieur au champ d'anisotropie du matériau ferromagnétique varie avec la position du champ suivant une loi comprenant un terme en $\sin \theta$, θ étant l'angle entre le champ appliqué pendant le refroidissement et le champ de mesure. L'échantillon n'a qu'une position d'équilibre stable en présence du champ. Il possède une anisotropie dite "unidirectionnelle", orientée en quelque sorte par le sens du champ appliqué pendant le refroidissement. Tout se passe comme si l'action de l'antiferromagnétique était équivalente à celle d'un champ constant parallèle au champ de refroidissement et

de même sens que lui. Le décalage du cycle d'hystérésis doit lui être égal et est caractéristique de l'anisotropie unidirectionnelle.

D'autre part, les pertes par hystérésis de rotation peuvent persister en champ supérieur au champ d'anisotropie et garder une valeur indépendante du champ, contrairement à ce qu'on observe dans les matériaux ferromagnétiques ordinaires.

Cette dernière propriété ne se superpose pas toujours à l'anisotropie unidirectionnelle.

1.3 - MECANISME DU COUPLAGE

Lors du refroidissement d'un système ferro-antiferromagnétique, les moments magnétiques de l'antiferromagnétique désordonnés aux températures supérieures à T_N , s'ordonnent en particulier en fonction de l'interaction d'échange existant à l'interface des deux matériaux entre les moments ferromagnétiques et les moments antiferromagnétiques. Cette interaction d'échange, de même nature que celle qui existe dans les ferromagnétiques ou dans les antiferromagnétiques, entraîne des forces de couplage qui ont tendance à maintenir parallèles les moments des deux composants proches de l'interface (figure 2 d).

Si l'antiferromagnétique possède à basse température une anisotropie assez grande pour que les forces d'anisotropie l'emportent sur ces forces de couplage, les moments antiferromagnétiques restent bloqués lorsque l'aimantation ferromagnétique est modifiée et ont une action équivalente à celle d'un champ constant.

Si au contraire les forces de couplage sont du même ordre de grandeur que les forces d'anisotropie, les moments antiferromagnétiques sont entraînés par l'aimantation ferromagnétique. Ils peuvent ainsi effectuer des mouvements irréversibles et donner lieu à des pertes par hystérésis. Ces pertes doivent se produire seulement dans l'antiferromagnétique si le champ est assez fort pour que le ferromagnétique soit pratiquement saturé.

Les propriétés du couplage ferro-antiferromagnétique dépendent

donc essentiellement des valeurs relatives du couplage à l'interface et de l'anisotropie antiferromagnétique.

1.4 - CAS D'UNE COUCHE FERROMAGNETIQUE ET D'UNE COUCHE ANTIFERROMAGNETIQUE ACCOLEES, MONODOMAINES, A ANISOTROPIE UNIAXIALE D'AXES CONFONDUS

Nous supposons que malgré le couple qui s'exerce sur les moments de l'interface, l'aimantation J est uniforme et parallèle au plan de la couche ferromagnétique, de même que la direction d'antiferromagnétisme Δ dans la couche antiferromagnétique. Si on définit, comme L. Néel (22), une aimantation superficielle antiferromagnétique S , dans le plan d'interface, l'énergie de couplage par unité de surface doit être de la forme :

$$- a \vec{S} \cdot \vec{J} = - A \cos(\phi - \alpha) \quad \text{avec } A = a S J$$

a est la constante d'échange à l'interface.

En présence d'un champ extérieur H parallèle au plan des couches, l'énergie libre du système par unité de surface est :

$$E = K_u e \sin^2 \phi - J H e \cos(\theta - \phi) - a S J \cos(\phi - \alpha) + K_{af} e' \sin^2 \alpha$$

Cette expression suppose que l'énergie de champ démagnétisant est négligeable et que le champ extérieur n'est pas assez fort pour agir directement sur l'antiferromagnétique.

Les notations sont précisées sur la figure 2b. D est l'axe d'anisotropie commun aux deux matériaux. K_u est la constante d'anisotropie uniaxiale du ferromagnétique et K_{af} celle de l'antiferromagnétique, rapportées à une unité de volume. Si le champ extérieur H est assez fort, la couche antiferromagnétique doit se comporter comme une couche ferromagnétique à anisotropie uniaxiale soumise à un champ fictif $\vec{h} = a \vec{J}$. On peut alors utiliser le modèle de Stoner et Wohlfarth (23) et les résultats relatifs à une

couche ferromagnétique monodomaine et en particulier raisonner à l'aide de la courbe critique ou astroïde (23) (Annexe I). On obtient ainsi rapidement des résultats équivalents à ceux donnés dans les références (2) (p. 1334) et (22) (p. 76).

Le champ fictif d'anisotropie est :
$$h_k = \frac{2 K_{af} e'}{S}$$
. On

distingue trois cas :

a. $h < \frac{h_k}{2}$ ou $\frac{A}{e'} < K_{af}$

L'aimantation superficielle S et par conséquent la direction d'antiferromagnétisme oscille réversiblement autour de la direction facile lorsque J tourne.

b. $\frac{h_k}{2} < h < h_k$ ou $K_{af} < \frac{A}{e'} < 2 K_{af}$

Δ suit J de façon irréversible en effectuant des sauts pour certaines valeurs de ϕ .

c. $h > h_k$ ou $\frac{A}{e'} > 2 K_{af}$

Δ suit J d'une manière toujours réversible avec un retard plus ou moins grand selon les valeurs relatives de h par rapport à h_k .

Dans le cas (a), dans l'approximation où α reste pratiquement nul, tout se passe comme si la couche ferromagnétique était soumise au champ constant : $\vec{H}_e = \frac{a \vec{S}}{e}$. Ce champ est parallèle à la direction facile, son sens est celui de \vec{S} , donc défini par les conditions de refroidissement. Si on pose $\frac{A}{e} = K_e$, on a $H_e = \frac{K_e}{J}$. Le cycle d'hystérésis mesuré dans la direction facile est alors rectangulaire, de largeur $2 H_k = \frac{4 K_u}{J}$, comme pour une couche usuelle à anisotropie uniaxiale, mais est décalé de H_e par rapport à l'axe

des aimantations (figure 2C). En champ tournant, l'aimantation dans sa position d'équilibre est soumise au couple d'anisotropie Γ compensé par le couple dû au champ extérieur :

$$\Gamma = - J H \sin (\theta - \phi) = - K_u \sin 2 \phi - K_e \sin \phi$$

Si H est beaucoup plus grand que H_k , ϕ est très voisin de θ et :

$$\Gamma = - K_u \sin 2 \theta - K_e \sin \theta$$

L'échantillon a une anisotropie unidirectionnelle.

Dans le cas (b), les mouvements irréversibles effectués par les moments antiferromagnétiques entraînent des pertes par hystérésis. Ces pertes sont indépendantes du champ extérieur si ce dernier est assez fort pour que le ferromagnétique soit pratiquement saturé et assez faible pour ne pas agir directement sur l'antiferromagnétique, c'est-à-dire dans les cas habituels. En champ alternatif, si l'on admet que le basculement de l'aimantation J se fait par rotation cohérente, les moments antiferromagnétiques basculent aussi et l'hystérésis de la couche antiferromagnétique s'ajoute à celle de la couche ferromagnétique. En particulier, le cycle d'hystérésis relevé dans la direction facile est symétrique. Le champ coercitif doit être de l'ordre de :

$$H_c = \frac{2 K_u}{J} + \frac{a S}{e} = \frac{2 K_u + K_e}{J}$$

Dans le cas (c), en champ tournant, l'antiferromagnétique ne donne plus lieu à des pertes, les relations $\frac{\partial E}{\partial \alpha} = \frac{\partial E}{\partial \phi} = 0$

donnent pour le couple d'anisotropie :

$$\Gamma = - J H \sin (\theta - \phi) = - K_u e \sin 2 \phi - K_{af} e' \sin 2 \alpha$$

Si h est assez grand par rapport à h_k pour que S soit pratiquement aligné avec J , on a :

$$\Gamma = - (K_u e + K_{af} e') \sin 2 \phi$$

L'anisotropie uniaxiale antiferromagnétique s'ajoute à celle du ferromagnétique.

Le champ coercitif mesuré dans la direction facile doit être dans l'hypothèse de la rotation cohérente de J :

$$H_c = \frac{2 K_u}{J}$$

Dans le cadre de l'interprétation donnée dans ce chapitre, on s'attend à ce que, selon les valeurs relatives de l'anisotropie antiferromagnétique et de l'interaction d'échange à l'interface, le couplage ferro-antiferromagnétique se manifeste soit par l'anisotropie unidirectionnelle, soit par des pertes par hystérésis anormalement grandes en champ fort. Les phénomènes doivent dépendre en particulier de la nature des matériaux en contact et de la température, si les deux paramètres varient de façon différente avec cette dernière. Les résultats obtenus sur les alliages contenant du manganèse confirmaient bien cette analyse (4). Au contraire, Meiklejohn et Bean (1) observaient les deux propriétés simultanément sur les grains fins Co-CoO. Pour expliquer cela, ils avaient suggéré que l'anisotropie antiferromagnétique puisse dépendre de l'épaisseur de la couche d'oxyde. Les expériences de Bean (6) ne semblaient pas confirmer cette hypothèse. Nous verrons ultérieurement comment on peut interpréter un tel résultat dans le cas de couches minces. (cf.p.28)

CHAPITRE II

METHODES EXPERIMENTALES

2.1 - PREPARATION DES ECHANTILLONS

Les couches ferromagnétiques sont préparées par évaporation sous vide et sont déposées sur des supports de verre. Elles sont par conséquent polycristallines. Les épaisseurs sont de l'ordre de 500 à 1000 Å. La présence d'un champ appliqué à la couche pendant sa formation induit une anisotropie uniaxiale.

Ces couches sont ensuite oxydées superficiellement à des températures comprises entre 150 et 250°C.

2.1.1 - Couches ferromagnétiques

Le groupe d'évaporation permet d'obtenir une pression minimum de $3 \cdot 10^{-7}$ Torr et de fabriquer les dépôts à une pression inférieure à $3 \cdot 10^{-6}$ Torr (3). Le chauffage des matériaux à évaporer est réalisé par induction haute-fréquence dans des creusets en bérylline contenus dans des porte-creusets en molybdène. On dispose de huit porte-échantillons placés dans huit fours indépendants, si bien qu'on peut préparer successivement huit couches sur des supports maintenus à des températures comprises entre l'ambiante et 350°C, au cours de la même manipulation.

Les épaisseurs des couches sont mesurées en cours d'évaporation par la méthode du quartz piézoélectrique vibrant, la fréquence de vibration d'un quartz exposé à la vapeur métallique étant comparée à celle d'un quartz de référence (24). L'étalonnage

est fait par la méthode interférométrique des franges du coin d'air de Fizeau.

Les supports de verre sont des lamelles circulaires, la couche ayant un diamètre de 15 mm. Ils sont au préalable soigneusement nettoyés, puis maintenus dans le groupe plusieurs heures à 350°C afin d'obtenir un dégazage convenable de leur surface et une bonne adhésion du dépôt.

Les couches sont préparées en présence d'un champ de 150 Oe, à une vitesse voisine de 10 Å/s, à partir d'un barreau de cobalt "Johnson Matthey" de pureté 15 ppm.

2.1.2 - Oxydation

Les conditions d'oxydation ont été déterminées empiriquement, les critères retenus étant de peu modifier les propriétés magnétiques des couches à la température ambiante supérieure au point de Néel de l'oxyde et d'obtenir des effets de couplage mesurables aux basses températures. Les couches sont oxydées à l'air, à la pression atmosphérique, à des températures comprises entre 100 et 250°C, pendant des temps de l'ordre de une heure.

Le dispositif d'oxydation (3) comprend un porte-échantillon pouvant recevoir six couches, disposé dans un tube de quartz dans lequel on peut abaisser la pression à 10^{-5} Torr pendant le chauffage et le refroidissement. Ce tube est placé dans un four alimenté en courant continu et créant un champ non compensé de 20 Oe, qu'on aligne avec la direction facile des couches ferromagnétiques pendant les traitements afin de limiter les modifications de l'anisotropie uniaxiale.

2.2 - METHODES DE MESURE

Les propriétés magnétiques des couches ont été étudiées au moyen, d'une part d'un hystérésiscope permettant d'obtenir rapidement le cycle d'hystérésis, d'autre part d'une balance de torsion. Les mesures ont été faites à température ambiante et à la température de l'azote liquide ainsi qu'aux températures intermédiaires.

2.2.1 - Hystérésiscope (3)

Cet appareil, de type classique, amplifie et intègre les signaux provenant de la variation du flux induit dans une petite bobine de prélèvement, lorsqu'on soumet l'échantillon à un champ magnétique alternatif. On enregistre sur l'écran d'un oscilloscope le signal intégré proportionnel à l'aimantation de la couche en fonction d'un courant proportionnel au champ magnétique. Un oscillateur et un amplificateur de 150 W alimentent à la fréquence de 1000 Hz des bobines d'Helmholtz fournissant un champ maximum de 150 Oe.

Le porte échantillon est constitué par la partie inférieure d'un vase Dewar (Fig. 3). On peut abaisser la pression dans la double paroi du vase et y introduire de l'hélium afin d'améliorer les échanges thermiques. L'échantillon est fixe, l'hystérésiscope est mobile autour d'un axe vertical afin qu'on puisse effectuer des mesures dans différentes directions du plan de la couche.

Une deuxième paire de bobines d'Helmholtz produit un champ continu maximum de 1000 Oe utilisé pendant le refroidissement des échantillons.

Les mesures ont été faites à $- 180^{\circ}\text{C}$ avec de l'azote

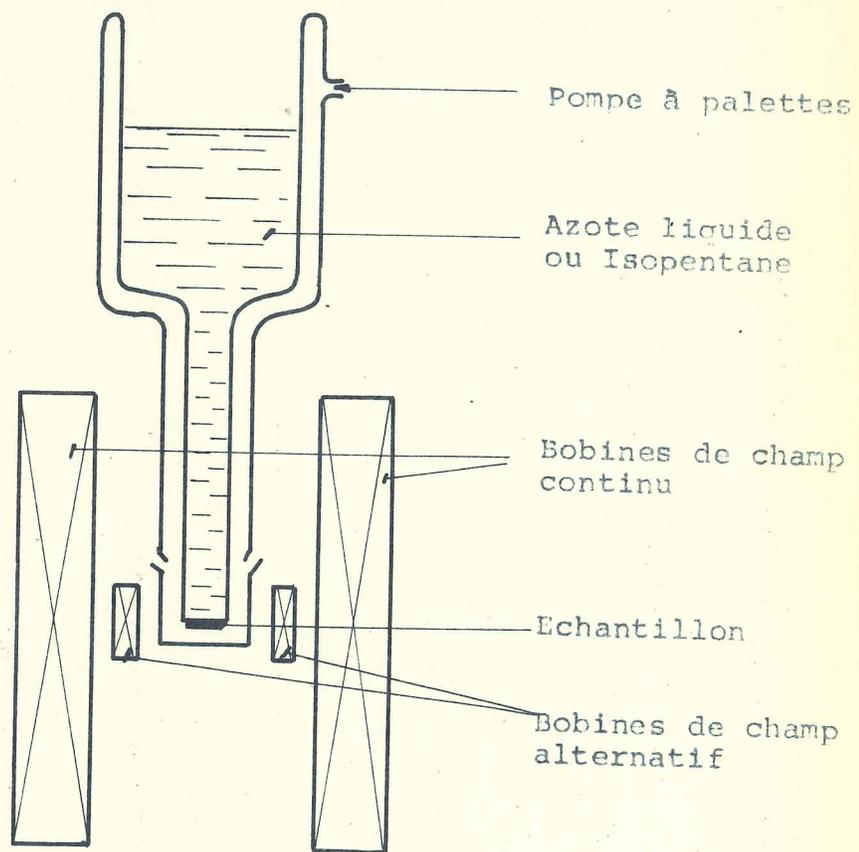


Figure 3 - Schéma de l'hystérésiscope - Porte échantillon et bobines.

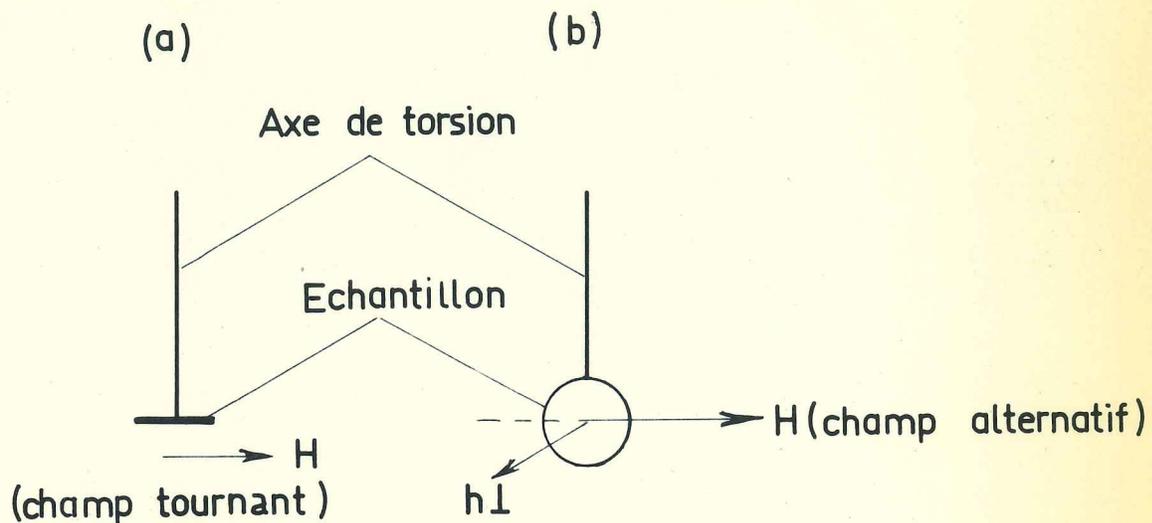


Figure 4 - Schémas de la position de l'échantillon sur la balance de torsion.

a) Mesure de couple - b) Relevé du cycle d'hystérésis.

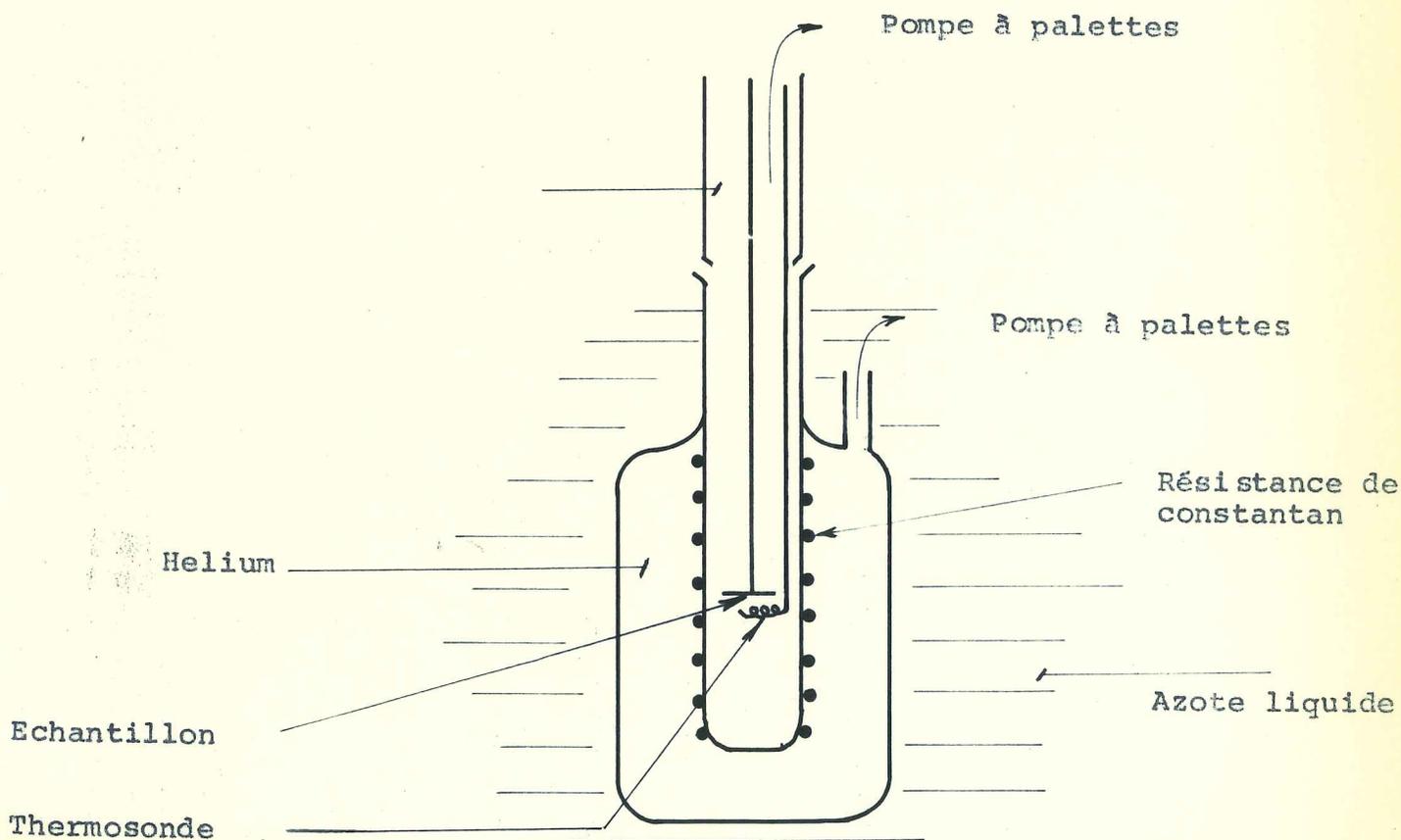


Figure 5 - Balance de torsion. Cellule à température variable.

liquide et entre - 150°C et l'ambiante avec de l'isopentane dont le point de congélation est de - 160°C ; le liquide était refroidi au moyen d'un serpentín parcouru par de l'azote liquide et la température mesurée par un thermocouple Cuivre-Constantan dont la soudure froide était en contact avec la même paroi que la couche.

2.2.2 - Balance de torsion

Cet appareil, construit par D. Paccard (25), mesure par une méthode de zéro, de façon automatique grâce à un asservissement, le couple exercé par un champ magnétique sur une couche mince. Sa sensibilité est de 10^{-4} dyne.cm, le couple maximum mesuré de 10 dyne.cm.

- Couples d'anisotropie

L'échantillon est vertical, soumis à un champ tournant H, parallèle à son plan, d'amplitude maximum 1000 Oe, produit par une paire de bobines d'Helmholtz, susceptibles de tourner d'un mouvement uniforme autour de l'axe de torsion de la balance, avec une période de 190 s (Fig. 4 a). Le couple est enregistré de façon continue en fonction de la position du champ.

Les pertes par hystérésis, proportionnelles à l'aire limitée par les courbes de couple, ont été mesurées à l'aide d'un planimètre. Les coefficients du développement de Fourier du couple ont été calculés au Laboratoire de Mathématiques Appliquées grâce au programme de G. Aubert.

- Cycles d'hystérésis

L'échantillon est horizontal, soumis au champ H alternatif,

très-basse-fréquence, de direction constante (Fig. 4 b). Une deuxième paire de bobines d'Helmholtz crée un champ h_{\perp} , constant, perpendiculaire au plan de la couche, assez petit pour que l'aimantation \vec{J} de la couche ferromagnétique reste dans son plan, et exerçant sur celle-ci un couple $\vec{J} \wedge \vec{h}_{\perp}$. Le relevé de ce couple en fonction de H constitue le cycle d'hystérésis de l'échantillon (26).

Les bobines de champ alternatif sont alimentées par un générateur très basses fréquences pilotant deux alimentations de puissance. Les mesures sont faites avec un champ maximum de 400 Oe, à la fréquence de 5.10^{-3} Hz (27).

- Mesures à température variable

La balance était initialement prévue pour des mesures à température ambiante et à -180°C , l'échantillon étant enfermé dans une enceinte qu'on peut au préalable vider, remplir d'hélium et immerger dans l'azote liquide.

La cellule de mesures à température variable est constituée d'une enceinte à double paroi (Fig. 5). On peut abaisser la pression et introduire un gaz dans l'enceinte elle-même et dans la double paroi. Une résistance chauffante en constantan est bobinée sur la paroi interne. On mesure la température au moyen d'une thermosonde à résistance de platine, placée immédiatement sous l'échantillon. L'ensemble est plongé dans l'azote liquide. On peut ainsi obtenir toutes les températures intermédiaires entre -190°C et l'ambiante en modifiant la pression d'hélium dans la double paroi et en réglant le courant dans la résistance chauffante.

CHAPITRE IIIPROPRIETES DES COUCHES FERROMAGNETIQUES

Avant d'aborder l'étude des résultats expérimentaux concernant le couplage ferro-antiferromagnétique, il nous paraît utile de décrire brièvement les propriétés de notre matériau de base, les couches ferromagnétiques simples de cobalt.

Nous commencerons par résumer les principales propriétés magnétiques des couches polycristallines de cobalt, sur lesquelles on dispose de beaucoup moins d'études que sur les couches de fer-nickel. Nous ne traiterons évidemment pas de l'origine de l'anisotropie dans de telles couches, qui constitue à elle seule un vaste sujet d'étude assez peu exploré.

Nous exposerons ensuite les résultats concernant la granulométrie et la cristallographie de nos couches.

3.1 - GENERALITES

On sait depuis longtemps qu'on peut induire une anisotropie magnétique uniaxiale dans des couches ferromagnétiques en appliquant un champ pendant la formation des couches (28). La direction de facile aimantation est la direction du champ appliqué pendant la formation.

Comme nous l'avons rappelé dans le chapitre I, le cycle d'hystérésis dans la direction de facile aimantation est approximativement rectangulaire. Les figures 6 a et b correspondent au modèle de la rotation cohérente de Stoner et Wohlfarth pour les directions facile et difficile respectivement. Pour les couches réelles, le cycle mesuré dans la direction facile est approximativement rectangulaire et définit un champ coercitif H_c (fig. 6 c) ; dans la direction difficile le cycle est assez différent du cycle théorique, le basculement de l'aimantation ne se faisant pas uniquement par rotation cohérente, mais aussi par déplacement de parois (fig. 6 d). On remarque sur les figures 6 e et 6 f une forte augmentation du

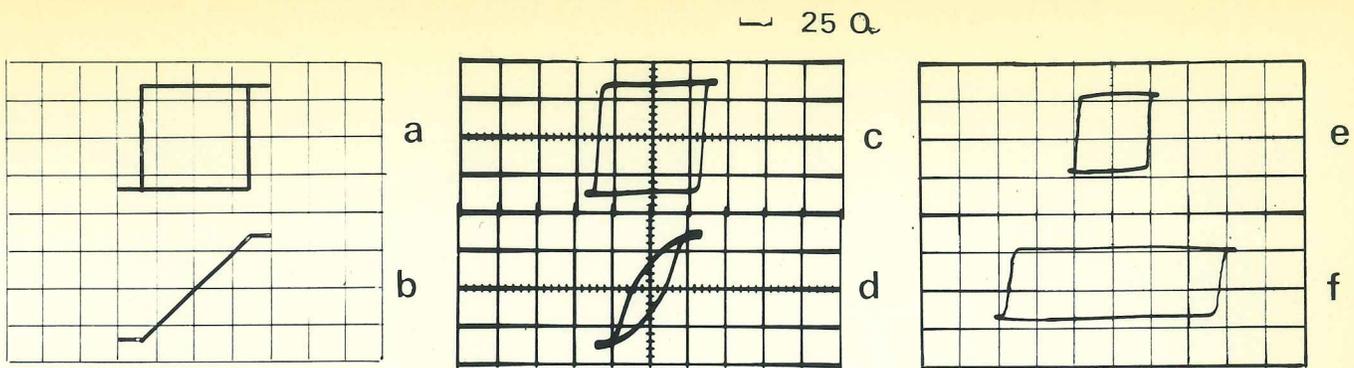


Figure 6 - Cycles d'hystérésis

a et b : Modèle de Stoner et Wohlfarth, a) Direction facile,
 b) Direction difficile,
 c et d : Couche de cobalt, c) Direction facile, d) Direction difficile
 (Echantillon 120)
 e et f : Couche de cobalt . Direction facile e) 20°C f) -180°C
 (Echantillon 138)

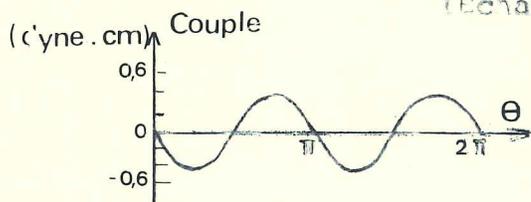
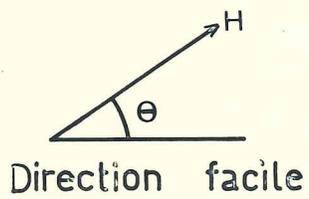


Figure 7 - Courbe du couple d'anisotropie - Couche de cobalt .

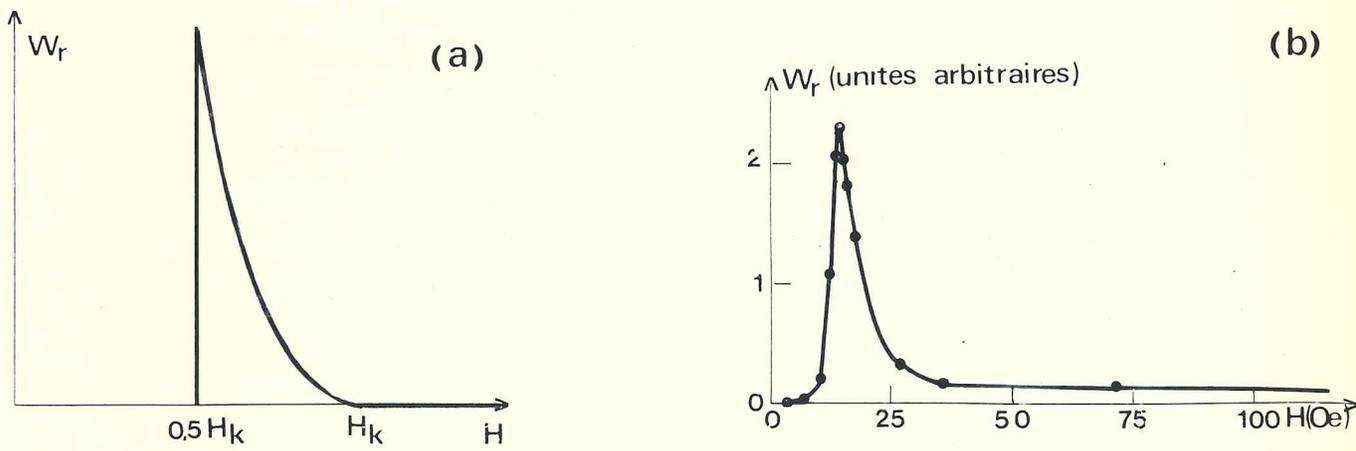


Figure 8 - Pertes par hystérésis de rotation en fonction du champ .

a. Modèle de Stoner et Wohlfarth .
 b. Couche de cobalt .

champ coercitif entre 20°C et - 180°C.

Le couple d'anisotropie mesuré en champ assez fort pour que l'aimantation soit saturée et pratiquement alignée avec le champ, est uniaxial, de la forme $K_u \sin 2 \theta$ (figure 7), comme le prévoit le modèle de la rotation cohérente.

Les champs coercitifs sont de l'ordre de 20 à 30 Oe à 20°C tandis que la constante d'anisotropie uniaxiale K_u est de 15 000 à 25 000 erg/cm³ à la même température. Le champ d'anisotropie calculé à partir de K_u est par conséquent compris entre 20 et 35 Oe (Tableau I).

Tableau I - Couches de cobalt - T_s est la température du support pendant la préparation

Echantillon	T_s (°C)	Epaisseur (Å)	H_c (Oe)	K_u (erg/cm ³)	H_K (Oe)
227 c	40	500	26	21 000	30
229	40	600	21	24 200	34
227 d	40	700	30	24 300	34
120	40	900	35	24 600	35
138	135	1200	23	18 400	26
139	135	1200	32	16 200	23
226 h	205	400	19	25 000	35
226 c	255	440	45	19 100	27
226 b	285	400	32	21 000	30

Les pertes par hystérésis de rotation mesurées en fonction du champ appliqué ont l'allure théorique indiquée sur la fig. 8 a pour une couche monodomaine (28). La figure 8 b donne la courbe relevée sur une couche de cobalt à 20°C. La persistance des pertes en champ supérieur au champ d'anisotropie est due à l'existence de régions à forte anisotropie locale ; en champ faible, l'hystérésis apparaît à des champs inférieurs à la moitié du champ d'anisotropie en même temps qu'ont lieu des créations et destructions de parois de domaines.

L'origine de l'anisotropie uniaxiale dans les couches

minces d'éléments ferromagnétiques n'est pas encore parfaitement établie. Dans le cas du cobalt, on remarque que la constante K_u est beaucoup plus petite que la constante d'anisotropie magnéto-cristalline K_1 égale à 3.10^6 erg/cm³. On peut invoquer divers mécanismes, tels que ordre directionnel des impuretés, magnétostriction et effets des contraintes, ainsi que le rôle des défauts.

3.2 - CHAMP COERCITIF DANS LA DIRECTION FACILE

3.2.1 - Variation avec la température du support

Le tableau II donne les champs coercitifs de couches ayant approximativement la même épaisseur pour diverses températures de support T_s . Il semble que le champ coercitif soit en moyenne d'autant plus grand que T_s est plus élevé. On peut attribuer ce résultat à la variation de la structure des couches avec la température du support (voir 3.3). En particulier, la taille des grains augmente avec la température du support. Or le déplacement des parois est d'autant plus difficile que la taille des cristallites est plus voisine de leur largeur. Il est possible que pour des couches déposées sur des supports à 40°C, la taille des grains soit beaucoup plus petite que la largeur des parois, tandis qu'elle s'en rapproche pour $T_s \approx 300^\circ\text{C}$.

Tableau II - Couches de cobalt - L'épaisseur est voisine de 1000 Å

Echantillon	T_s (°C)	H_c (Oe)
155	40	26
162	155	25
128	160	21
163	195	20
169	250	32
161	295	32,5
165	300	30
166	325	32,5
167	355	34

3.2.2 - Variation avec l'épaisseur

La figure 9 montre que H_c augmente avec l'épaisseur e pour des couches déposées sur des supports maintenus à 40°C ou à 300°C, pour des épaisseurs comprises entre 500 et 1500 Å. Ce résultat est très différent de la loi en $e^{-4/3}$ établie dans le cas de parois de Bloch (29). Dans cette gamme d'épaisseur, il est possible que les parois soient du type "cross-tie" auquel cas il est difficile de prévoir la variation de H_c avec e .

3.2.3 - Variation avec la température

On constate sur le tableau III que le champ coercitif est environ 2 à 3 fois plus grand à - 180°C qu'à 20°C. Il faut remarquer que la constante d'anisotropie magnétocristalline K_1 du cobalt augmente de $4,4 \cdot 10^6$ erg/cm³ à 20°C à $7,9 \cdot 10^6$ erg/cm³ à - 180°C, soit d'un facteur 1,8 seulement (30). D'autre part, on ne peut attribuer la forte variation de H_c à la présence d'une couche antiferromagnétique provenant d'une légère oxydation superficielle puisqu'un échantillon protégé par une couche de SiO déposée sous vide immédiatement après la couche de cobalt présente la même propriété. (Echantillon 138)

Tableau III - Couches de cobalt

Echantillon	T_s (°C)	Epaisseur (Å)	H_c (20°C)	H_c (-180°C)	$\frac{H_c (-180^\circ C)}{H_c (20^\circ C)}$
119	40	600	21	65	3,1
117	40	700	26	69	2,7
140	40	1440	27,5	60	2,2
141	40	1550	24	57,5	2,4
138	135	1200	23	69	3,0
128	160	1100	21	63	3,0

Cette augmentation doit être reliée à la magnétostriction du cobalt.

../.

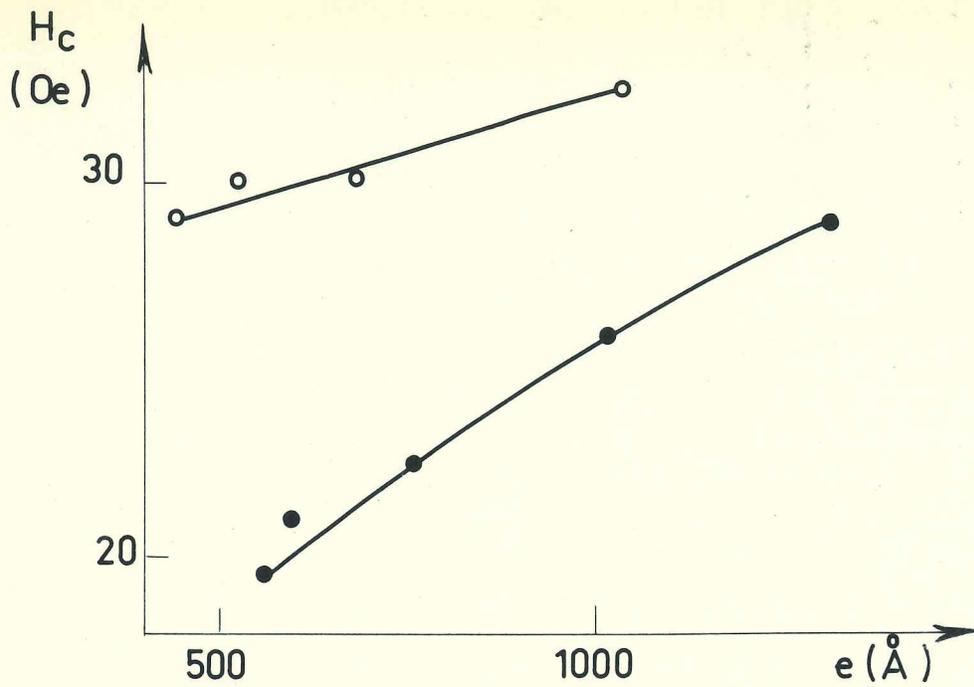


Figure 9 - Couches de cobalt . Variation du champ coercitif avec l'épaisseur e .
 o Température du support $T_s \approx 40^\circ\text{C}$. • $T_s \approx 300^\circ\text{C}$.

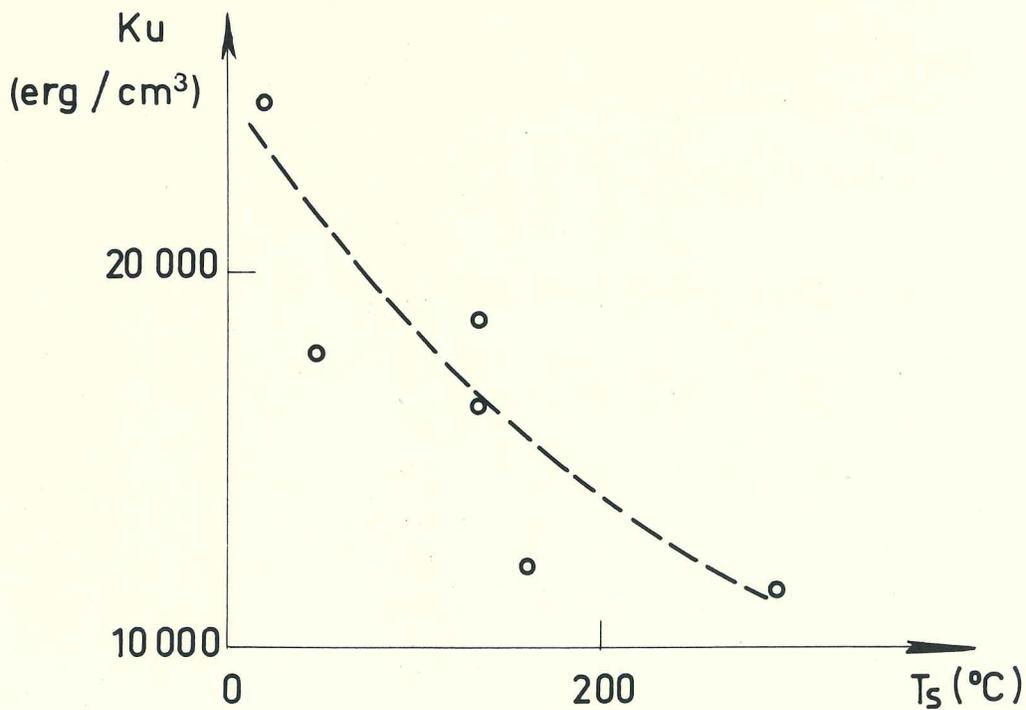


Figure 10 - Couches de cobalt . Variation de la constante d'anisotropie K_u avec la température du support T_s . $e \approx 1000 \text{ \AA}$.

3.3 - ANISOTROPIE UNIAXIALE

3.3.1 - Influence de la température du support

La courbe de K_u en fonction de T_s est donnée sur la figure 10. Ces résultats sont comparables à ceux obtenus sur des couches minces de FeNi (28). On remarque cependant que les couches contiennent d'autant moins de défauts que la température du support est plus élevée. Cette propriété est très certainement à rapprocher de la diminution de K_u lorsqu'on augmente T_s .

3.3.2 - Variation avec la température

Le tableau IV montre qu'entre 20°C et - 180°C, K_u augmente d'un facteur 1,2 à 1,5 selon les échantillons. On peut comparer cette variation à celles de l'aimantation spontanée et de la constante K_1 du cobalt :

$$\frac{J_s (-180^\circ\text{C})}{J_s (20^\circ\text{C})} \approx 1,01 \quad \frac{K_1 (-180^\circ\text{C})}{K_1 (20^\circ\text{C})} \approx 1,8$$

Tableau IV - Couches de cobalt

Echantillon	T_s (°C)	Epaisseur (Å)	K_u (20°C) (ergs)	K_u (-180°C) (ergs)	$\frac{K_u (-180^\circ\text{C})}{K_u (20^\circ\text{C})}^\circ$
228 f	40	690	0,33	0,47	1,42
228 g	40	760	0,40	0,54	1,35
142 a	40	1000	0,38	0,52	1,37
230 b	40	1000	0,49	0,75	1,51
120	40	1160	0,42	0,53	1,26
197	40	1460	0,56	0,81	1,45
138	135	1200	0,42	0,54	1,29
139	135	1200	0,37	0,45	1,22
226 h	205	400	0,19	0,30	1,54

3.4 - STRUCTURE DES COUCHES

Il est utile d'avoir quelques renseignements sur la structure cristallographique des couches ferromagnétiques et en particulier sur leur surface avant d'aborder l'étude des couches oxydées.

3.4.1 - Diffraction électronique

Des diagrammes de diffraction électronique par transmission ont été obtenus à partir de couches de cobalt déposées sur des membranes de carbone. Si la température du support pendant l'évaporation est voisine de l'ambiante, les diagrammes sont peu nets par suite de la petite taille des cristallites. La figure 11a correspondant à une température de support de 300°C et une épaisseur de 500 Å, comprend outre les anneaux dus à la phase hexagonale du cobalt, quelques anneaux provenant de la phase α cubique à faces centrées. On trouve, conformément à d'autres résultats (31), que les deux phases coexistent bien que la température de transformation allotropique du cobalt soit de 417°C.

Si l'on s'intéresse plus particulièrement à la phase hexagonale, on constate que les intensités observées pour les différents anneaux ne correspondent pas aux intensités tabulées pour la diffraction des rayons X (32). Les anneaux correspondant à des réflexions sur des plans du type (h k o) parallèles à l'axe c, ou à des plans faisant un petit angle avec l'axe c, ont des intensités anormalement fortes. C'est le cas des réflexions (100), (110) et (200). On distingue les raies (210) et (300), alors que leur intensité devrait être très faible. Au contraire les réflexions sur des plans (102), (103), n'apparaissent pas. Ces résultats indiquent que les cristallites ont une orientation préférentielle avec l'axe C perpendiculaire

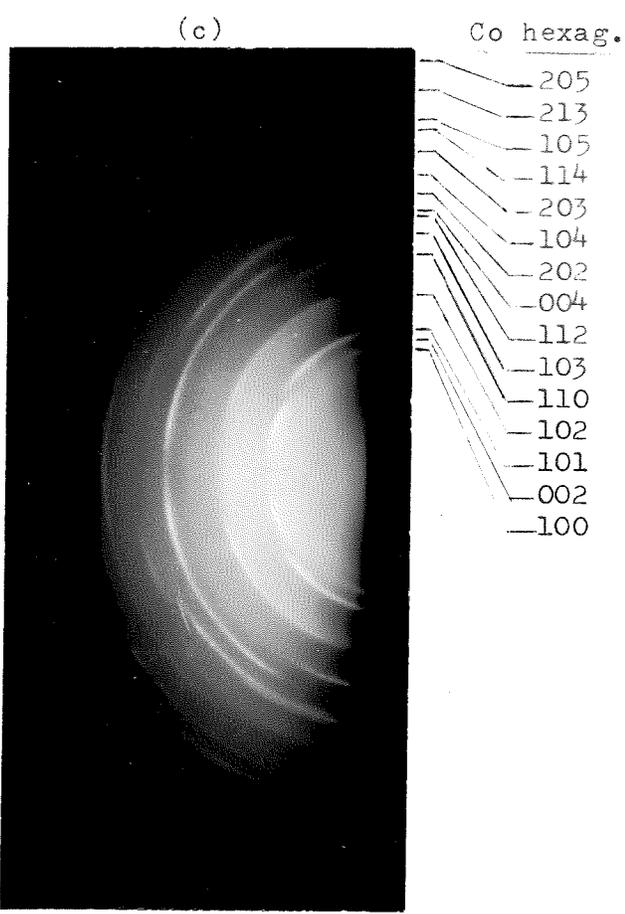
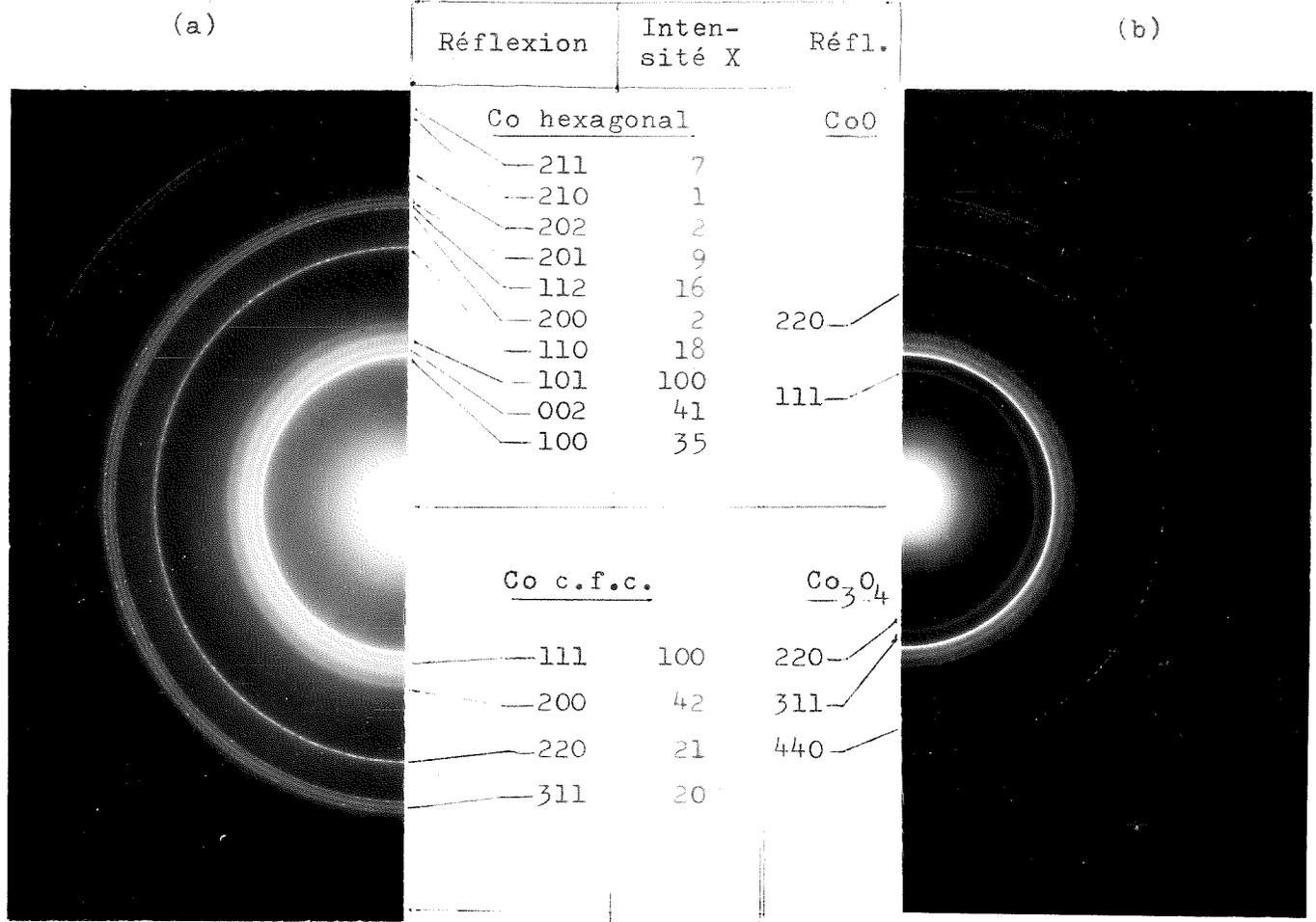


Figure 11. Diagrammes de diffraction électronique en transmission (a et b) et en réflexion (c).
 a) Couche de cobalt évaporée sur membrane de carbone; température du support $T_s = 300^\circ\text{C}$
 b) Couche identique après oxydation 1 h à 300°C
 c) Couche évaporée sur support de verre, $T_s = 300^\circ\text{C}$.

au plan de la couche.

Les diagrammes de diffraction électronique par réflexion (figure 11 C) confirment ce résultat puisque les anneaux γ sont discontinus. Ainsi les plans (h k o) ne donnent des tâches qu'aux extrémités du diagramme correspondant à des plans perpendiculaires au plan de la couche. D'autre part, les réflexions sur les plans (102), (103), inexistantes en transmission, apparaissent en réflexion avec de fortes intensités.

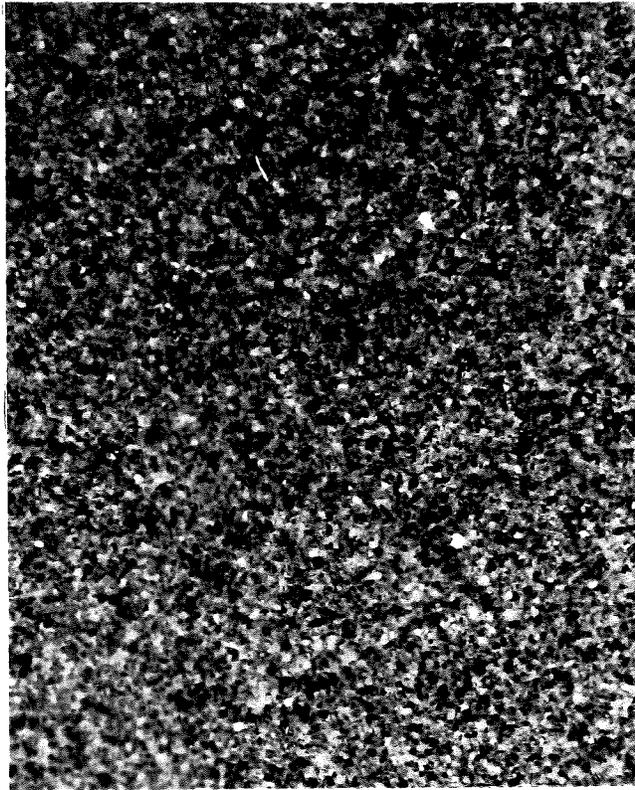
3.4.2 - Microscopie électronique . Taille des cristallites

La figure 12 donne les images obtenues en microscopie électronique à partir des couches de cobalt déposées sur des membranes de carbone. On peut en déduire que les couches sont formées de cristallites dont la taille moyenne est de 50 à 100 Å lorsque la température du support T_s est de 40°C et de 200 à 400 Å lorsqu'elle est de 300°C.

On a d'autre part examiné en microscopie électronique des répliques au carbone de la surface des couches pour diverses valeurs de T_s . On vérifie que les grains sont d'autant plus gros que T_s est plus élevé (figure 13). La méthode des répliques au carbone ne donne guère de renseignement pour $T_s = 40^\circ\text{C}$ (figure 13 C), la granulométrie en surface étant vraisemblablement trop fine pour être reproduite par la couche de carbone. Le tableau V donne les estimations des tailles des grains ainsi obtenues en fonction de T_s .

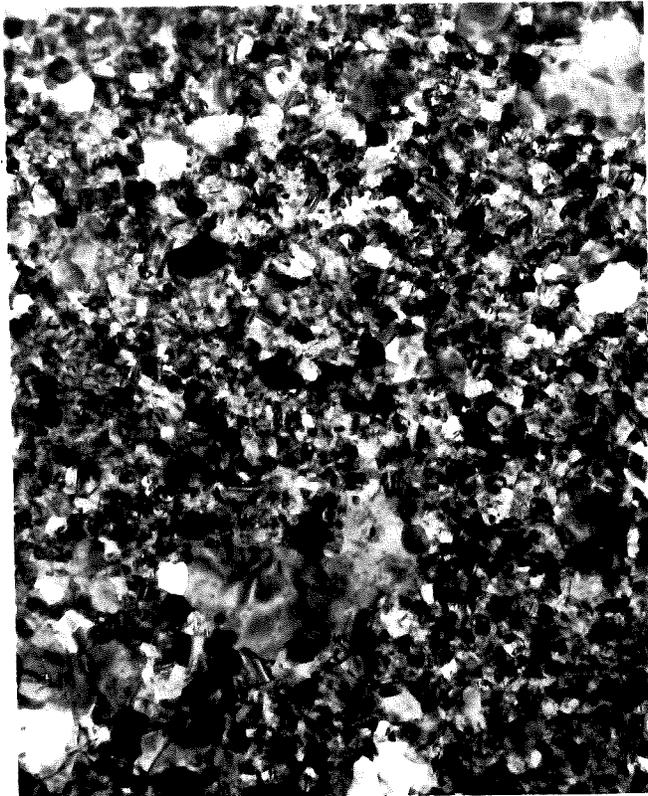
Tableau V - Couches de cobalt
Epaisseur \sim 1000 Å

T_s (°C)	Taille des grains (Å)
160	80 à 160
230	150 à 230
275	210 à 290
315	250 à 330



(a)

500 \AA
└──┘



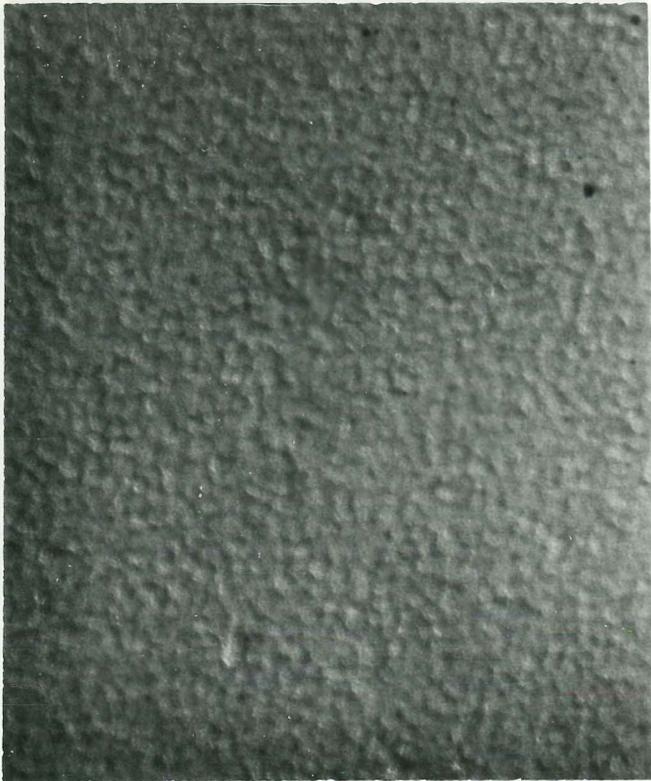
(b)

Figure 12. Microscopie électronique de couches de cobalt.

a) $T_s = 40^\circ\text{C}$

b) $T_s = 300^\circ\text{C}$

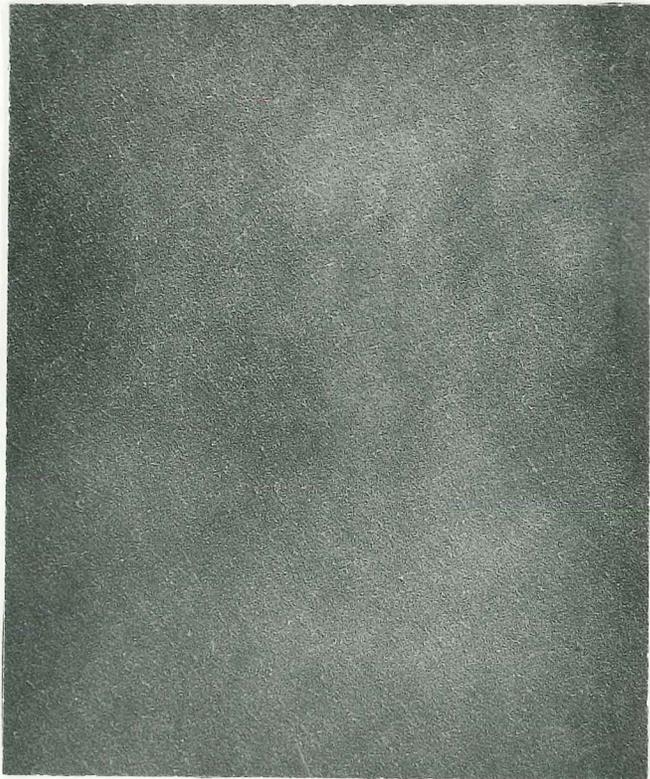
(a)



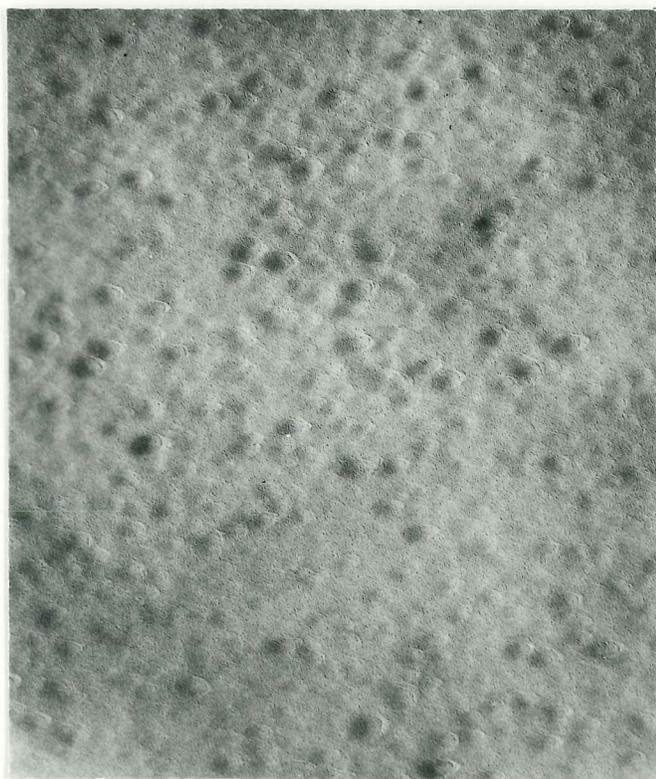
(b)



(c)



(d)



500 \AA
└─┘

Figure 13. Microscopie électronique de répliques au carbone.

a) $T_s = 315^\circ\text{C}$

b) $T_s = 230^\circ\text{C}$

c) $T_s = 40^\circ\text{C}$

d) Mêmes couches qu'en (c) après oxydation pendant 1 h à 200°C .

On peut donc conclure que les dimensions des cristallites sont de 50 à 100 Å pour des couches déposées sur support maintenu à 40°C et d'environ 300 Å lorsque T_s est de 300°C.

CHAPITRE IV

RESULTATS FONDAMENTAUX - MODELE DES GRAINS ANTIFERROMAGNETIQUES

Nous donnerons d'abord dans ce chapitre les principales caractéristiques du phénomène mesuré et les renseignements obtenus sur la structure de la couche antiferromagnétique. Ces premiers résultats nous permettront ensuite de proposer un modèle. Enfin, nous étudierons l'influence de divers paramètres expérimentaux et nous discuterons les résultats en fonction du modèle.

4.1 - DESCRIPTION DU PHENOMENE

Si l'on refroidit de 20°C à - 180°C une couche de cobalt préparée et oxydée superficiellement dans les conditions décrites au chapitre II, en présence d'un champ magnétique parallèle à la direction facile, le cycle d'hystérésis relevé à l'hystérésiscope à - 180°C est décalé le long de l'axe des champs (Figure 14).

La courbe de couple magnétique Γ à la même température, en champ fort est du type de celles données sur la figure 15. Les deux courbes correspondent aux deux sens de rotation du champ, chacune d'elles étant obtenue après plusieurs rotations de 360° dans le même sens. L'analyse de Fourier donne :

$$\Gamma = - K_0 - K_e \sin (\theta - \delta_e) - K_u \sin 2 (\theta - \delta_u)$$

La composante constante K_0 traduit des pertes par hystérésis de rotation W_r :

$$W_r = 2 \pi K_0$$

Le terme en K_e et le décalage du cycle d'hystérésis correspondent à l'anisotropie unidirectionnelle. La composante en K_u provient de l'anisotropie uniaxiale de la couche ferromagnétique. On observe donc simultanément anisotropie unidirectionnelle et hystérésis de rotation.

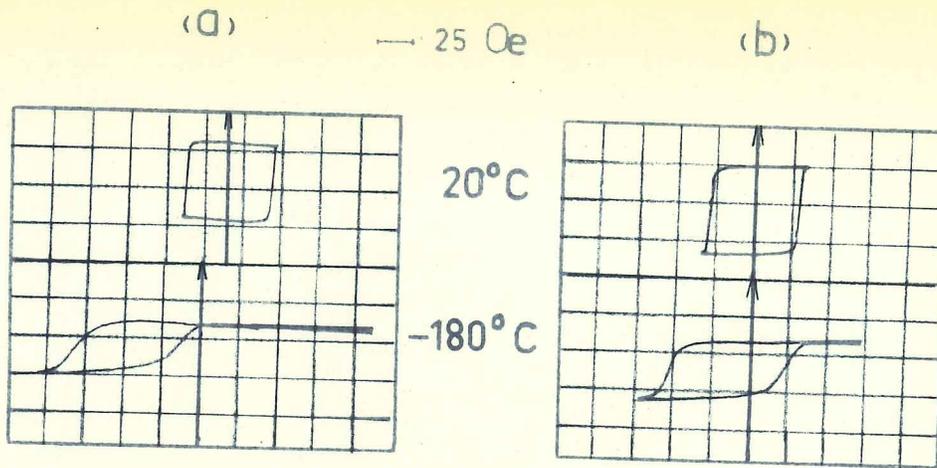


Figure 14 : Cycles d'hystérésis relevés à l'hystérésiscope
 a. Echantillon 197. $e \approx 1460 \text{ \AA}$. $T_s = 40^\circ\text{C}$.
 Oxydation à 200°C pendant 1 h.
 b. Echantillon 179. $e \approx 1300 \text{ \AA}$. $T_s = 80^\circ\text{C}$.
 Mêmes conditions d'oxydation.

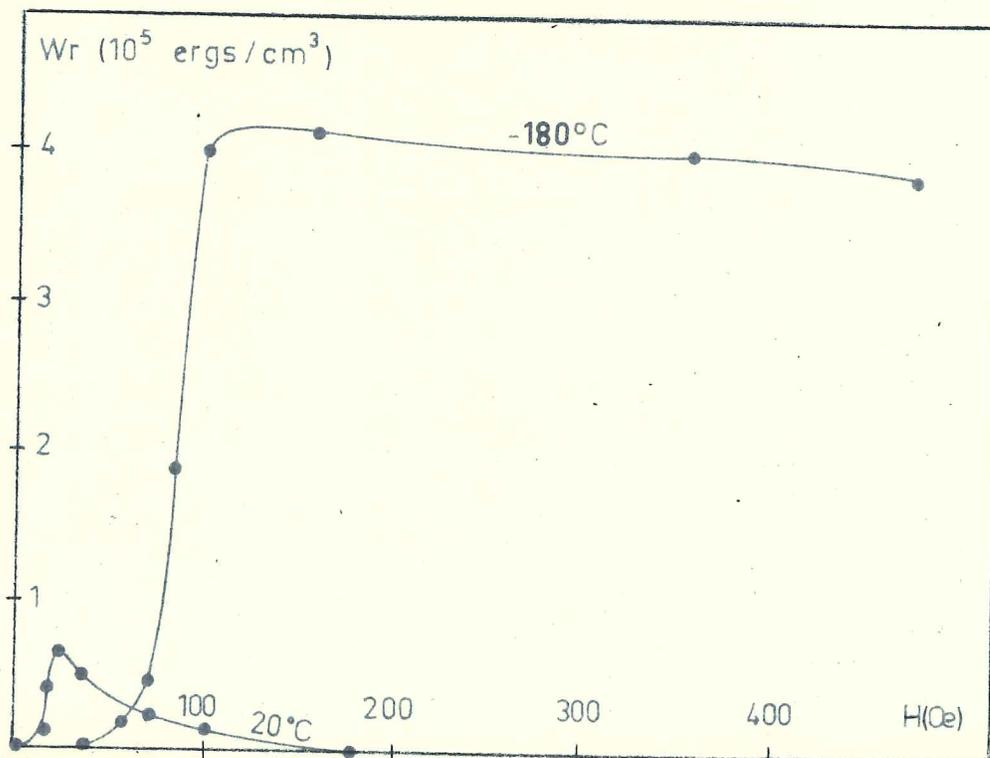
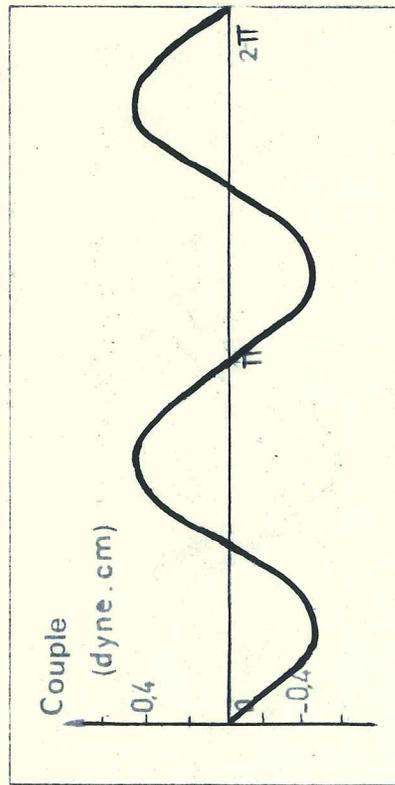
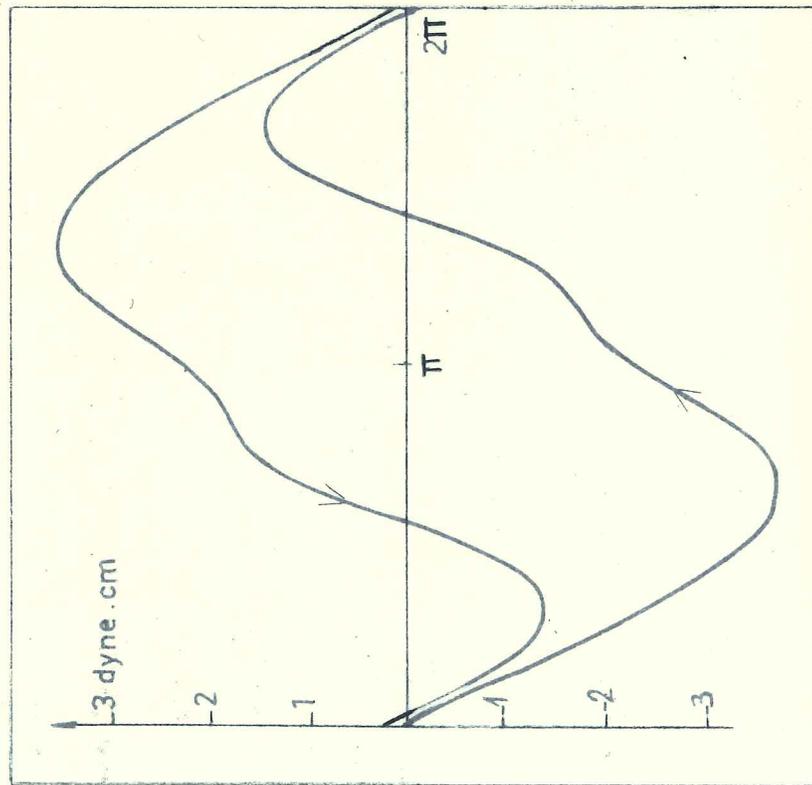


Figure 16 - Pertes par hystérésis de rotation en fonction du champ magnétique. Echantillon 120. $e = 1160 \text{ \AA}$. $T_s = 40^\circ\text{C}$.
 Oxydation 1 h à 200°C .



20° C



-180° C

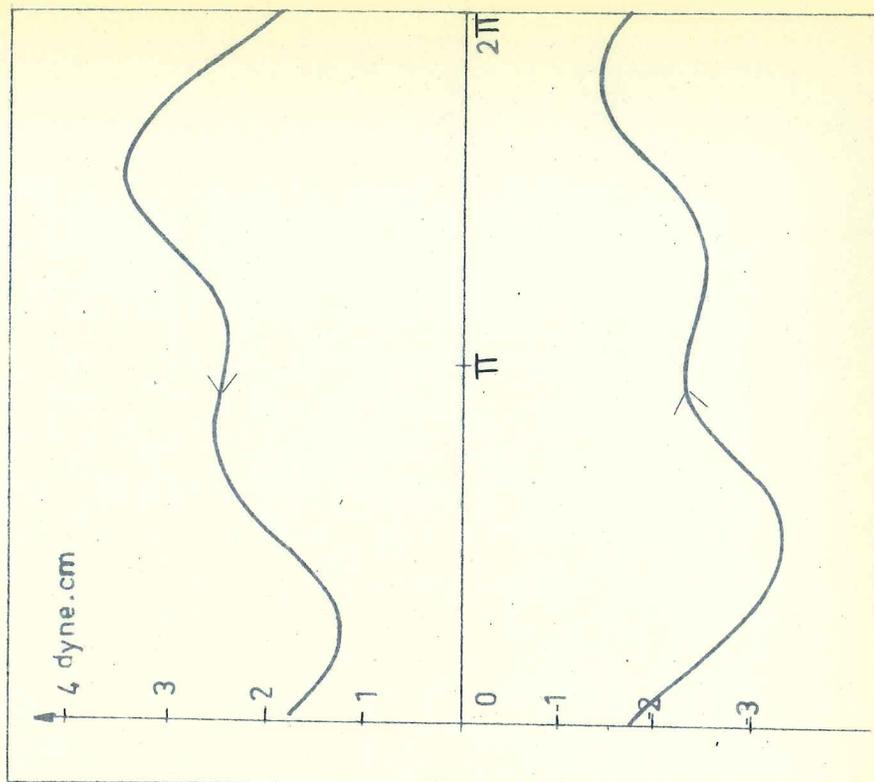
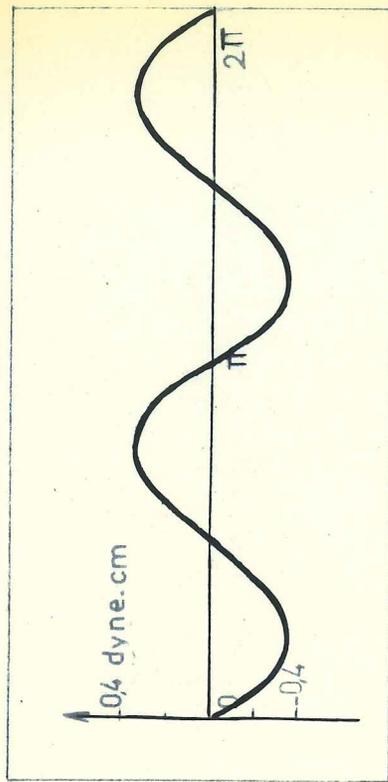


Figure 15 : Courbes de couple . a. Echantillon 227 e , $e = 900 \text{ \AA}$,
 $T_s = 40^\circ \text{C}$, Oxydation 50 mn à 200°C .
 b. Echantillon 223 f , $e = 650 \text{ \AA}$,
 $T_s = 40^\circ \text{C}$, Oxydation 2 h à 150°C .

La figure 16 donne l'allure des variations de W_r avec H et la figure 17 celle des variations de K_o , K_e , K_u , δ_e et δ_u . On constate qu'au-delà de 150 à 250 Oe selon les échantillons, les pertes par hystérésis sont indépendantes du champ appliqué de même que les constantes d'anisotropie.

Les déphasages δ_e et δ_u peuvent être assez différents l'un de l'autre. Ils diminuent lorsque H augmente et n'apparaissent que lorsque le champ n'est pas assez fort pour qu'on puisse négliger l'angle entre J et H. On s'attend cependant à ce que δ_e et δ_u soient approximativement égaux. En effet, l'angle $\delta = \theta - \phi$ entre l'aimantation et le champ doit osciller autour d'une valeur moyenne δ_o telle que :

$$K_o = J H \sin \delta_o$$

Le couple Γ devrait être voisin de :

$$\Gamma = - K_o - K_e \sin (\theta - \delta_o) - K_u \sin 2 (\theta - \delta_o)$$

Les valeurs distinctes de δ_e et δ_u ne peuvent s'interpréter qu'en tenant compte des inhomogénéités des couches et ceci nous amène à examiner leur structure.

4.2 - STRUCTURE DES COUCHES ANTIFERROMAGNETIQUES

4.2.1 - Epaisseur

On obtient une indication sur l'épaisseur des couches antiferromagnétiques en comparant l'aimantation à saturation des couches avant et après oxydation. Ces mesures ont été faites au moyen de la balance de torsion, soit en mesurant le couple $\Gamma = J H \sin \theta$ exercé sur l'échantillon par un champ tournant très faible, l'aimantation restant constante et parallèle à la direction facile, soit par le relevé du cycle d'hystérésis en très basse fréquence. On a dû utiliser des couches de cobalt très minces afin de pouvoir déceler la variation de J. Le tableau VI donne les ordres de grandeur de la variation relative $\Delta J/J$ de l'aimantation d'une couche avant et après oxydation.

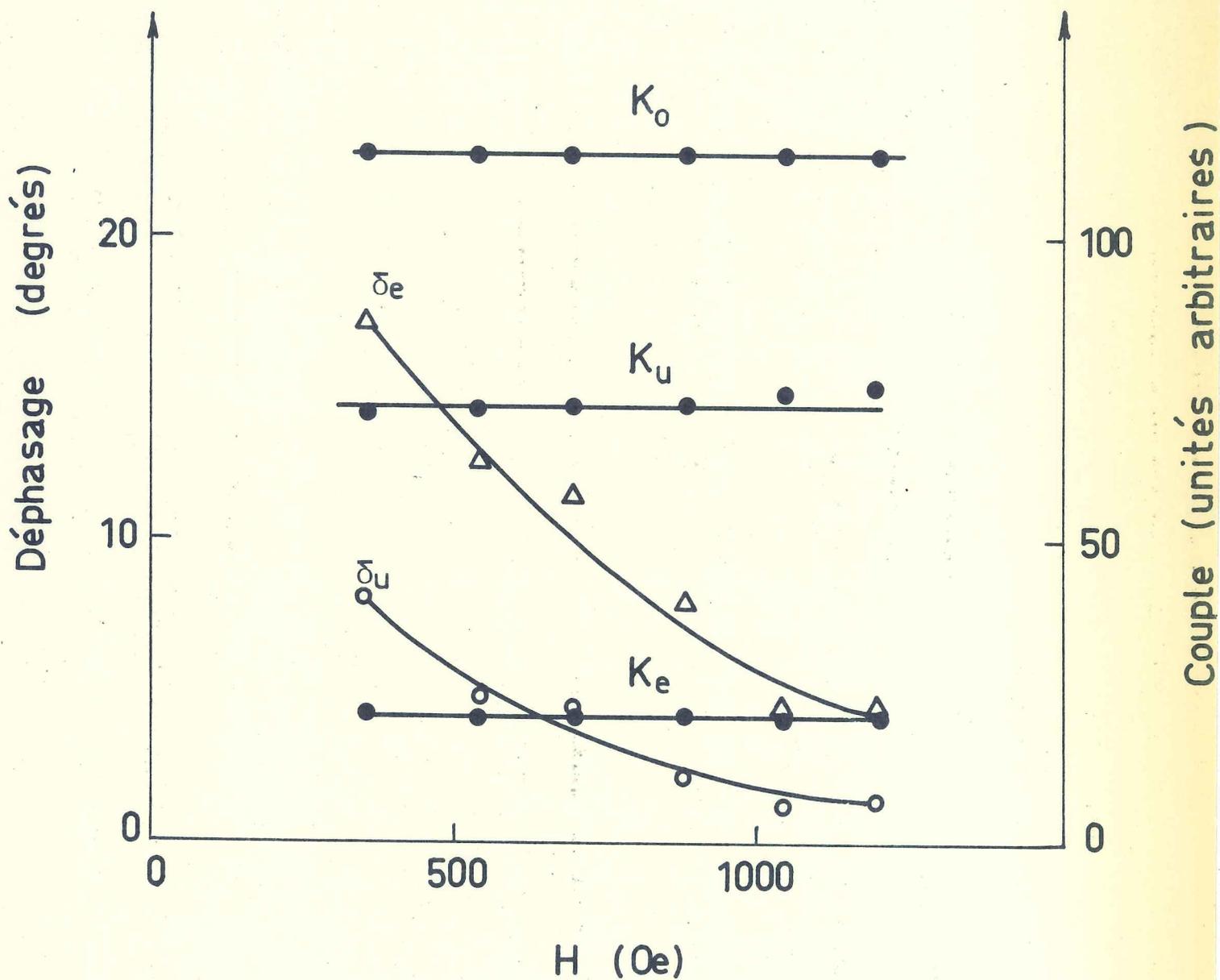


Figure 17 : Variation avec le champ magnétique des composantes de Fourier de la courbe de couple et de leur déphasage . Température - 180°C .

Il semble que l'épaisseur moyenne de la couche d'oxyde soit, pour les conditions d'oxydation utilisées, inférieure à 50 Å.

Tableau VI

Conditions d'oxydation		Epaisseur Co	$\frac{\Delta J}{J}$	Epaisseur oxyde
Température	Durée			
200°C	68 mn	~ 400 Å	~ 5 %	~ 40 Å
150°C	50 mn	~ 200 Å	< 1 %	
200°C	68 mn	~ 200 Å	~ 10 %	~ 40 Å

4.2.2 - Nature et orientation

On a obtenu des diagrammes de diffraction électronique par transmission de couches de cobalt déposées sur des membranes de carbone et oxydées superficiellement. Les anneaux caractéristiques de l'oxyde ne sont pratiquement pas décelables pour une température d'oxydation de 200°C. Sur la figure 11 b, on remarque que lorsque celle-ci est de 300°C, des anneaux caractéristiques des oxydes CoO et Co₃O₄ apparaissent simultanément. Des études antérieures (33) indiquent qu'il peut y avoir une couche de CoO entre le cobalt et une couche de Co₃O₄. Il est d'ailleurs possible que seul l'oxyde CoO apparaisse pour les températures d'oxydation voisines de 200°C. Notons que l'oxyde Co₃O₄ est antiferromagnétique au-dessous de 40°K et ne peut donc être à l'origine des propriétés de couplage mises en évidence à - 180°C.

Les diagrammes de diffraction ne sont pas assez précis pour donner des indications valables concernant éventuellement une orientation privilégiée des cristallites d'oxyde. Mais on admet généralement que la croissance de CoO ou Co₃O₄ sur le cobalt est épitaxiale avec les orientations suivantes (33) :

$$(111)_{\text{oxyde}} // (001)_{\text{Co hexagonal}}$$

$$110_{\text{oxyde}} // (110)_{\text{Co hexagonal}}$$

Les cristallites de cobalt étant orientés préférentiellement avec l'axe C perpendiculaire au plan de la couche, il est probable que les plans d'interface cobalt - oxyde soient le plus souvent des plans (001) dans le cobalt hexagonal et des plans (111) dans l'oxyde CoO.

4.2.3 - Granulométrie

Les figures 13 c et d donnent les images de répliques au carbone de la surface d'une couche déposée à 40°C, avant et après oxydation. Il semble que le relief de la surface soit légèrement plus prononcé après oxydation. Ceci peut indiquer que l'oxydation se fait de façon irrégulière dans le plan de la couche. La vitesse d'oxydation peut en effet dépendre de l'orientation cristallographique du plan d'interface (34). Etant donnée la très faible épaisseur moyenne de la couche d'oxyde, il est même possible qu'elle ne soit pas continue.

On ne peut guère en déduire de renseignements concernant la taille des cristallites antiferromagnétiques. La température d'oxydation étant basse, il ne semble pas possible qu'on puisse obtenir des grains monocristallins dont la dimension dans le plan de la couche soit supérieure à celle des grains de cobalt. Les grains relativement gros doivent être constitués d'un assemblage de grains plus petits. L'oxydation doit d'ailleurs se faire préférentiellement à partir des joints de grains de cobalt.

La couche d'oxyde est donc très inhomogène. Son épaisseur n'est certainement pas uniforme. La taille des cristallites doit être très variable. Elle peut contenir des grains dont la dimension dans le plan de la couche est plus petite que celle des plus petits grains ferromagnétiques et aussi grande que celle des plus gros.

4.3 - MODELE DES GRAINS ANTIFERROMAGNETIQUES

L'inhomogénéité de la couche antiferromagnétique est très certainement à l'origine de la complexité des propriétés de la couche multiple.

La couche d'oxyde n'est pas uniforme mais contient un grand nombre de régions qui diffèrent en particulier par la valeur de la constante de couplage ferro-antiferromagnétique à l'interface. En effet, à l'échelle atomique, l'intensité du couplage est déterminée par l'orientation du plan cristallographique d'interface. A l'échelle d'un cristallite d'autre part, la valeur moyenne A dépend de la structure de l'interface qui n'est évidemment pas constituée d'un seul plan atomique. Il en résulte que A doit varier selon les régions entre des valeurs pratiquement nulles et des valeurs de l'ordre du couplage d'échange dans chacun des matériaux.

Remarquons aussi que la présence éventuelle des deux phases du cobalt, hexagonal et cubique, doit augmenter l'hétérogénéité de l'interface.

Les diverses régions antiferromagnétiques sont des cristallites, qui étant donnée leur petite taille, doivent être le plus souvent monodomaines.

Ces cristallites peuvent en outre différer par leurs épaisseurs.

De plus, il n'est pas certain que l'anisotropie antiferromagnétique soit celle de l'oxyde à l'état massif et le paramètre K_{af} peut aussi varier d'une région à l'autre. Nous reviendrons ultérieurement sur l'origine possible de cette anisotropie. On peut cependant admettre que tout se passe comme si chaque grain avait une anisotropie uniaxiale.

Les couplages entre ces grains antiferromagnétiques sont relativement faibles ou tout au moins beaucoup plus faibles que ceux agissant entre des grains ferromagnétiques. Les directions d'antiferromagnétisme de deux grains voisins doivent alors être pratiquement indépendantes l'une de l'autre. Il n'existe pas de régions de cohérence pour l'aimantation du plan d'interface

antiferromagnétique, comparable aux domaines ferromagnétiques.

On peut alors considérer que la couche antiferromagnétique est composée de trois sortes de cristallites définies par les valeurs relatives du couplage A et de l'anisotropie antiferromagnétique K_{af} (voir 1-4).

Les uns, pour lesquels la constante de couplage est relativement faible ou l'anisotropie relativement grande, contribuent à l'anisotropie unidirectionnelle.

Dans ceux qui correspondent aux valeurs intermédiaires de A , les moments antiferromagnétiques effectuent des mouvements irréversibles lorsque l'aimantation ferromagnétique tourne et sont à l'origine des pertes par hystérésis persistant en champ fort.

Dans les troisièmes, où le couplage est fort ou l'anisotropie faible, les moments n'effectuent que des mouvements réversibles.

Nous voyons ainsi que la présence simultanée des deux phénomènes résulte de l'inhomogénéité des couches antiferromagnétiques.

Le mécanisme d'obtention de l'anisotropie unidirectionnelle est schématisé sur la figure 18. Le blocage d'une région antiferromagnétique se fait pendant le refroidissement dans le sens de sa direction facile qui minimise l'énergie de couplage et il en résulte une anisotropie unidirectionnelle moyenne dont le sens est celui de l'aimantation ferromagnétique pendant le refroidissement.

En ce qui concerne les régions à hystérésis de rotation, l'allure des courbes de couple indique qu'il n'y a pas qu'une position critique du champ pour laquelle ont lieu les mouvements irréversibles de spin et que les pertes par hystérésis ont lieu de façon continue sur tout le cycle. On en conclut qu'il n'y a pas qu'un axe d'anisotropie antiferromagnétique, mais un grand nombre de directions privilégiées. On peut considérer en première approximation que les directions faciles des diverses régions sont distribuées de façon uniforme dans le plan de la couche.

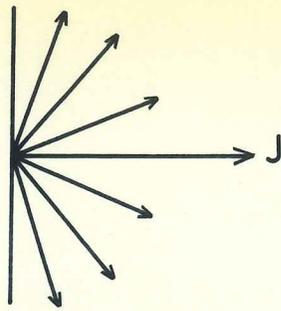


Figure 18 - Mécanisme d'obtention de l'anisotropie unidirectionnelle. J est la direction de l'aimantation pendant le refroidissement. Les flèches correspondent aux directions possibles de l'aimantation superficielle antiferromagnétique à -180°C , dans les régions bloquées.

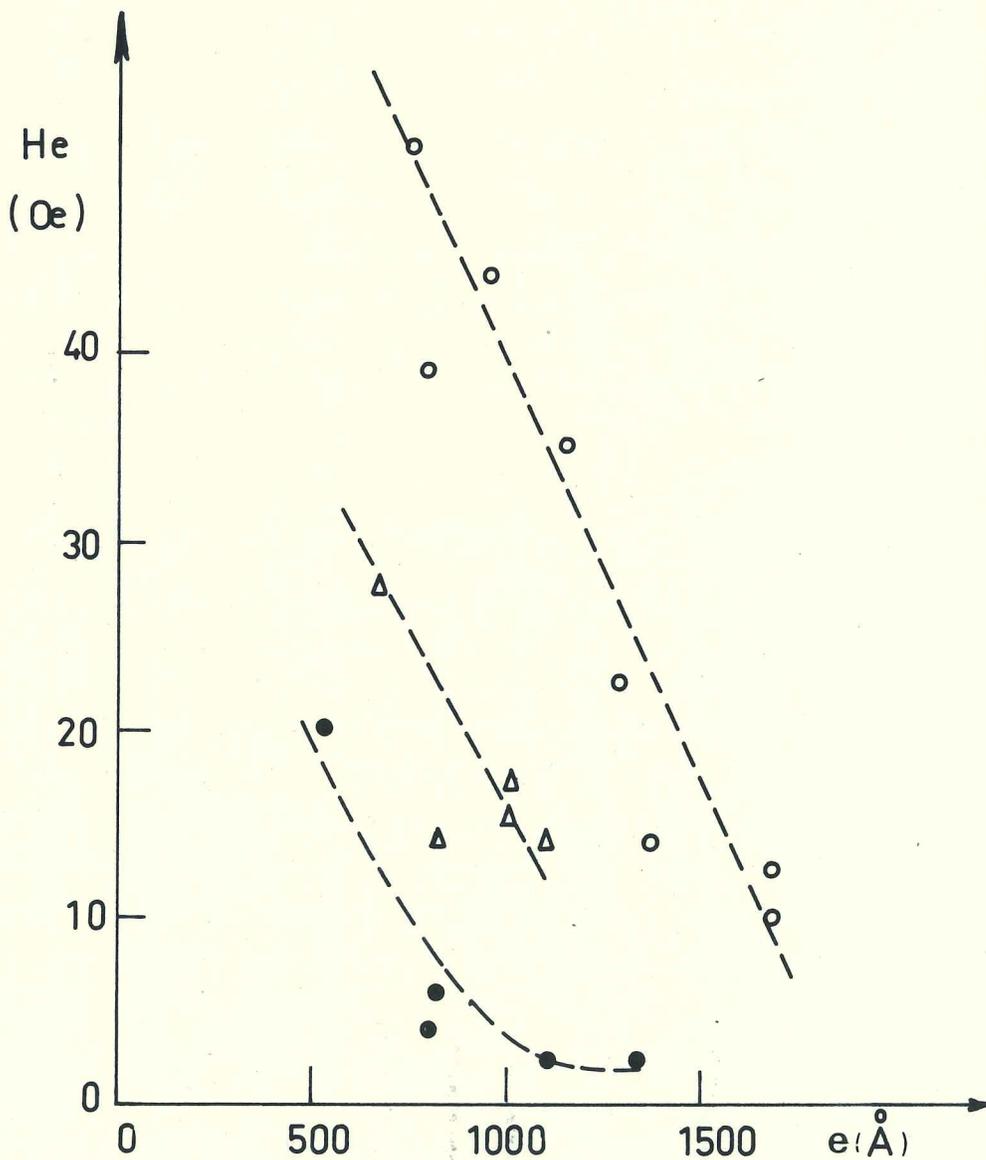


Figure 19 - Variation du champ de couplage H_e avec l'épaisseur e de la couche de cobalt. Les couches de chaque série ont été préparées au cours de la même expérience.

○ $T_s = 40^{\circ}\text{C}$ Oxydation 50 mn à 200°C (série 194 à 201)
 ▲ $T_s = 30^{\circ}\text{C}$ Oxydation 60 mn à 200°C (série 178 à 185)
 ● $T_s = 40^{\circ}\text{C}$ Oxydation 25 mn à 200°C (série 186 à 193)

On peut aussi interpréter l'écart observé entre les déphasages δ_e et δ_u . Si le champ n'est pas très fort, les inhomogénéités de la couche antiferromagnétique doivent entraîner une forte dispersion de l'aimantation ferromagnétique. Ainsi l'angle moyen entre J et H est pratiquement nul dans les régions ferromagnétiques pour lesquelles tout se passe comme si l'antiferromagnétique était inexistant, par exemple parce que la constante de couplage est très faible. Dans d'autres régions, cet angle est au contraire relativement grand. Il faut alors considérer que δ_u est une moyenne prise sur toute la couche, tandis que δ_e correspond seulement aux régions où l'effet de l'antiferromagnétisme n'est pas négligeable.

Le modèle que nous venons de décrire va maintenant nous permettre d'essayer d'interpréter la variation des propriétés des couches, en particulier celle des cycles d'hystérésis relevés à la fréquence de 1000 Hz, en fonction de plusieurs paramètres expérimentaux.

4.4. - ETUDE DES CYCLES D'HYSTERESIS RELEVES A LA FREQUENCE DE 1000 Hz

Le tableau VII rassemble les caractéristiques des cycles d'hystérésis d'un certain nombre de couches.

4.4.1 - Basculement de l'aimantation à - 180°C

On remarque sur la figure 14 que l'aimantation qui bascule à - 180°C n'est qu'une fraction de celle qui bascule à 20°C. Une partie de l'aimantation de la couche de cobalt reste donc bloquée à -180°C même lorsque l'amplitude du champ alternatif atteint 150 Oe. Cette anomalie apparaît seulement lorsqu'il y a aussi décalage du cycle et est par conséquent liée à l'existence du couplage ferro-antiferromagnétique. On verra dans le chapitre suivant que les aimantations qui basculent à 20°C et à - 180°C sont approximativement identiques lorsque la fréquence du champ est de 5.10^{-3} Hz. Il s'agit donc d'un effet de fréquence provenant

Tableau VII - Propriétés des cycles d'hystérésis relevés à la fréquence de 1000 Hz. La température d'oxydation est 200°C pour tous les échantillons

Echantillon	Température du support (°C)	Epaisseur de cobalt (Å)	Durée d'oxydation (minutes)	H _c (Oe) 20°C	H _c (Oe) -180°C	H _e (Oe) -180°C
142 a	40°	1000	15	35	50	25
b	40°	1000	30	39	55	43
c	40°	1000	0	31	62	0
c	40°	1000	60	31	48	31
153	40°	810	25	22,5	31	6,5
154	40°	1390	25	29	34	2,5
155	40°	1290	25	26	28	2,5
156	40°	1110	25	22,5	27,5	4
160	40°	660	25	19,5	40	20
161 b	295°	1100	16	32,5	80	2,5
c	295°	1100	0	32,5	110	0
d	295°	1100	60	32,5	63	6
162	150°	1010	65	25	39	29
163	190°	1010	65	20	40	24
165	300°	1070	65	30	90	15
166	325°	1130	65	32,5	108	10
167	355°	1340	65	34	105	7,5
168	150°	1060	65	30,5	57,5	25
169	250°	980	65	32	72,5	15
194	40°	1100	60	25	27,5	44
197	40°	1460	60	25	21	15
227 e	40°	900	50	20	44	60

de la faible vitesse de basculement de l'aimantation dans certaines régions. Le basculement est beaucoup plus lent dans les régions où les moments antiferromagnétiques sont entraînés d'une manière irréversible par les moments ferromagnétiques. Ces régions constituent à la fréquence de 1000 Hz des centres de blocage pour l'aimantation ou plus exactement pour les parois de domaines. On compare sur le tableau VIII le rapport J_2/J_1 des aimantations basculant à -180°C et à 20°C à la constante K_0 proportionnelle aux pertes par hystérésis de rotation. Il semble bien que J_2/J_1 soit d'autant plus faible que les pertes par hystérésis de rotation sont plus fortes, indépendamment de l'anisotropie unidirectionnelle.

Tableau VIII

Echantillon	K_e (ergs)	K_0 (ergs)	J_2/J_1
138	0	0,10	1
128	0,09	0,31	0,70
142 b	0,61	0,68	0,53
120	0,29	1,60	0,36

4.4.2 - Influence de l'épaisseur de la couche ferromagnétique

Dans le modèle de la couche antiferromagnétique monodomaine, on s'attend à ce que le décalage du cycle H_e varie comme l'inverse de l'épaisseur e de la couche de cobalt :

$$H_e = \frac{K_e}{J} = \frac{A}{Je}$$

Cette loi n'est pas vérifiée expérimentalement, ce qui n'est pas étonnant étant donnée la complexité de nos échantillons. On observe cependant (figure 19) une rapide décroissance de H_e avec e . Les énergies superficielles moyennes de couplage correspondantes sont de l'ordre de $0,1$ à $0,5 \text{ erg/cm}^2$ selon les conditions de préparation.

4.4.3 - Influence des conditions d'oxydation

En l'absence de mesures précises de l'épaisseur de la couche antiferromagnétique, on ne peut que comparer le champ de couplage H_e aux conditions d'oxydation (Tableau IX).

H_e augmente pendant les premiers stades de l'oxydation vraisemblablement parce que l'interface réelle ferro-antiferromagnétique s'étend.

Tableau IX - Température d'oxydation : 200°C

Les couches 142 a, b, c, ont été préparées simultanément et avaient avant oxydation la même épaisseur. Il en est de même des couches 161 b et d.

Echantillon	T_s (°C)	Durée de l'oxydation (mn)	H_e
142 a	40	15	25
b	40	30	43
c	40	60	30
161 b	300	15	2
d	300	60	7

4.4.4 - Influence de la température du support pendant la préparation de la couche ferromagnétique

La figure 20 donne en fonction de la température du support T_s les valeurs du décalage de cycle pour des couches d'épaisseur voisine de 1000 Å oxydées à 200°C pendant 1 h.

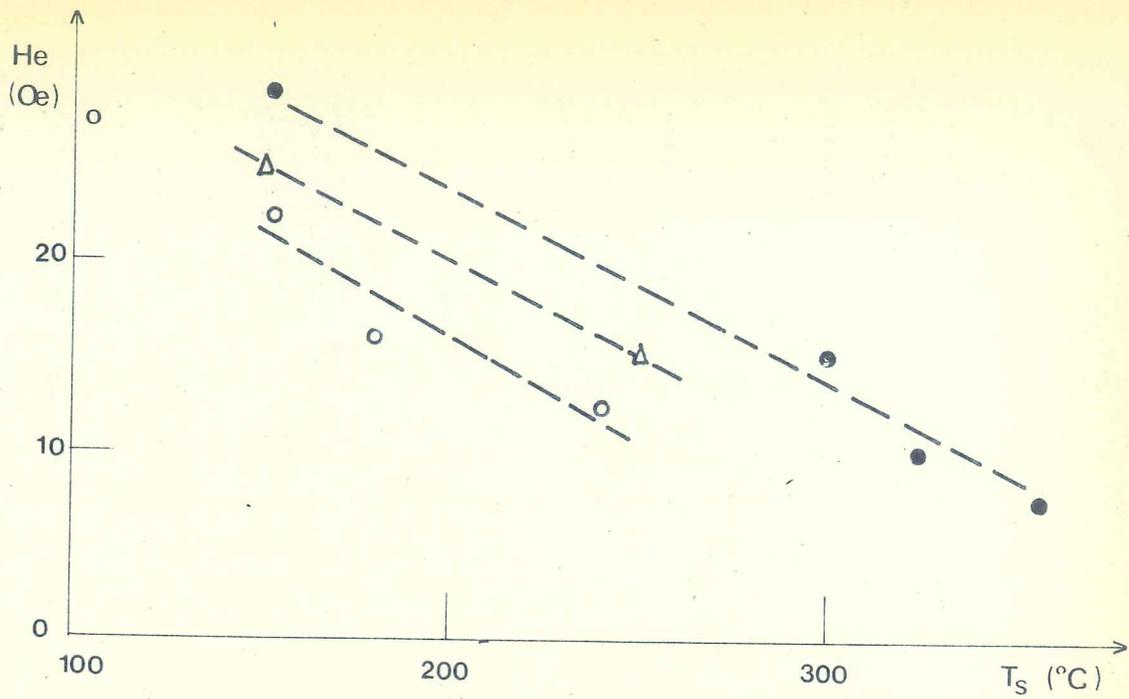


Figure 20 - Variation du champ de couplage avec la température du support pendant l'évaporation. Les 3 courbes correspondent à 3 séries de manipulations.
 Epaisseur $\sim 1000\text{\AA}$. Oxydation : 1 h à 200°C

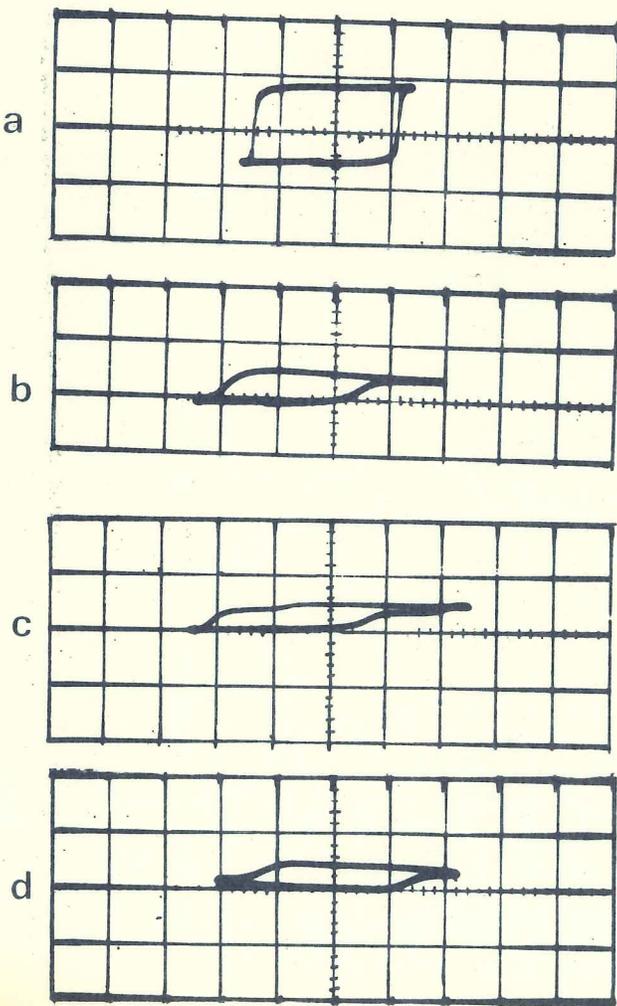


Figure 21 - Effet du mode de refroidissement sur le cycle d'hystérésis
 (a) 20°C (b) (c) et (d) - 180°C
 Le refroidissement est fait en présence d'un champ continu pour (b), dans l'état désaimanté pour (c), en présence d'un champ alternatif pour (d)

On observe une nette décroissance de H_e avec T_s . La structure de la couche de cobalt change avec la température du support et par conséquent l'interface ferro-antiferromagnétique aussi. On sait que les deux phases du cobalt coexistent dans la couche ferromagnétique et il n'est pas impossible que la proportion relative de chacune des phases varie avec T_s , entraînant des modifications pour la couche d'oxyde. Cependant nous pensons que l'origine principale de ce résultat est l'augmentation de la taille des grains de cobalt avec T_s . Si l'oxydation a lieu préférentiellement sur les joints de grains, elle sera d'autant plus facile que les grains seront plus petits et donc plus nombreux, et l'interface réelle ferro-antiferromagnétique sera donc d'autant plus grande. On conçoit alors qu'en particulier l'anisotropie unidirectionnelle varie en sens contraire de la taille des grains, donc de T_s .

4.4.5 - Influence du mode de refroidissement

On a comparé les propriétés à basse température selon que le refroidissement de l'échantillon était effectué en présence d'un champ continu saturant l'aimantation dans la direction facile (refroidissement I), ou en présence d'un champ alternatif parallèle à la même direction, d'amplitude suffisante pour renverser l'aimantation (refroidissement II), ou en l'absence de champ, la couche ayant été préalablement désaimantée à température ambiante (refroidissement III).

La figure 21 donne les cycles d'hystérésis relevés à -180°C dans les trois cas et le tableau X les composantes de Fourier de la courbe de couple.

Tableau X . Composantes de Fourier de la courbe de couple à -180°C selon le mode de refroidissement (Echantillon 120)

Mode de refroidissement	K_u (ergs)	K_e (ergs)	K_o (ergs)
I	0,53	0,29	1,60
II	0,50	0	1,60
III	0,53	0	1,63

Après le refroidissement II, le cycle d'hystérésis n'est pas décalé (Figure 20 d) et la courbe de couple ne contient pas de composante unidirectionnelle. Les régions antiferromagnétiques bloquées à -180°C le sont en moyenne en aussi grand nombre dans les deux sens de la direction facile. Comme elles sont de taille beaucoup plus petites que les domaines ferromagnétiques, l'effet résultant sur la couche de cobalt est nul et il n'y a pas d'anisotropie unidirectionnelle. Le blocage intervenu au cours du refroidissement n'a donc pas eu lieu simultanément dans tous les grains mais pendant des alternances différentes du champ alternatif, à diverses températures, en particulier à cause de la variation de l'intensité du couplage selon les régions.

Lorsque la couche ferromagnétique est à l'état désaimanté pendant le refroidissement, le cycle d'hystérésis à -180°C est "en escalier" (Figure 20 C). La couche de cobalt comprenant aux températures intermédiaires deux sortes de domaines aimantés en sens contraire, le blocage des grains antiferromagnétiques a lieu dans un sens ou dans l'autre selon l'état d'aimantation de la région ferromagnétique à laquelle ils sont couplés. La structure en domaines pendant le refroidissement est en quelque sorte "imprimée" sur la couche d'oxyde. Comme les différentes parties de la couche correspondant aux deux

sens du couplage sont de la taille des régions de cohérence ferromagnétique, les deux effets ne se moyennent pas mais se superposent et le cycle d'hystérésis est la superposition de deux cycles distincts. La différence entre les modes de refroidissement II et III n'apparaît pas sur la courbe de couple, car dans le cas III, si la couche a été au préalable parfaitement désaimantée, la composante résultante K_e est nulle.

Les pertes par hystérésis ne dépendent pas du mode de refroidissement. Les moments des grains antiferromagnétiques y contribuant effectuent de toute manière à -180°C des mouvements irréversibles autour de l'aimantation, quel que soit le processus de refroidissement.

CHAPITRE V

HYSTERESIS ALTERNATIVE - CONTRACTION DU CYCLE D'HYSTERESIS

Dans les systèmes à couplage ferro-antiferromagnétique, les pertes par hystérésis de rotation sont caractéristiques du matériau antiferromagnétique, dès que le champ est assez fort pour que le ferromagnétique soit saturé. Une partie au moins des pertes alternatives doit aussi provenir des moments antiferromagnétiques. Une étude détaillée de l'hystérésis dans ces substances constitue donc une étude de l'hystérésis antiferromagnétique et présente un grand intérêt. Les champs très forts nécessaires sont produits dans ce cas par le couplage avec le ferromagnétique.

Nous avons d'abord été amené à confronter les valeurs du décalage de cycle H_e relevé à 1000 Hz et de la constante d'anisotropie unidirectionnelle. H_e et K_e/J sont très différents (Tableau XI).

Tableau XI

Echantillon	H_e (Oe) (1000 Hz)	K_e/J (Oe)
227 e	60	92
197	15	32

Ce résultat n'est pas surprenant. D'une part, le basculement de l'aimantation en champ alternatif ne se fait pas par rotation cohérente, il y a création et déplacement de parois. D'autre part, on a vu que le cycle relevé à 1000 Hz est caractéristique d'une fraction de la couche seulement, certaines régions étant bloquées, alors qu'en champ tournant, toute l'aimantation de la couche est entraînée par le champ. De plus, la couche antiferromagnétique est très inhomogène et fort différente

d'une couche monodomaine.

Il semblait toutefois intéressant d'obtenir le cycle d'hystérésis par une méthode statique ou quasi-statique. Ceci a été fait à la fréquence de $5 \cdot 10^{-3}$ Hz.

5.1 - CONTRACTION DU CYCLE D'HYSTERESIS

Les cycles décrits successivement après le refroidissement à -180°C ne se superposent pas. On observe un rétrécissement du cycle auquel correspond une diminution de H_c et de H_e , sans variation mesurable de l'aimantation basculant lors de chaque cycle (Figure 22). Cette "contraction" se poursuit encore après description d'une centaine de cycles. On note que la variation entre le 1er et le 2ème cycle est beaucoup plus importante que les suivantes. Le premier basculement a lieu pour une valeur du champ bien définie, tandis que pour les basculements ultérieurs, une petite fraction de l'aimantation commence à se renverser dans des champs très éloignés du champ coercitif moyen.

Soient H_n et H'_n les champs coercitifs réels, respectivement descendant et ascendant, correspondant au $n^{\text{ième}}$ cycle. Lorsque n est compris entre 2 et environ 50, H_n et H'_n varient approximativement suivant une loi en $n^{-1/2}$ (Figure 23) :

$$H_n - H_{\infty}^* = - B n^{-1/2} \qquad H'_n - H_{\infty}'^* = B' n^{-1/2}$$

H_{∞}^* , $H_{\infty}'^*$, B et B' sont des constantes déterminées expérimentalement. B est toujours plus grand que B' . On ne peut cependant pas considérer H_{∞}^* et $H_{\infty}'^*$ comme des valeurs limites pour n infini, car au-delà de n voisin de 50, les lois ci-dessus ne sont plus vérifiées. La contraction se poursuit pour n compris entre 200 et 1000 environ suivant une loi approximativement en n^{-1} (figure 24 b).

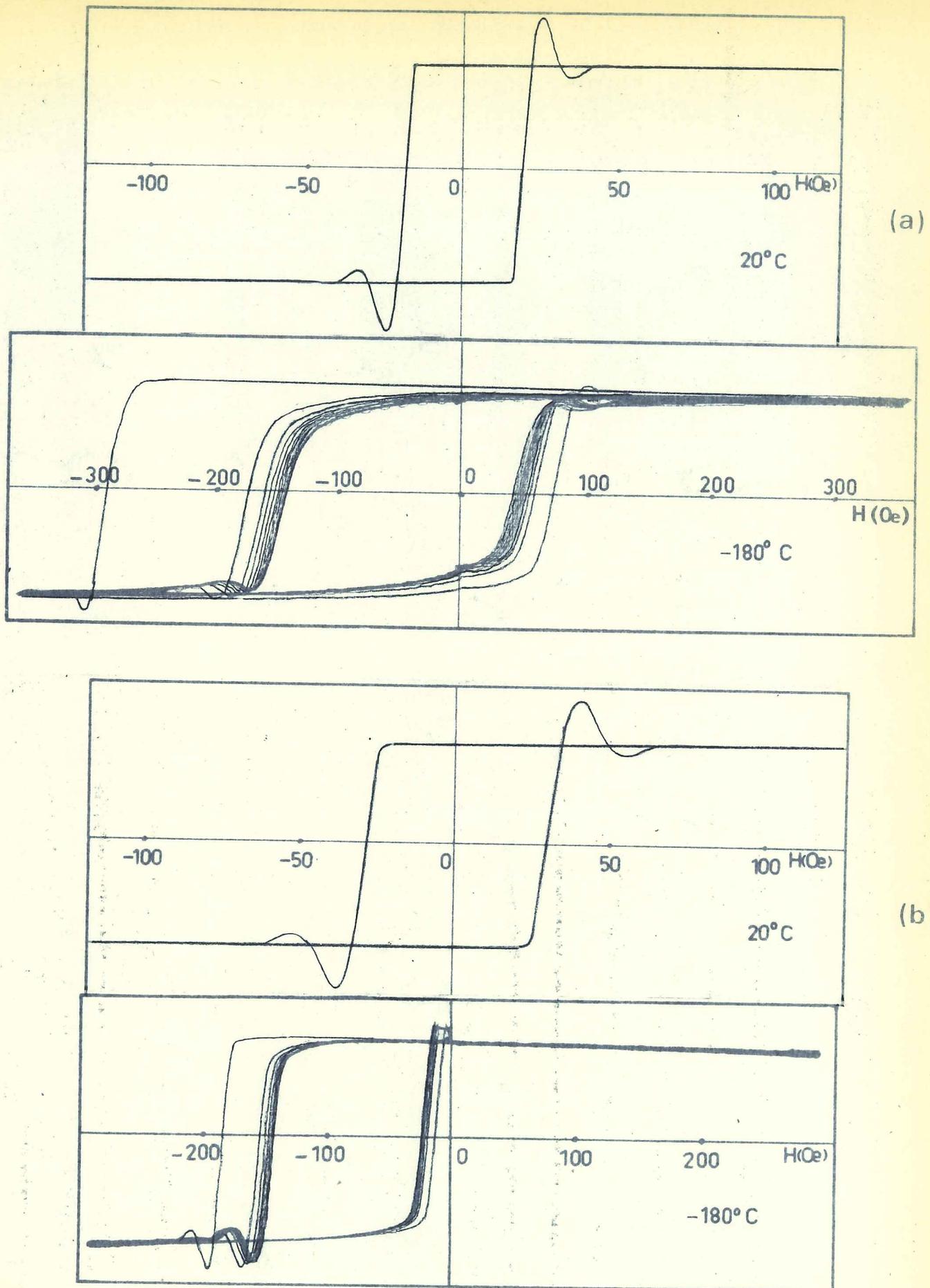
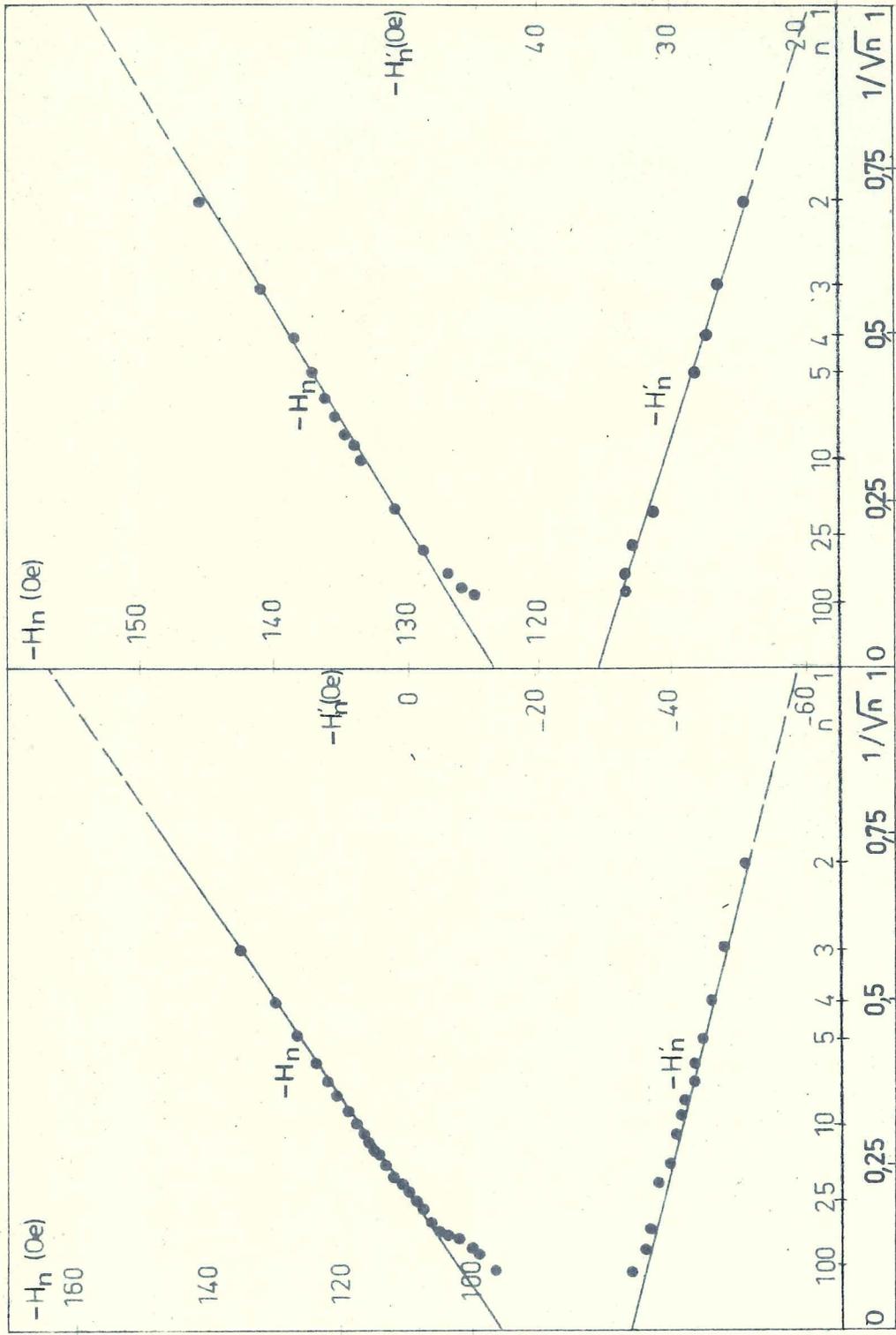


Figure 22 - Contraction du cycle d'hystérésis . Les oscillations proviennent de l'appareil de mesure.
 a. Echantillon 229 f b. Echantillon 227 e



(a)

(b)

Figure 23 - Variation des champs coercitifs H_n et H'_n avec n .
 a. Echantillon 228 f. b. Echantillon 227 e.

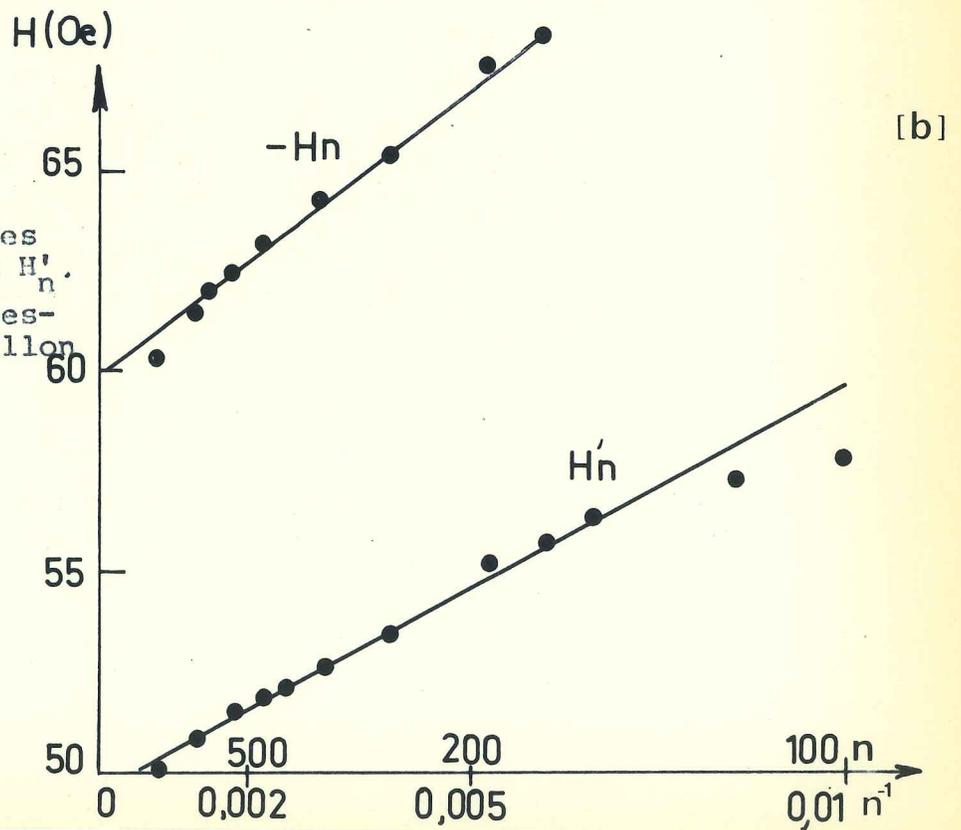
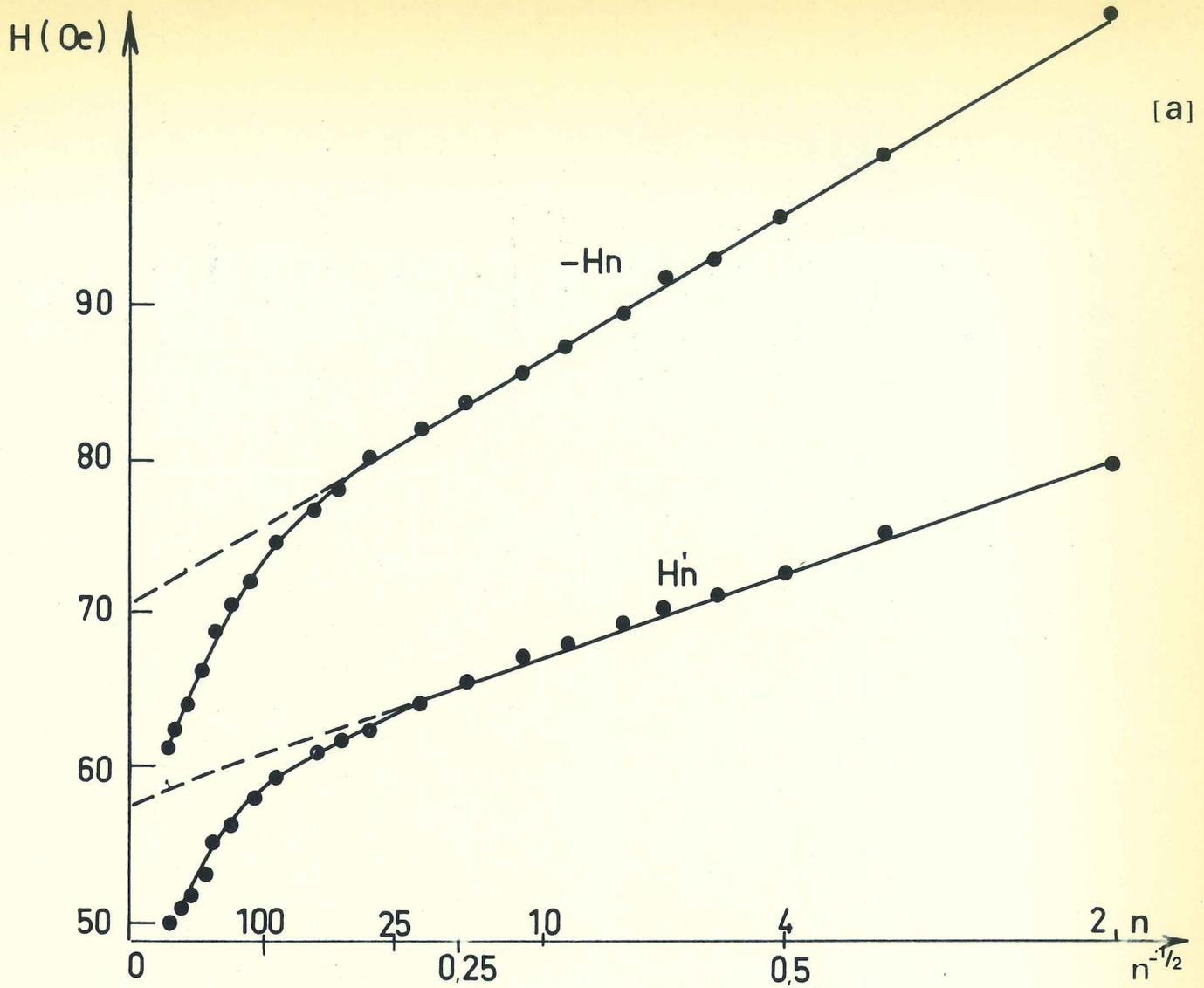


Figure 24 - Variation des champs coercitifs H_n et H'_n .
Les figures a et b correspondent au même échantillon.

Les résultats précédents proviennent de modifications irréversibles de l'état magnétique de la couche antiferromagnétique lors des basculements successifs. Ces modifications sont très certainement liées aux interactions existant entre les différents grains antiferromagnétiques.

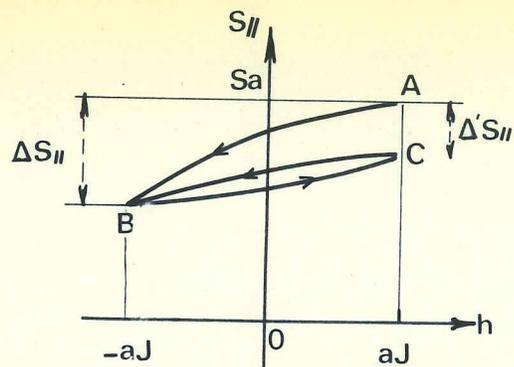
5.2 - VARIATION ENTRE LES DEUX PREMIERS CYCLES

5.2.1 - Interprétation

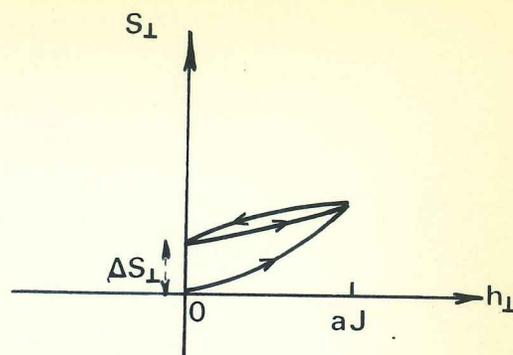
Nous rappellerons rapidement l'interprétation qui en a été donnée par L. Néel par analogie avec les propriétés des corps ferromagnétiques.

Admettons que dans une couche polycristalline, l'énergie superficielle de couplage soit encore de la forme $-a \vec{S} \cdot \vec{J}$, où a est une constante moyenne de couplage et \vec{S} la somme des aimantations superficielles d'un grand nombre de cristallites antiferromagnétiques. On voit que toutes les propriétés du couplage dépendent essentiellement de la valeur de \vec{S} . Le comportement de \vec{S} en présence du champ fictif $a \vec{J}$ doit être l'analogie de celui de l'aimantation d'une substance ferromagnétique en présence d'un champ extérieur.

L'aimantation superficielle initiale S_a parallèle à la direction facile, acquise après refroidissement depuis une température supérieure au point de Néel en présence du champ continu $a \vec{J}$ est l'analogie d'une aimantation anhystérétique thermique. Lorsque l'aimantation \vec{J} bascule, les cycles d'hystérésis décrits par \vec{S} , en ce qui concerne les variations irréversibles, doivent alors avoir l'allure représentée sur la figure 25 a. D'autre part, si l'on admet que l'aimantation ferromagnétique varie de \vec{J} à $-\vec{J}$ par rotation toujours dans le même demi-plan de la couche, le système antiferromagnétique acquiert aussi une aimantation ΔS_{\perp} dans la direction difficile (Figure 25 b). A partir



(a)



(b)

Figure 25 : Cycles décrits par l'aimantation superficielle antiferromagnétique

a. Direction facile

b. Direction difficile

D'après L. Néel (22)

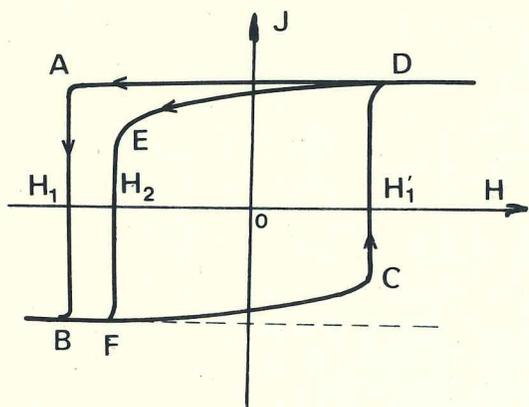


Figure 26 : Schéma du cycle décrit par l'aimantation ferromagnétique

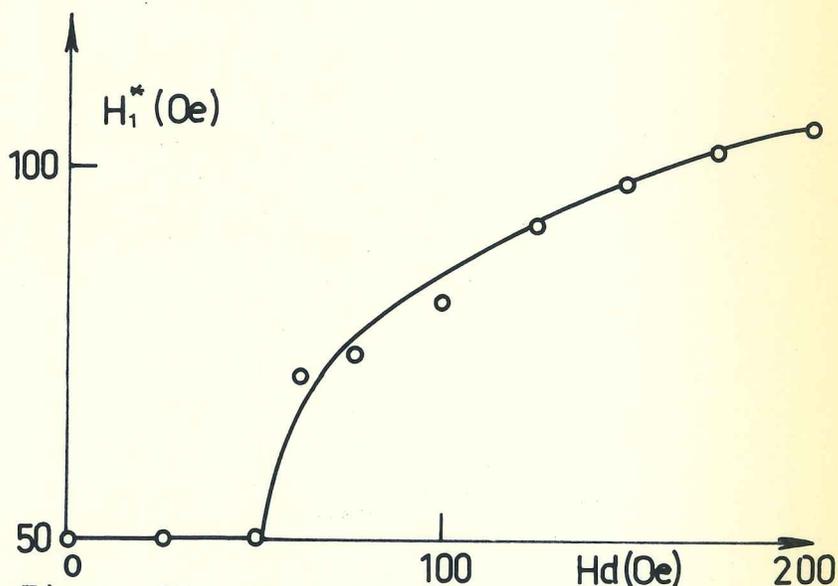


Figure 27 : Variation du premier champ coercitif H_1^* mesuré après application d'un champ alternatif H_d dans la direction difficile, en fonction de H_d .

de ces hypothèses, L. Néel (22) a montré que les champs coercitifs successifs du matériau ferromagnétique devaient être :

$$H_1 = - H_k - \frac{a}{e} S_a$$

$$H_1' = H_k - \frac{a}{e} (S_a - \Delta S_{//}) - h_{\perp}$$

$$H_2 = - H_k - \frac{a}{e} (S_a - \Delta' S_{//}) + h_{\perp}$$

$$h_{\perp} \text{ est donné par : } h_{\perp} = \left[H_k + \frac{a}{2e} (\Delta S_{//} - \Delta' S_{//}) \right] (1 - \cos^3 \epsilon_1)$$

$$\text{avec : } \epsilon = \frac{a \Delta S_{\perp}}{(H_a - H) e - a (S_a - \Delta S_{//})}$$

H_k est le champ d'anisotropie de la couche ferromagnétique en l'absence de couplage, e est l'épaisseur de cette couche. S_a , $\Delta S_{//}$ et $\Delta' S_{//}$ sont définis sur la figure 25 a. ϵ est l'angle que fait \vec{J} avec la direction privilégiée, ϵ_1 sa valeur lors du début du basculement. On a schématisé sur la figure 26 les cycles d'hystérésis correspondants.

L. Néel a interprété les cycles d'hystérésis de la figure 25 a dans le cas des substances ferromagnétiques au moyen du modèle correspondant au diagramme de Preisach (35). On considère que le matériau est constitué d'un grand nombre de grains à anisotropie uniaxiale. Dans le cas de la couche antiferromagnétique pour laquelle on admet que les axes faciles des grains sont distribués de façon isotrope dans le plan de la couche, tout se passe comme si pour une partie des grains, la direction facile de la couche ferromagnétique était la direction facile du grain et pour les autres la direction difficile. Du point de vue de l'aimantation superficielle antiferromagnétique, on peut admettre que certains grains ont des cycles rectangulaires et d'autres des cycles linéaires et réversibles. Les derniers ne pouvant donner lieu qu'à des phénomènes réversibles, on

n'en tient pas compte. En ce qui concerne les premiers, pour traduire les diverses interactions qui s'exercent entre les grains, on suppose que les cycles sont dissymétriques et on admet que le décalage est indépendant de l'aimantation tant qu'elle est assez faible. On est donc ramené à l'étude de l'aimantation d'un système de grains à cycles rectangulaires dissymétriques. L'annexe II donne l'interprétation au moyen de ce modèle des cycles de la figure 25 a. Les deux origines physiques du phénomène sont les suivantes : d'une part, le champ fictif de couplage est relativement très grand au point de Néel et oriente donc fortement les aimantations des différents grains ; d'autre part, par suite des couplages entre grains, l'aimantation anormalement forte ainsi acquise n'est pas conservée après description d'un cycle.

5.2.2 - Comparaison avec l'expérience

A partir des cycles relevés expérimentalement, on peut obtenir des ordres de grandeur de $\frac{a}{e} S_a$, $\frac{a}{e} \Delta S_{//}$ et $\frac{a}{e} \Delta' S_{//}$. La détermination des champs h_{\perp} et h'_{\perp} exige la connaissance des angles ϵ_1 et ϵ'_1 . On ne peut qu'obtenir des valeurs approchées de ces quantités à partir de la forme du cycle d'hystérésis. Nous avons donc admis que ϵ_1 et ϵ'_1 étaient égaux et que $\cos \epsilon_1$ était de l'ordre de 0,9. On calcule h_{\perp} par :

$$h_{\perp} = (H'_1 - H_2) \frac{1 - \cos^3 \epsilon_1}{2 \cos^3 \epsilon_1} \approx 0,18 (H'_1 - H_2).$$

Les valeurs ainsi obtenues pour divers échantillons sont souvent voisines de 30 Oe. D'autre part, on ne peut mesurer le champ d'anisotropie H_k de la couche ferromagnétique en l'absence de couplage, à basse température. Mais les mesures faites sur les couches non oxydées ont montré que le champ coercitif à - 180°C est de l'ordre de 60 Oe. Le tableau XII donne les valeurs de $\frac{a}{e} S_a$, $\frac{a}{e} \Delta S_{//}$ et $\frac{a}{e} \Delta' S_{//}$ calculées avec $h_{\perp} = h'_{\perp} = 30$ Oe et

$H_k = 60 \text{ Oe.}$

On remarque que $\Delta S_{//}$ est généralement d'un ordre de grandeur comparable à S_a , tandis que $\Delta' S_{//}$ est notablement plus faible que S_a , parfois même pratiquement nul. Donc une bonne partie de l'aimantation superficielle antiferromagnétique bascule lors du premier renversement de J et le cycle qu'elle décrit ensuite correspond à des variations de S importantes. On peut en conclure que le champ fictif de couplage a J est du même ordre de grandeur que le champ coercitif du système antiferromagnétique.

Tableau XII - Contractions du cycle d'hystérésis. Les calculs ont été faits avec : $h = 30 \text{ Oe}$ et $H_k = 60 \text{ Oe}$

Echantillon	H_1 (Oe)	H_2 (Oe)	H'_1 (Oe)	$\frac{a}{e} S_a$ (Oe)	$\frac{a}{e} \Delta S_{//}$ (Oe)	$\frac{a}{e} \Delta' S_{//}$ (Oe)	W_r (°)	W_{a_2}	$\frac{W_r}{W_{a_2}}$	$\frac{W_r}{H_2 - H_1}$ (°)
227 c	- 306	- 245	- 60	246	156	31	$0,88 \cdot 10^6$	$0,50 \cdot 10^6$	1,66	13 600
d	- 221	- 180	- 31	161	100	9	0,50	0,40	1,23	12 200
e	- 177	- 145	- 17	117	70	2	0,45	0,34	1,30	14 200
f	- 162	- 134	0	102	72	- 2	0,44	0,37	1,21	15 875
228 f	- 275	- 156	61	215	246	89	1,08	0,55	1,95	9 100
229 a	- 289	- 216	- 41	229	158	43	0,91	0,48	1,91	12 550
e	- 252	- 176	- 53	192	109	46	1,10	0,34	3,24	14 550
f1	- 240	- 162	- 61	180	89	48	1,09	0,28	3,92	13 300

(° ergs/cm³ de Co
(°° ergs/cm³/Oe

5.2.3. Effet d'un champ alternatif appliqué dans la direction difficile

Lorsqu'on a décrit n cycles à -180°C, pour obtenir à nouveau le premier cycle, il est nécessaire de réchauffer l'échan-

tillon et de renouveler le refroidissement. Mais si on applique après le $n^{\text{ième}}$ cycle à la température de mesure un champ alternatif H_d dans la direction difficile de la couche ferromagnétique, le premier cycle décrit après ce processus est plus large que le précédent. La figure 27 donne la valeur du premier champ coercitif H_1^* ainsi mesuré à l'hystérésiscope en fonction de H_d . (p. 38 a)

L'effet de H_d est essentiellement de diminuer la composante ΔS_1 de l'aimantation superficielle antiferromagnétique et par conséquent d'augmenter le champ coercitif H_n . En présence de H_d , l'aimantation de la couche ferromagnétique s'oriente partiellement dans la direction difficile si bien que l'antiferromagnétique voit un champ fictif alternatif dans cette direction. L'amplitude de ce champ fictif dépend de la valeur de H_d tant que H_d est inférieur au champ nécessaire pour saturer l'aimantation ferromagnétique dans la direction difficile.

5.3 - CONTRACTION A PARTIR DU DEUXIEME CYCLE

5.3.1 - Interprétation

La contraction du cycle d'hystérésis de la couche ferromagnétique correspond pour l'aimantation superficielle antiferromagnétique à des cycles du type de ceux schématisés sur la figure 29 a. Une image du phénomène est donnée par l'expérience réalisée par W.L. Roth sur un monocristal de NiO (36). Sous l'effet d'une contrainte prolongée, une paroi de domaine en T était déplacée et lorsque l'expérience était répétée un grand nombre de fois, la paroi devenait en quelque sorte de moins en moins sensible à la contrainte et finissait par se stabiliser. Dans notre cas, le champ fictif de couplage remplacerait la contrainte. Cependant, il est peu probable que les variations de S dans nos échantillons soient dues à des déplacements de parois, étant donnée la petite

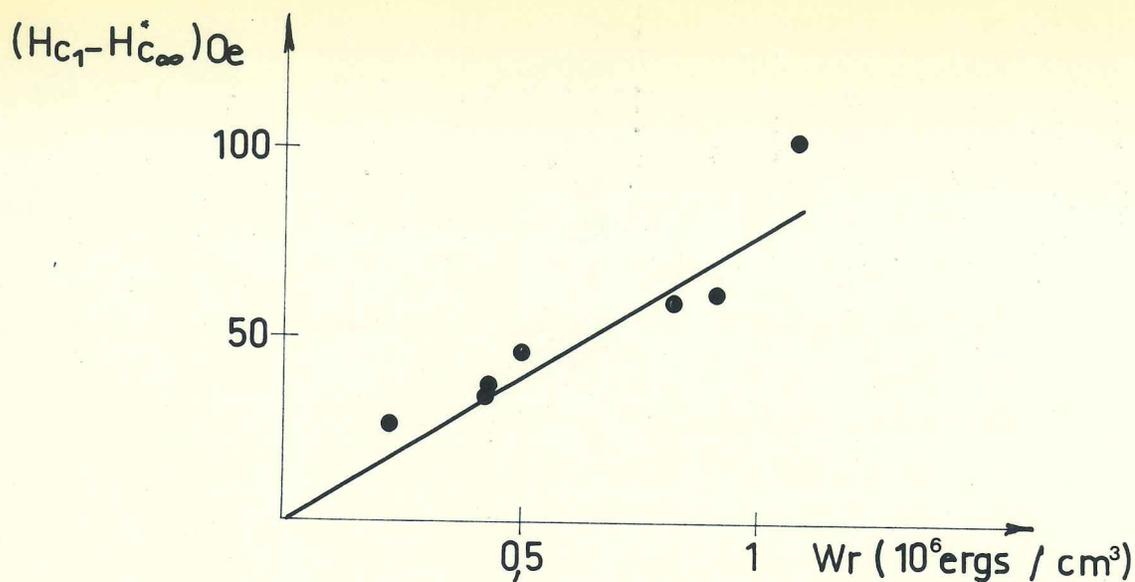


Figure 28 - Comparaison de la contraction du cycle et de l'hystérésis de rotation

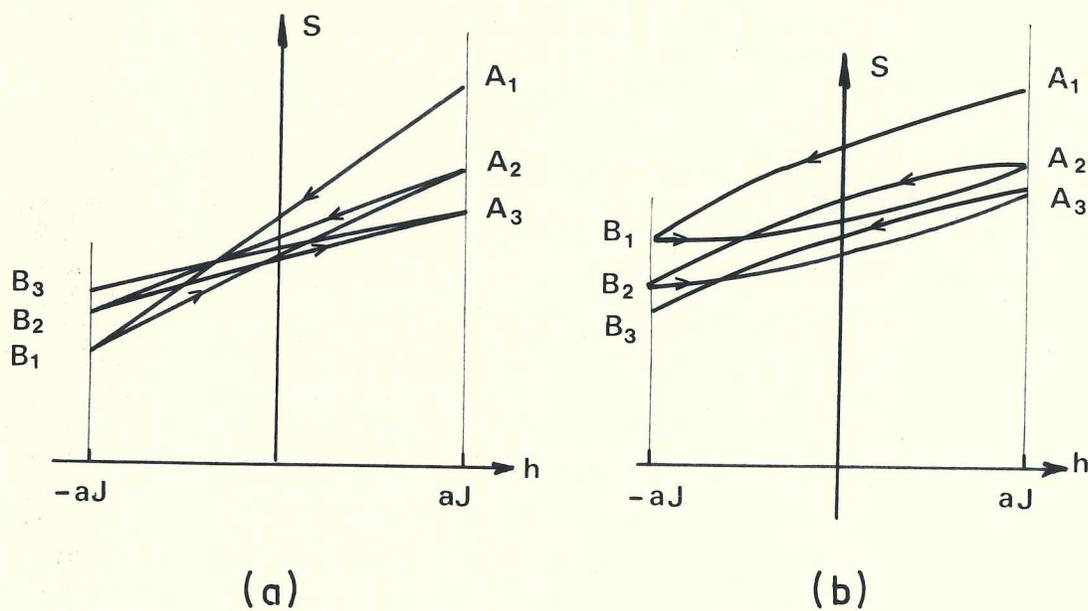


Figure 29 - a. Bascule négative b. Reptation
D'après L. Néel (22)



Figure 30 - Couplage négatif entre deux régions séparées par une marche dans l'interface

taille des grains antiferromagnétiques.

L. Néel a expliqué ces résultats par analogie avec les phénomènes de bascule et reptation observés sur les matériaux ferromagnétiques en champ inférieur au champ coercitif, et provenant des interactions existant entre différentes régions (22). La bascule dite "négative" est schématisée sur la figure 29 a et la reptation sur la figure 29 b. De fortes interactions négatives entre grains proches voisins peuvent être à l'origine de la bascule négative (37) tandis que des interactions à plus grande distance entre un grand nombre de régions peuvent entraîner de la reptation (38).

La bascule négative est obtenue lorsqu'un échantillon préalablement désaimanté est soumis à un champ alternatif variant entre 0 et H. Or, l'état initial de S, analogue à l'état d'aimantation anhystérétique thermique, doit avoir des propriétés équivalentes à l'état désaimanté (22).

Pour les cycles d'hystérésis des couches Co-CoO, la bascule négative se traduirait par une augmentation de H_n et une diminution de H'_n et la reptation par une augmentation de H_n et H'_n . Les résultats expérimentaux montrent que la bascule est prépondérante. Cependant, on s'attend à ce que les effets de bascule, qui ne font intervenir que des couplages entre proches voisins, se manifestent surtout sur les premiers cycles et atteignent rapidement leur limite, tandis que les effets de reptation seraient encore mesurables pour les cycles d'ordre très élevé.

5.3.2 - Lois quantitatives

Si l'on appelle S_n et S'_n les aimantations superficielles $S_{//}$ acquises respectivement après le $(2n - 2)^{i\text{ème}}$ et le $(2n - 1)^{i\text{ème}}$ basculement, on doit avoir :

$$\left\{ \begin{array}{l} S_{n-1} - S_{\infty}^* = (S_0^* - S_{\infty}^*) n^{-1/2} \\ S'_{n-1} - S_{\infty}^{\prime*} = (S_0^{\prime*} - S_{\infty}^{\prime*}) n^{-1/2} \end{array} \right. \quad \text{pour } z \leq n \leq 50$$

et des relations analogues pour S_{\perp} .

Pour tenter de justifier une telle loi, on aurait à considérer un système comprenant au moins une centaine de grains antiferromagnétiques doués d'anisotropie uniaxiale et soumis au champ fictif $\frac{1}{2} h$ de couplage avec le ferromagnétique. Il faudrait tenir compte des couplages entre grains et ne pas se limiter aux couplages entre proches voisins. On pourrait alors calculer les aimantations superficielles antiferromagnétiques correspondant aux diverses positions d'équilibre du système. Le résultat dépendrait fortement du choix des termes de couplage entre grains. Une telle étude serait longue et fastidieuse. Il serait encore beaucoup plus difficile d'étudier les cycles d'ordre supérieur à environ 50, car il faudrait vraisemblablement considérer un système à nombre de grains encore plus grand.

Remarquons que les modèles purement statistiques où l'on considère par exemple, que le nombre des grains qui se retournent à chaque basculement obéit à une loi simple, conduisent généralement à des variations exponentielles de S avec n et de plus ne reposent sur aucune base physique sérieuse.

5.3.3 - Origine possible des interactions entre grains

Les interactions du type dipolaire n'existent pratiquement pas entre grains antiferromagnétiques, ou tout au moins ne peuvent qu'être très faibles puisque les aimantations mises en jeu seraient des aimantations superficielles et non des aimantations en volume comme dans le cas de grains ferromagnétiques.

Le couplage d'échange direct sur la surface des joints de grains de CoO accolés peut donner lieu à des interactions positives ou négatives, vraisemblablement faibles.

L. Néel a proposé que le mécanisme schématisé sur la figure 30 puisse être à l'origine de fortes interactions négatives (22). Si dans un grain donné, le plan d'interface ferro-antiferromagnétique présente une marche, les moments antiferromagnétiques peuvent être ordonnés en l'absence de couplage avec le ferromagnétique comme l'indique la figure, et les aimantations superficielles des régions I et II sont alors de signe contraire. Ces deux régions sont donc fortement couplées négativement.

Nous pensons que les interactions entre grains antiferromagnétiques peuvent aussi être des interactions indirectes par l'intermédiaire des grains ferromagnétiques. Ces derniers sont en effet fortement couplés entre eux et l'aimantation ferromagnétique est relativement homogène, ce qui doit entraîner des couplages positifs entre des grains antiferromagnétiques même éloignés les uns des autres et justifie les phénomènes de reptation.

5.4 - COMPARAISON DE L'HYSTERESIS DE ROTATION ET DE L'HYSTERESIS ALTERNATIVE

L'expérience semble montrer que plus le phénomène de contraction est important, plus les pertes par hystérésis de rotation sont fortes. On a porté sur la figure 28 (p. 42 a), les valeurs de $(H_{c1} - H_{c\infty}^*)$ en fonction de W_r pour différents échantillons ; H_{c_n} est la demi-largeur du $n^{\text{ième}}$ cycle, $H_{c\infty}^*$ sa valeur extrapolée par la loi en $n^{-1/2}$; W_r qui correspond aux pertes mesurées après plusieurs cycles de rotation de H toujours dans le même sens est sensiblement indépendant de l'ordre n de la rotation dès que n est plus grand que 2. On remarque aussi sur le tableau XII que l'ordre de grandeur du rapport $W_r / (H_2 - H_1)$ est à peu près le même pour divers échantillons. Ces résultats indiquent que $\Delta S_{//}$ et W_r sont grossièrement proportionnels. Si l'on admet que les pertes en champ tournant sont proportionnelles aux pertes en champ alternatif,

on en conclut que les pertes par cycle varient approximativement selon les échantillons, comme l'écart à la fermeture du 1er cycle. Ces deux quantités doivent en effet dépendre essentiellement de l'amplitude du champ fictif de couplage $a J$ et un tel résultat n'est pas surprenant.

Il est cependant plus intéressant de comparer les pertes en champ tournant aux pertes en champ alternatif qui, à partir du 2ème cycle sont liées à l'écart entre $\Delta S_{//}$ et $\Delta' S_{//}$. L. Néel a montré, toujours par analogie avec les propriétés des ferromagnétiques, qu'on devait avoir :

$$W_r = 2 k k' J (H_1' - H_2 - 2 H_k + 2 h_1) < 2 J (H_1' - H_2) \quad (22)$$

On a relevé sur le tableau XII les valeurs de $W_a = 2 J (H_2' - H_2)$ ainsi que le rapport W_r/W_a . On constate que ce rapport varie environ entre 1 et 4 alors qu'on s'attend à ce qu'il soit au maximum de l'ordre de 1.

Ces résultats indiquent qu'on ne peut pas interpréter toutes les propriétés du couplage en considérant seulement une aimantation superficielle antiferromagnétique macroscopique. Dans certains cas, il est certainement préférable de tenir compte de la structure réelle des couches et d'étudier par exemple un ensemble de grains fins.

CHAPITRE VI

HYSTERESIS OSCILLANTE

L'hystérésis oscillante, définie par L. Néel (22), est relative à un échantillon placé dans un champ magnétique de grandeur constante oscillant angulairement entre deux directions fixes faisant entre elles un angle ψ . L'étude de l'hystérésis alternative ou de l'hystérésis de rotation, qui correspond au cas où le champ tourne toujours dans le même sens, ne peut se faire qu'en fonction de l'intensité du champ et éventuellement de la fréquence. Avec l'hystérésis oscillante, on dispose d'un paramètre supplémentaire qui est l'angle ψ de l'oscillation. Cette méthode d'étude de l'hystérésis doit donc donner des renseignements que ne peuvent donner ni les pertes alternatives, ni les pertes de rotation.

L'hystérésis oscillante correspondant à un nouveau type de mesure, nous nous sommes d'abord intéressé au cas relativement simple d'une couche ferromagnétique à anisotropie uniaxiale.

6.1 - COUCHE FERROMAGNETIQUE A ANISOTROPIE UNIAXIALE

6.1.1 - Théorie

On peut facilement prévoir les résultats dans le cas d'un échantillon monodomaine à anisotropie uniaxiale. On sait que les pertes par hystérésis de rotation n'apparaissent que lorsque le champ magnétique est compris entre $H_k/2$ et H_k (Chapitre I et Annexe I). Il est clair qu'il en est de même pour l'hystérésis oscillante.

On montre (Annexe I) que si l'aimantation J est

initialement parallèle au champ dans la direction facile et que l'on fait tourner H , J suit d'abord réversiblement H tant que θ (figure 2 b) est inférieur à une valeur critique α , effectue un saut irréversible pour $\theta = \alpha$, suit encore réversiblement J jusqu'à $\theta = \alpha + \pi$, effectue un nouveau saut irréversible et un tel processus se répète à chaque demi-tour si H tourne toujours dans le même sens. Pour le sens inverse de rotation les discontinuités ont lieu pour les valeurs $(\pi - \alpha)$ et $(2\pi - \alpha)$ de θ . L'angle critique α varie de $3\pi/4$ à $\pi/2$ lorsque H croît de $H_k/2$ à H_k .

Pour une oscillation du champ d'angle compris entre α et $\alpha + \pi$, J effectuera donc deux sauts irréversibles, comme lors d'une rotation de 2π en champ tournant ; l'hystérésis oscillante est donc égale à l'hystérésis de rotation dès que ψ atteint α . La courbe en tirets de la figure 31 donne en fonction de ψ le rapport W/W_r des pertes en champ oscillant aux pertes de rotation. Sur la figure 32, on a porté la quantité $\frac{\pi}{\psi} \frac{W}{W_r}$ proportionnelle aux pertes par unité d'angle.

6.1.2 - Résultats

L'étude expérimentale a été faite à 20°C , sur une couche de cobalt oxydée superficiellement ; l'oxyde étant paramagnétique, il ne modifie pas les propriétés de la couche ferromagnétique. La courbe $W_r(H)$ de l'échantillon utilisé est celle de la figure 8 b. L'hystérésis oscillante a été mesurée pour $H = 15 \text{ Oe}$, valeur qui correspond à un point voisin du maximum de cette courbe. On donne sur la figure 33 la courbe de couple correspondant à une oscillation de 2π rd. Les résultats sont portés sur les figures 31 et 32 et sont comparés aux prévisions du modèle de Stoner et Wohlfarth. Le comportement de la couche est approximativement celui d'une couche monodomaine ; l'aimantation tourne d'abord réversiblement jusqu'à des valeurs de ψ supérieures à $\pi/2$; on peut ensuite définir un angle critique moyen inférieur à $3\pi/4$.

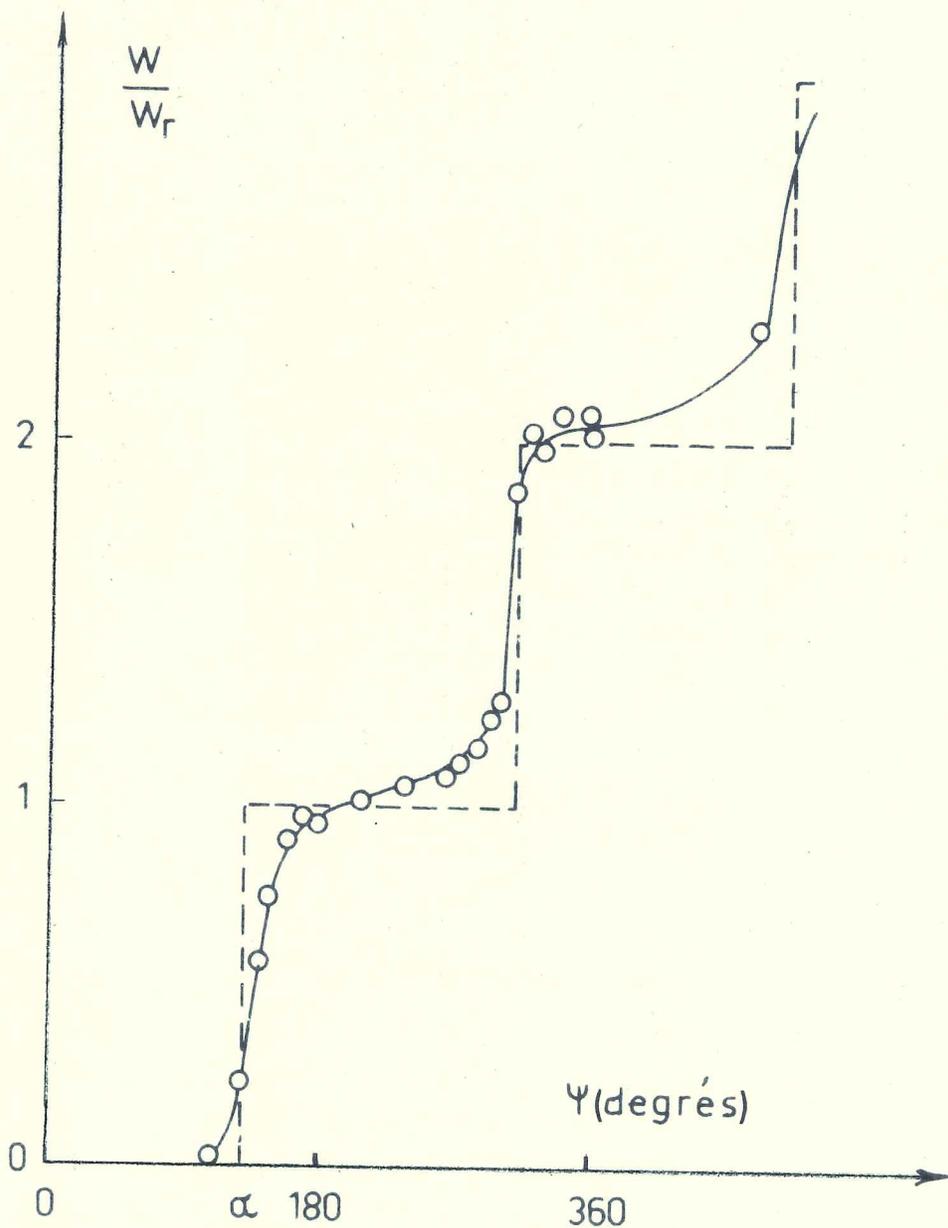
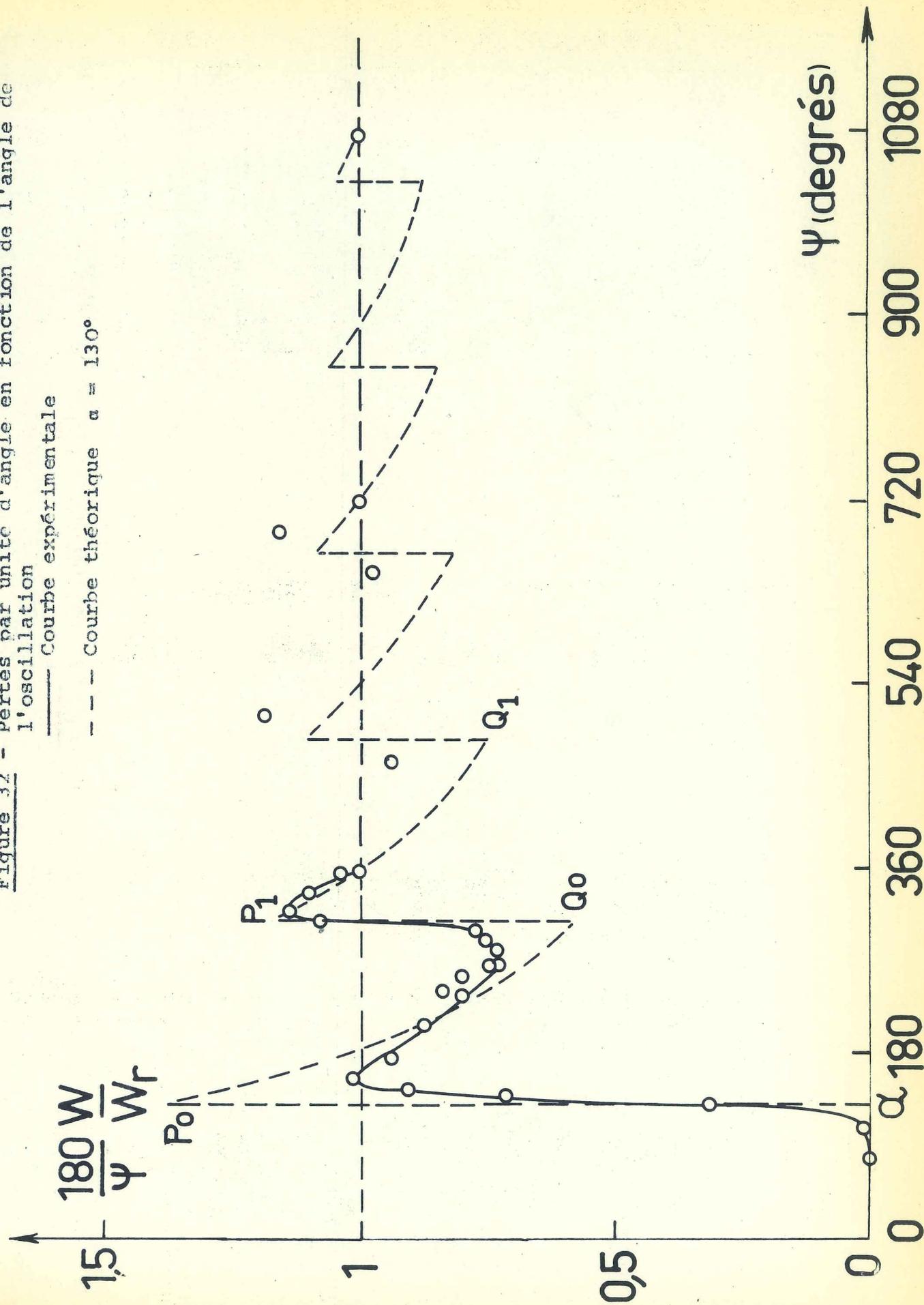


Figure 31 - Hystérésis oscillante d'une couche ferromagnétique à anisotropie uniaxiale. W/W_r en fonction de l'angle de l'oscillation.

- Courbe expérimentale. $H = 15$ Oe .
- Courbe théorique calculée par le modèle de la rotation cohérente avec $\alpha = 130^\circ$.

Figure 32 - Pertes par unité d'angle en fonction de l'angle de l'oscillation
 l'oscillation
 --- Courbe expérimentale
 - - - Courbe théorique $\alpha = 130^\circ$



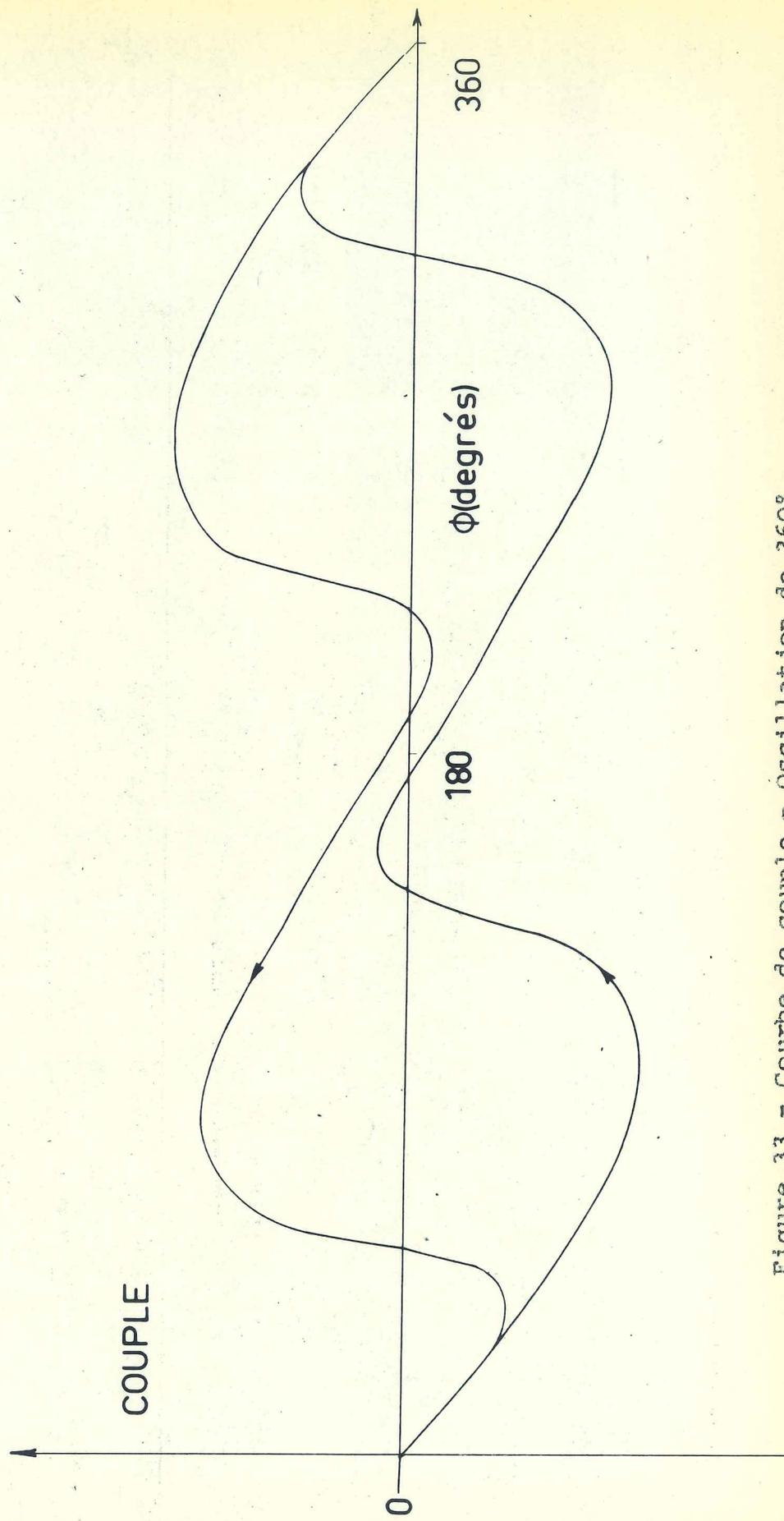


Figure 33 - Courbe de couple - Oscillation de 360°

Cependant la rotation irréversible de J n'a pas lieu pour une valeur de θ aussi bien définie que dans le modèle. On remarque que l'hystérésis oscillante devient égale à l'hystérésis de rotation pour une valeur de ψ voisine de π .

Les écarts entre les résultats théoriques et expérimentaux sont dus à la grossièreté du modèle. La rotation de l'aimantation n'est en fait pas cohérente. En particulier des parois de domaines sont créées et détruites lors de la rotation de H . De plus, il y a une certaine dispersion d'une part de la direction des axes d'anisotropie, d'autre part de la valeur de cette anisotropie entre les différentes régions de la couche.

6.2 - COUCHE AVEC COUPLAGE FERRO-ANTIFERROMAGNETIQUE : RESULTATS EXPERIMENTAUX

Dans ce cas, nous étudierons l'hystérésis oscillante essentiellement en champ fort, lorsque l'aimantation ferromagnétique est saturée et que les pertes doivent être attribuées au composant antiferromagnétique.

6.2.1 - Théorie

Il est commode d'utiliser le modèle précisé dans les chapitres II et IV. Nous considérons donc la couche antiferromagnétique comme un ensemble de grains monodomaines, à anisotropie uniaxiale d'axes distribués de façon isotrope dans le plan de la couche, n'interagissant pas entre eux, soumis au champ fictif de couplage $h = a J$. Les grains donnant lieu aux pertes par hystérésis sont ceux pour lesquels h est compris entre $h_k/2$ et h_k . Soit ϕ_e la position critique de h , donc de J , pour laquelle l'aimantation superficielle antiferromagnétique effectue des mouvements irréversibles. ϕ_e doit être compris entre $\pi/2$ et $3\pi/4$, de même que l'angle critique d'une couche ferromagnétique à

anisotropie uniaxiale. Admettons en première approximation que ϕ_e est le même pour tous les grains. Dans ce cas, pour une distribution isotrope des directions faciles, L. Néel (22) a montré que le rapport des pertes pour une oscillation d'amplitude ψ aux pertes de rotation est :

$$\frac{W(\psi)}{W_r} = 0 \quad \text{pour } 0 < \psi < 2\phi_e - \pi$$

$$\frac{W(\psi)}{W_r} = \frac{\psi - (2\phi_e - \pi)}{\pi} \quad \text{pour } \psi > 2\phi_e - \pi$$

Les "pertes oscillantes" deviennent égales aux pertes de rotation pour $\psi = 2\phi_e$, valeur comprise entre π et $3\pi/2$.

6.2.2. Variation avec l'amplitude ψ de l'oscillation

L'hystérésis oscillante a été mesurée en prenant comme direction initiale du champ celle du champ appliqué pendant le refroidissement, donc de l'anisotropie unidirectionnelle. Les courbes de couple correspondant à des oscillations de π et 2π rd⁻¹ sont données sur la figure 34, pour les deux premières oscillations suivant le refroidissement. Les pertes par unité d'angle sont données sur la figure 35a, pour les deux premières oscillations, en fonction de ψ . L'hystérésis mesurée lors de la première oscillation est plus grande que celle relative à la deuxième.

Sur la figure 35 b, on a tenté d'identifier pour la 2^{ième} oscillation la courbe expérimentale à une courbe théorique déduite du modèle du paragraphe précédent. La valeur de ϕ_e la plus satisfaisante est alors d'environ 140° . Malgré l'imprécision de la mesure de ϕ_e et les nombreuses approximations du modèle, il est étonnant que la valeur trouvée soit de l'ordre de la valeur maximum permise de 135° .

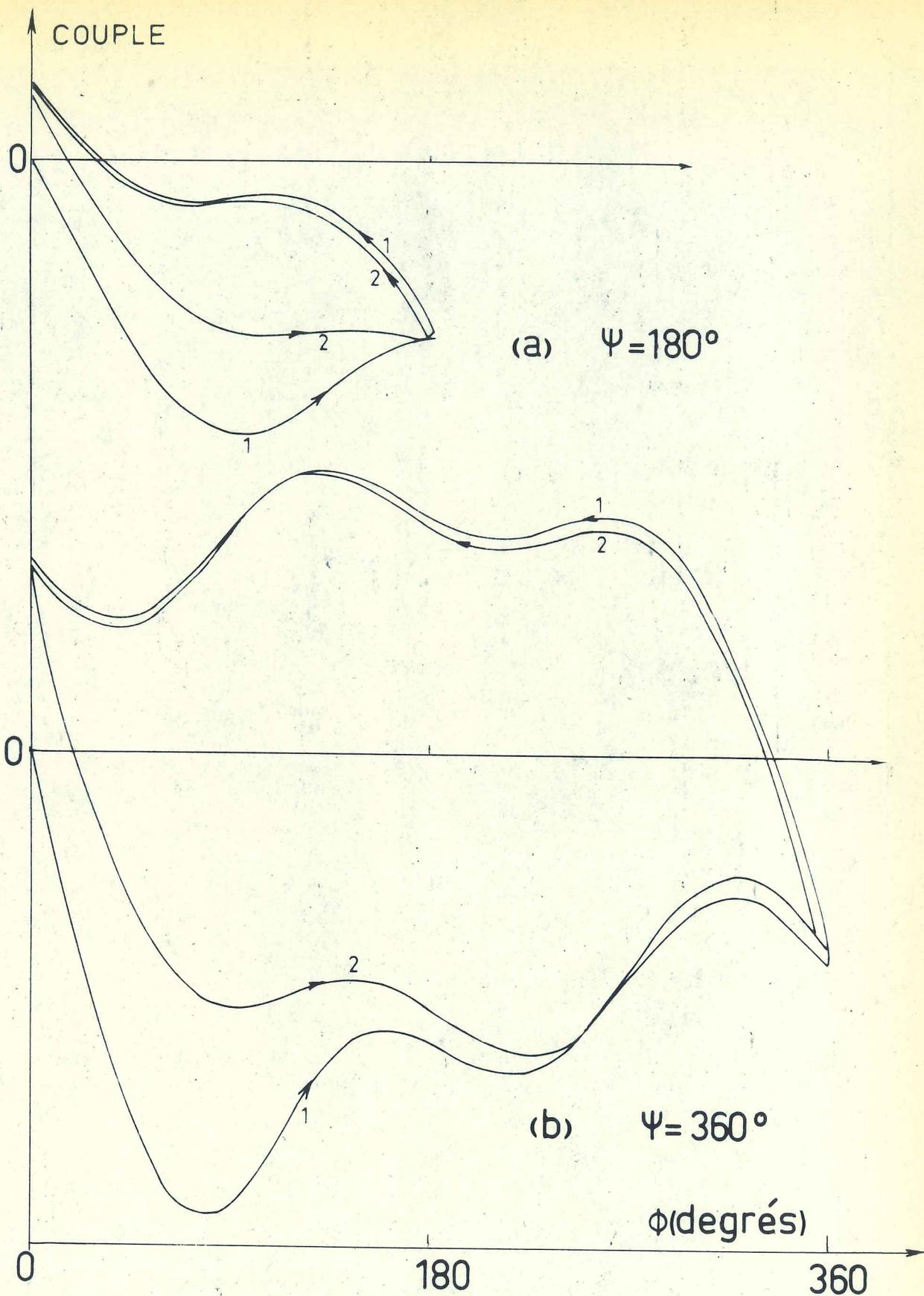


Figure 34 : Couche avec couplage ferro-antiferromagnétique
 Courbe de couple pour les 2 premières oscillations du champ
 $H = 720$ Oe a. Oscillation de 180° b. Oscillation de 360°

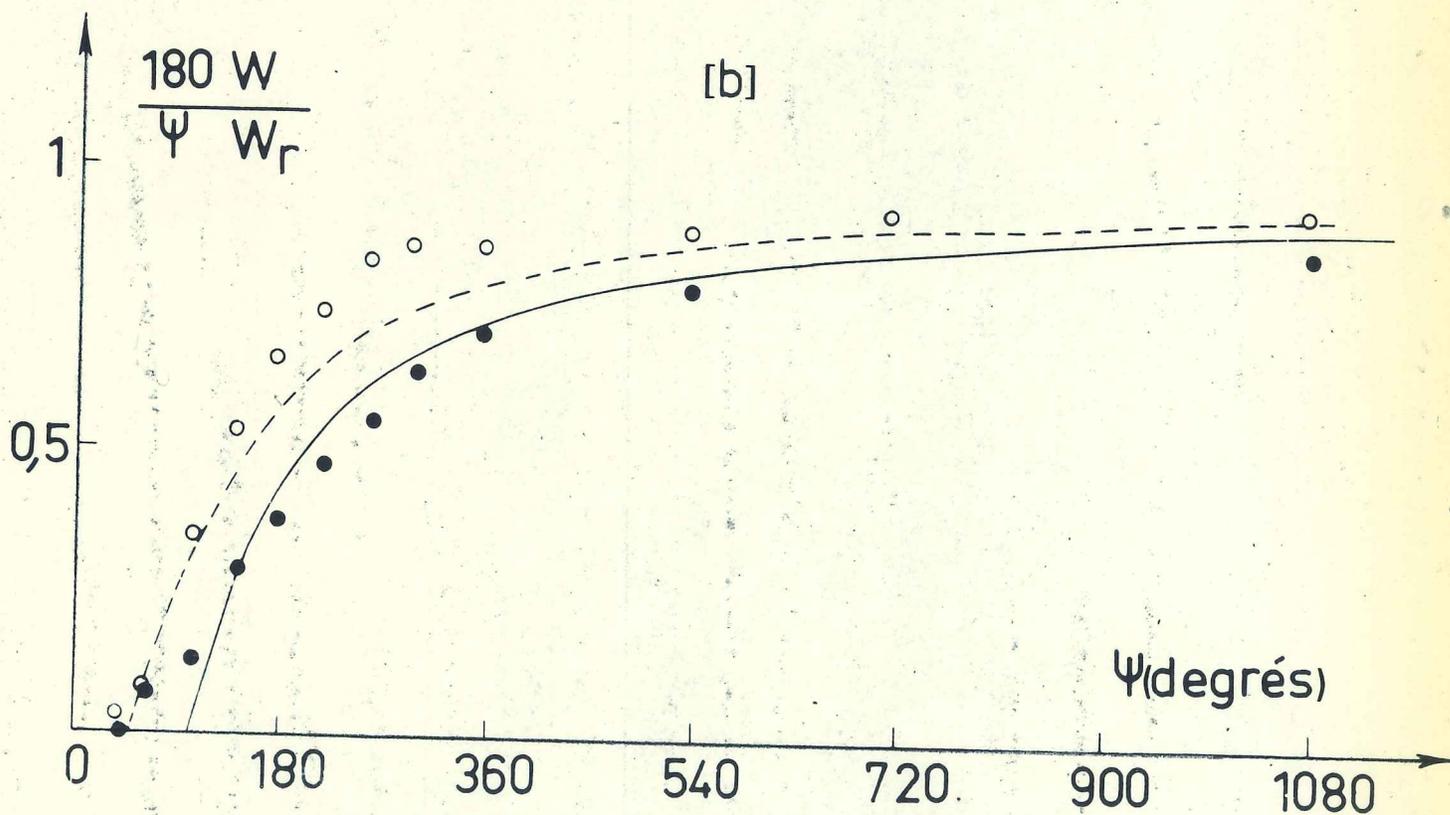
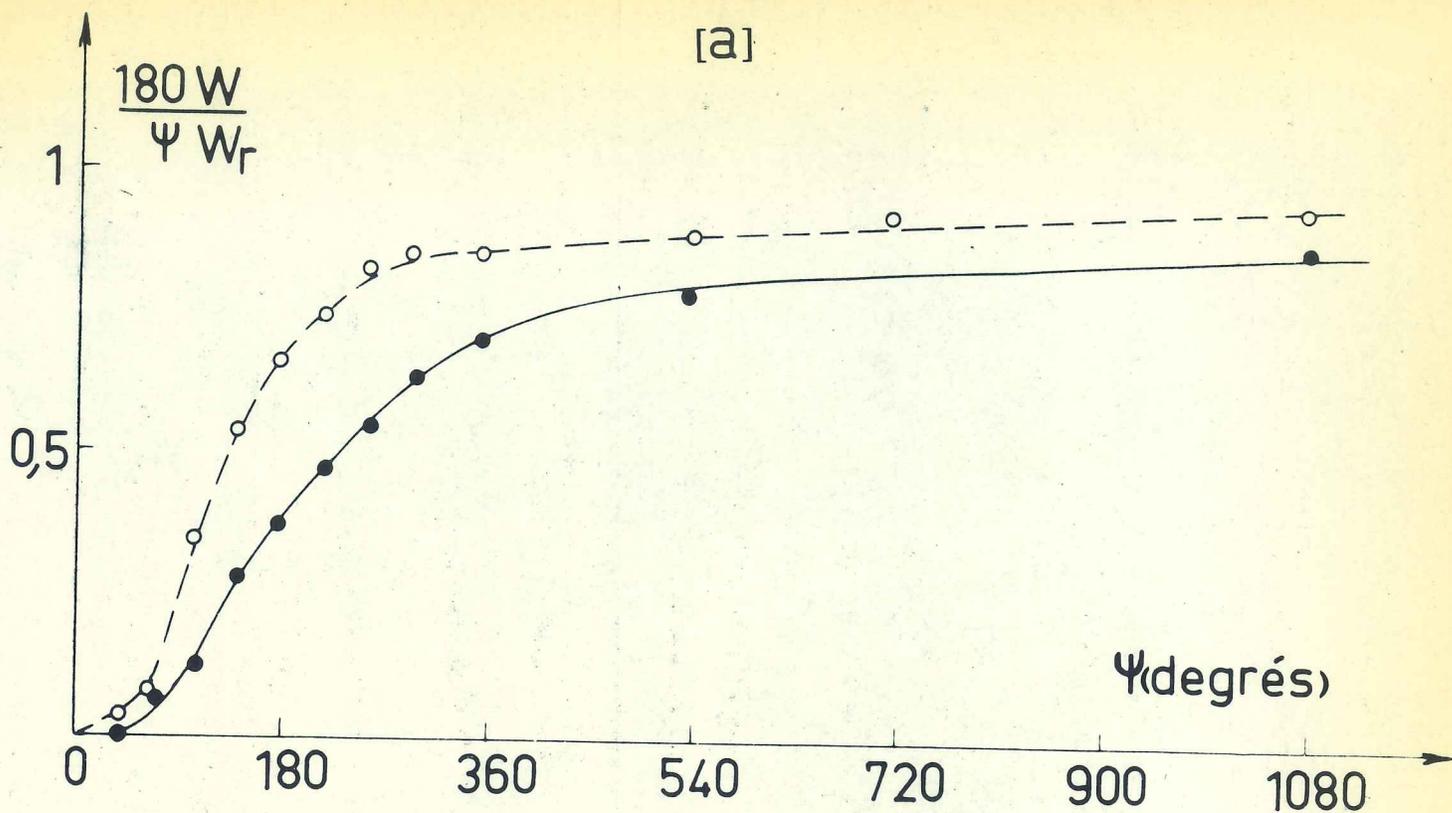


Figure 35 - Pertes par unité d'angle en fonction de l'amplitude de l'oscillation. a. Courbe expérimentale. --- o Première oscillation. — ● Deuxième oscillation. b. Courbes théoriques calculées avec $\phi_e = 140^\circ$. --- Première oscillation. — Deuxième oscillation. Points expérimentaux: o Première oscillation. ● Deuxième oscillation.

6.2.3 - Variation avec le champ appliqué

On a représenté sur la figure 36 les pertes par hystérésis oscillante en fonction de H pour les deux premières oscillations d'angle π et 2π rd. L'allure générale est la même que pour les pertes de rotation. On remarque que la saturation des pertes est obtenue en champ plus faible pour des oscillations de 2π que pour les oscillations de π rd. Ceci peut provenir du processus de basculement de l'aimantation ferromagnétique.

6.2.4 - Variation avec l'ordre de l'oscillation

La figure 37 donne la variation des pertes par hystérésis oscillante pour des oscillations de π rd en fonction de l'ordre de l'oscillation. La loi en $n^{-1/2}$ établie pour la contraction du cycle d'hystérésis semble être encore valable pour l'hystérésis oscillante. On s'attend en effet à ce qu'un champ oscillant d'angle π ait des effets analogues à un champ alternatif, si l'on admet que dans ce dernier cas l'aimantation ferromagnétique bascule par rotation toujours dans le même demi-plan de la couche.

On donne sur le tableau XIII les valeurs de ϕ_e déduites de la mesure de W (π) pour les premières oscillations, pour deux échantillons. On note que ces valeurs sont toutes supérieures à $3\pi/4$.

Tableau XIII : Valeur de ϕ_e en degrés

Oscillation	II	III	IV	V
Ech. 230 b	151	154	155	
Ech. 228 f	147	148	148,5	149

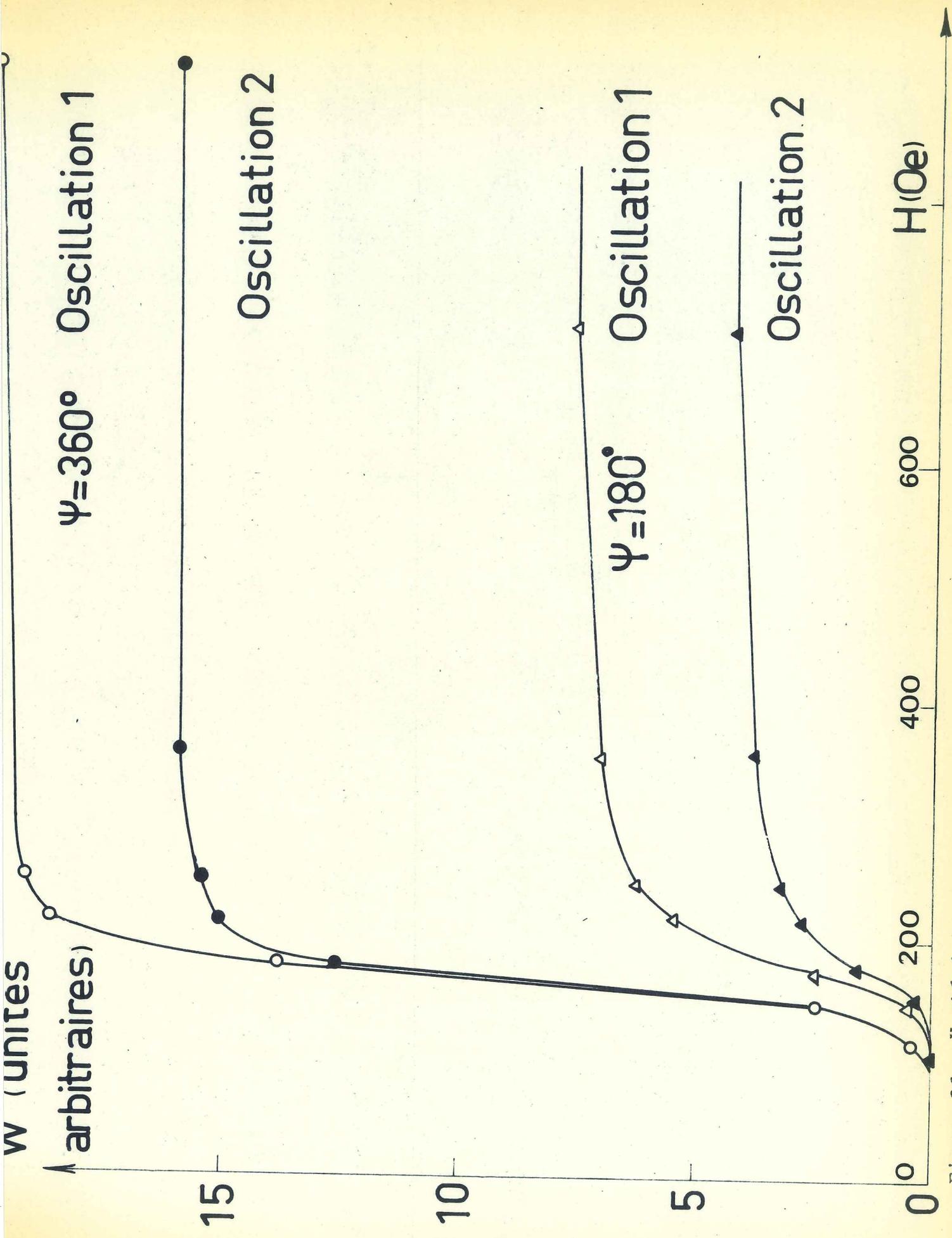


Figure 36 : Hystérésis oscillante en fonction du champ pour des oscillations de 180° et 360°

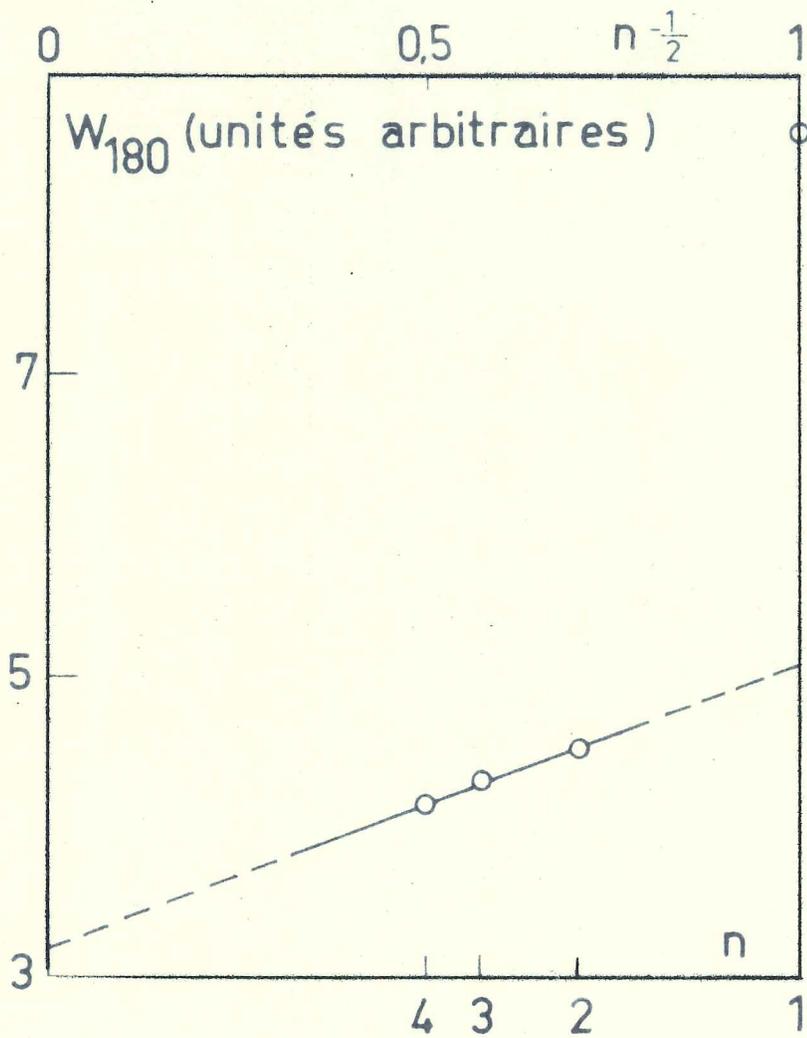


Figure 37 - Variation avec l'ordre de l'oscillation .
Oscillations d'angle π .

L'écart entre les deux premières oscillations semble être le même phénomène que la contraction entre le 1^{ier} et le 2^{ième} cycle. Cependant, dans le cas d'un champ oscillant, on peut justifier ce résultat en considérant des grains monodomains sans interaction et en tenant compte seulement de l'influence du mode de refroidissement sur l'état initial. On montre alors (Annexe III) que pour la 1^{ière} oscillation, on doit avoir :

$$\frac{W(\psi)}{W_r} = 0 \quad \text{pour } \psi < \phi_e - \frac{\pi}{2}$$

$$\frac{W(\psi)}{W_r} = \frac{\psi - \frac{1}{2}(\phi_e - \pi)}{2\pi} \quad \text{pour } \phi_e - \frac{\pi}{2} < \psi < 2\phi_e - \pi$$

$$\frac{W(\psi)}{W_r} = \frac{\psi - \frac{3}{4}(2\phi_e - \pi)}{\pi} \quad \text{pour } \psi > 2\phi_e - \pi$$

Sur la figure 35 b, on a représenté la courbe correspondante calculée avec la valeur de ϕ_e déduite des mesures de la 2^{ième} oscillation. Les résultats expérimentaux sont partiellement expliqués par ce mécanisme. Mais il est probable que l'effet des interactions entre grains s'ajoute pour augmenter l'écart.

En champ alternatif, on peut aussi invoquer le mécanisme précédent, sauf dans le cas où le champ fictif de couplage serait lui-même alternatif, ce qui paraît peu probable.

6.2.5 - Discussion

Nous nous proposons de voir comment quelques facteurs dont nous n'avons pas tenu compte dans le modèle peuvent modifier les résultats, en particulier pour les valeurs de l'angle critique ϕ_e .

a. Dispersion des valeurs de l'angle critique

ϕ_e dépend du rapport h/h_k , c'est-à-dire du rapport de la constante de couplage A à l'anisotropie antiferromagnétique, et peut donc varier d'un grain à l'autre entre $\pi/2$ et $3\pi/4$, puisque la constante A peut être très grande ou très petite suivant les conditions de l'interface.

On peut interpréter l'allure des courbes expérimentales pour les petites valeurs de ψ par l'existence de régions où l'angle critique est relativement faible. Cependant, la plus petite valeur de ϕ_e est nettement supérieure à $\pi/2$.

Pour les grandes valeurs de ψ , on s'attendrait à trouver des courbes expérimentales correspondant approximativement à une valeur intermédiaire de ϕ_e , donc inférieure à $3\pi/4$, ce qui n'est pas le cas.

b. Anisotropie de la distribution des directions faciles

Il n'est pas impossible que, par suite du traitement thermique, la distribution des directions faciles des grains antiferromagnétiques présente un maximum dans la direction facile de la couche ferromagnétique. Dans le cas d'une valeur définie de l'angle critique, une telle anisotropie devrait entraîner, par rapport au cas isotrope, une diminution du rapport $W(\psi)/W_r$ pour les valeurs de ψ inférieures à ϕ_e et une augmentation dans le cas contraire. La valeur de ϕ_e déduite des courbes expérimentales pourrait alors être surestimée.

c. Interactions entre grains antiferromagnétiques

Nous avons utilisé un modèle dans lequel nous ne tenons pas compte des interactions entre grains antiferromagnétiques. Les résultats du chapitre précédent montrent que ces interactions ne sont pas toujours négligeables. Elles peuvent en réalité modifier les processus de rotation des aimantations superficielles antiferromagnétiques et en particulier augmenter

ou diminuer l'angle critique ϕ_e .

Nous avons supposé jusqu'à présent que dans chaque grain anti-ferromagnétique, les moments magnétiques atomiques restent toujours parallèles ou antiparallèles entre eux, bien que le grain soit soumis non pas à un champ extérieur agissant sur tout son volume, mais à un couple s'exerçant sur les moments de l'interface seulement. L. Néel a étudié en détail le comportement de couches minces ferro ou antiferromagnétique dans lesquelles les moments superficiels sont soumis à un couple extérieur, et a examiné le cas des couches avec couplage ferro-antiferromagnétique (22). Nous rappellerons rapidement les résultats, en fonction desquels nous discuterons les propriétés de nos échantillons.

6.3. THEORIE DE L. NEEL DES COUCHES A AIMANTATION DEFORMEE

6.3.1. Théorie

a. Couche antiferromagnétique à aimantation déformable . Couche ferromagnétique à aimantation rigide

Considérons une couche antiferromagnétique monocristalline à anisotropie uniaxiale, dans laquelle les moments magnétiques sont parallèles entre eux et au plan de la couche en l'absence de tout facteur extérieur, le sens des moments changeant d'un plan atomique au suivant. Lorsqu'un couple s'exerçant sur les moments des atomes voisins d'une surface a tendance à les écarter de leur direction privilégiée, les moments ne restent parallèles d'un plan atomique à l'autre que si les forces d'échange sont beaucoup plus grandes que les forces d'anisotropie ; la couche reste alors "rigide" du point de vue magnétique. Dans les autres cas, la direction des moments change d'un plan atomique au suivant, la

couche se "déforme" du point de vue magnétique et sa structure est l'analogue de celle d'une paroi de domaine.

Soit une couche composée de n plans atomiques, $\theta_p/2$ l'angle du moment de la $p^{\text{ième}}$ couche atomique avec la direction facile, Γ_n le couple extérieur exercé sur le moment m_n de la couche extrême, aucun couple n'étant exercé sur m_1 . L. Néel a montré que l'angle θ_n satisfait aux relations :

$$\Gamma_n = \sqrt{2 K I} \sqrt{\cos \theta_1 - \cos \theta_n} \int_{\theta_1}^{\theta_n} \frac{d\theta}{\sqrt{\cos \theta_1 - \cos \theta}} = \rho = n \sqrt{\frac{8 I}{I}}$$

$2 K$ est la constante d'anisotropie uniaxiale par unité de surface d'un plan atomique, I la constante d'échange par unité de surface entre deux plans atomiques voisins. Les courbes $\Gamma_n(\theta_n)$ calculées pour diverses valeurs du paramètre ρ sont représentées sur la figure 38 a ; elles sont du type U, V, ou W selon que ρ est inférieur à 2,22, compris entre 2,22 et 4,44 ou supérieur à 4,44.

Soit maintenant une couche ferromagnétique en contact avec cette couche antiferromagnétique. Supposons que l'aimantation J reste rigide. Elle est uniforme, parallèle au plan de la couche et pratiquement parallèle au champ appliqué si ce dernier est assez fort. Le couplage entre les deux couches ne dépend que de la constante A . Le couple Γ_e exercé par la couche ferromagnétique sur le moment extrême m_n de la couche antiferromagnétique est :

$$\Gamma_e = - A \sin \left(\frac{\theta_n}{2} - \phi \right)$$

ϕ est l'angle de J avec la direction facile antiferromagnétique. A l'équilibre, les couples Γ_e et Γ_n sont égaux et la valeur de θ_n correspondant à l'équilibre stable de m_n est donnée par l'un des points d'intersection des courbes Γ_e et Γ_n (Figure 38 b).

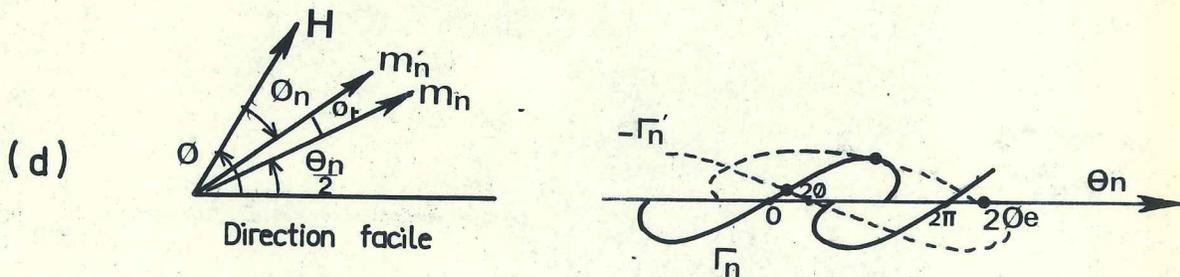
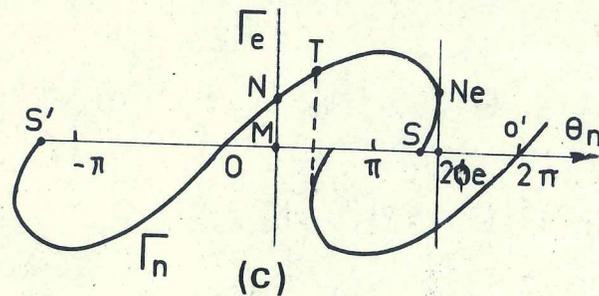
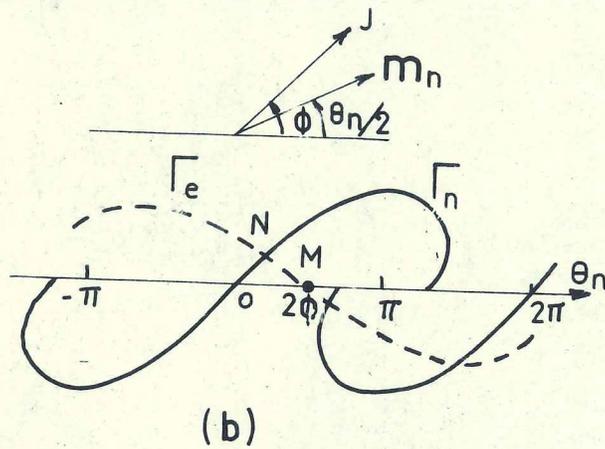
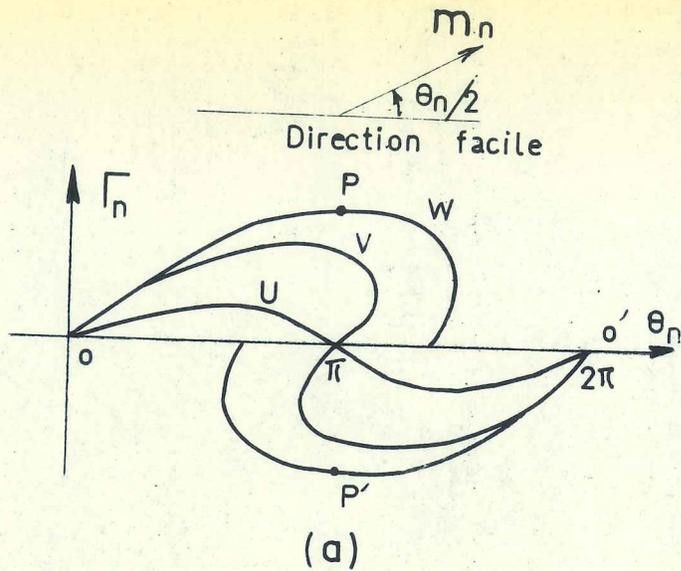


Figure 38 : Modèle de L. Néel (22) . (a). La courbe Γ_n est du type U pour $\rho < 2,221$, du type V pour $2,221 < \rho < 4,442$, du type W pour $\rho > 4,442$.

(b) et (c). Couche antiferromagnétique déformable, couche ferromagnétique rigide. La figure (c) correspond à $A \gg \sqrt{2} K T$

(d) Couches antiferromagnétique et ferromagnétique déformables. Les courbes correspondent au cas $A = 0$

Si Γ_n est du type u, la couche antiferromagnétique est pratiquement rigide et on est ramené au couplage entre des couches monodomaines étudié au chapitre I. Lors de la rotation de J, les moments antiferromagnétiques, ou bien restent pratiquement bloqués dans leur direction privilégiée, ou tournent en effectuant des mouvements irréversibles, ou encore tournent de manière toujours réversible. Dans le deuxième cas, l'angle critique de basculement ϕ_e est compris entre $\pi/2$ et $3\pi/4$.

Si Γ_n est du type V ou W, on montre que tant que A est inférieur au maximum $\sqrt{2 K I}$ de Γ_n , m_n oscille réversiblement autour de la direction facile, le système peut présenter une anisotropie unidirectionnelle. Si A est plus grand que $\sqrt{2 K I}$, m_n suit J en effectuant toujours des mouvements irréversibles, même lorsque la constante de couplage est très grande. L'angle critique ϕ_e correspond au cas où les courbes Γ_e et Γ_n sont tangentes.

Lorsque A est beaucoup plus grand que $\sqrt{2 K I}$, la portion de courbe Γ_e voisine de Γ_n est une droite parallèle à l'axe des ordonnées et l'angle critique ϕ_e correspond au point à tangente verticale de Γ_n d'abscisse θ_e . Il est toujours compris entre $\pi/2$ et π suivant les valeurs de ρ (Figure 38 c). Pour les valeurs intermédiaires de A, ϕ_e est plus grand que $\theta_e/2$ et peut donc être supérieur à π .

On remarque que par suite de la "déformation" de la couche, les moments antiferromagnétiques ne suivent jamais J réversiblement. Par contre, l'angle critique ϕ_e peut être plus grand que dans le cas d'une couche rigide, la "déformation" de la couche se poursuivant de façon réversible pour des angles assez grands entre J et la direction facile antiferromagnétique.

b. Couches ferromagnétique et antiferromagnétique à aimantation déformable

Considérons une couche ferromagnétique, dont l'anisotropie uniaxiale est négligeable, soumise à un champ extérieur

parallèle au plan de la couche. Supposons qu'un couple Γ'_n s'exerçant sur les moments magnétiques m'_n des atomes voisins d'une surface a tendance à les rendre parallèles à une direction donnée du plan de la couche.

Sous l'effet du couple d'interface, l'aimantation de la couche ferromagnétique ne reste pas toujours uniforme, la direction des moments s'écartant d'autant plus de la direction du champ qu'on se rapproche du $n^{\text{ième}}$ plan atomique constituant la surface.

La structure magnétique de la couche est alors déterminée par le rapport entre les forces d'échange et les forces de couplage avec le champ.

L. Néel a montré que l'angle ϕ_n entre les moments m'_n du plan extrême soumis au couple Γ'_n et le champ H est relié à Γ'_n par :

$$\Gamma'_n = \sqrt{\frac{m' H I'}{2}} \sqrt{\cos \phi_1 - \cos \phi_n}$$

$$\text{avec } \rho' = \int_{\phi_1}^{\phi_n} \frac{d\phi}{\cos \phi_1 - \cos \phi_n} = n \sqrt{\frac{2 m' H}{I'}}$$

m' est le moment magnétique par unité de surface d'un plan atomique et I' l'interaction d'échange par unité de surface entre deux plans voisins dans la couche ferromagnétique.

Les courbes donnant Γ'_n en fonction de ϕ_n sont les mêmes que celles donnant Γ_n en fonction de $\theta_n/2$ dans le cas d'une couche antiferromagnétique. On remarque que le champ extérieur joue le même rôle que l'anisotropie antiferromagnétique.

La couche ferromagnétique pourra donc être du type rigide ou déformable selon la valeur du paramètre ρ' .

Supposons maintenant que cette couche ferromagnétique soit en contact avec une couche antiferromagnétique. Si le couplage à l'interface est très fort, les moments m_n et m'_n à l'interface dans le ferromagnétique et dans l'antiferromagnétique sont

parallèles et leur position d'équilibre correspond à l'égalité entre Γ_n et $(-\Gamma'_n)$. De plus les angles ϕ_n et θ_n sont reliés par :

$$\phi_n = \frac{\theta_n}{2} - \phi \quad (\text{Figure 38 d})$$

On montre que l'allure des phénomènes dépend des valeurs de ρ , ρ' et du rapport :

$$r = \sqrt{\frac{m' H I'}{4 K I}}$$

Lorsque r est inférieur à 1, les moments antiferromagnétiques restent au voisinage de la direction facile. Si r est supérieur à 1, ils suivent les moments ferromagnétiques en effectuant périodiquement des sauts irréversibles.

La figure 38 d correspond au cas où les deux courbes sont du type W. On remarque que l'angle critique ϕ_e entre H et la direction facile antiferromagnétique peut prendre des valeurs comprises entre $\pi/2$ et 2π , puisque la périodicité de la courbe Γ'_n est le double de celle de la courbe Γ_n .

Si le couplage à l'interface n'est pas très fort, m_n et m'_n ne sont pas parallèles et font un angle ϕ_t , si bien que :

$$\phi_n = \frac{\theta_n}{2} - \phi + \phi_t$$

L'angle critique ϕ_e peut alors être supérieur à 2π .

Examinons le cas où le rapport r est beaucoup plus grand que 1, par exemple parce que le champ extérieur est très fort. Si le couplage est très fort, on peut assimiler la courbe Γ'_n à une portion de droite verticale. Les moments m'_n et m_n restent alignés avec le champ extérieur. Les résultats sont analogues à ceux qu'on obtient avec une couche ferromagnétique rigide, lorsque A est très grand. Si le couplage n'est pas très fort, on est exactement ramené au cas étudié dans 6.3.1.

6.3.2. Valeurs des paramètres - Comparaison avec l'expérience

Les paramètres ρ , ρ' et r dépendent essentiellement de l'orientation cristallographique de l'interface et varient d'une

région à l'autre de la couche.

Nous les évaluerons dans le cas particulier où le plan d'interface est un plan (001) dans le cobalt supposé hexagonal et (111) dans l'oxyde. Cette situation doit être assez fréquemment réalisée dans nos échantillons (4.2.2).

Pour CoO, on obtient à partir des valeurs de la température de Néel, de la température de Curie et de la constante de Curie, un coefficient de champ moléculaire de 2200 uem, qui correspond à une énergie d'échange de $8,6 \cdot 10^8$ erg/cm³ ou de 3,2 erg/cm² entre deux plans (111) voisins.

Dans le cas d'une couche antiferromagnétique de 20 Å d'épaisseur, on trouve, avec K exprimé en erg/cm² :

$$= n \sqrt{\frac{8 K}{I}} \approx 6 \sqrt{2 K}$$

La couche est rigide si $2 K$ est inférieur à environ 0,1 erg/cm².

Pour le cobalt, l'énergie d'échange est de l'ordre de $7,5 \cdot 10^9$ erg/cm³, soit environ 150 erg/cm² entre deux plans (001). Elle est donc approximativement 50 fois plus grande que dans CoO.

Pour une couche de cobalt de 1000 Å d'épaisseur, on a :

$$\rho' = n' \sqrt{\frac{2 m' H}{I'}} \approx 0,24 \sqrt{H}$$

Dans les champs utilisés, l'aimantation ferromagnétique est évidemment déformable.

Pour le rapport r , on trouve :

$$r = \sqrt{\frac{m' H I'}{4 K I}} \approx 1,4 \cdot 10^{-2} \frac{H}{K}$$

$$\text{soit } r \approx \frac{0,31}{\sqrt{K}} \text{ pour } H = 500 \text{ Oe}$$

Ce rapport est supérieur à 1 si $2 K$ est inférieur à environ 0,2 erg/cm².

Dans nos échantillons, les phénomènes sont approximativement indépendants du champ dès qu'il est assez fort. Les moments

ferromagnétiques restent donc alignés avec le champ et tout se passe comme si l'aimantation ferromagnétique était rigide.

Le rapport r doit donc être généralement plus grand que 1. Il suffit d'ailleurs que r soit de l'ordre de 2 ou 3 pour que les moments ferromagnétiques soient pratiquement alignés avec le champ et ne donnent pas lieu à des pertes par hystérésis. Ces dernières proviennent donc du matériau antiferromagnétique seulement.

Par contre, certaines régions antiferromagnétiques doivent être du type "déformable". Elles contribuent ainsi à augmenter la valeur moyenne de l'angle critique ϕ_e . On peut ainsi comprendre que les valeurs expérimentales de ϕ_e puissent être supérieures à $3\pi/4$.

De plus, on peut ainsi justifier les valeurs expérimentales comprises entre 1 et 4 du rapport W_r/Wa_2 , données dans le chapitre V. En effet, l'hystérésis alternative Wa_2 , devant être voisine de l'hystérésis oscillante d'angle π , on s'attend à ce que :

$$\frac{Wa_2}{W_r} \sim \frac{W(\pi)}{W_r} = \frac{2\pi - 2\phi_e}{\pi}$$

Ce rapport est compris entre 0,5 et 1 si ϕ_e est compris entre $3\pi/4$ et $\pi/2$ et peut même être inférieur à 0,5 si ϕ_e est plus grand que $3\pi/4$.

6.3.3. Anisotropie antiferromagnétique

Aux températures supérieures au point de Néel, l'oxyde CoO a une structure cubique à faces centrées. Au-dessous du point de Néel, la maille est légèrement déformée, quadratique ou monoclinique, selon les auteurs (39). Les plans d'alignement ferromagnétique des spins sont des plans (111). On admet le plus souvent que les spins sont orientés suivant une direction du plan (1 $\bar{1}$ 0) faisant un angle de 11° (39 a) ou 27° (39 b) avec la direction [001].

La direction de facile aimantation s'interprète en considérant que l'énergie d'anisotropie magnétocristalline contient un

terme cubique auquel sont associées des directions faciles selon les arêtes du cube et un terme trigonal correspondant à un axe difficile selon $[111]$:

$$F_a = K (\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_3^2 \alpha_1^2) + T (\alpha_1 \alpha_2 + \alpha_2 \alpha_3 + \alpha_3 \alpha_1) \quad (40)$$

Les α_i sont les cosinus directeurs de la direction d'antiferromagnétisme par rapport aux axes cristallins. K et T sont positifs.

On admet pour K une valeur de l'ordre de 10^8 erg/cm³ et pour T de l'ordre de $3 \cdot 10^7$ erg/cm³ (40).

On déduit de l'expression précédente que toutes les directions du plan (111) sont équivalentes. L'anisotropie magnéto-cristalline dans le plan (111) serait donc nulle ou tout au moins très faible.

Or dans nos échantillons, les plans d'interface sont fréquemment des plans (111) et l'étude des couches Co-CoO indique que l'anisotropie antiferromagnétique dans ce plan doit être assez grande.

La petite taille des grains antiferromagnétiques permet de penser que les effets de surface doivent être prépondérants par rapport aux effets de volume et que l'anisotropie est d'origine superficielle.

Supposons par exemple que les grains de CoO soient cylindriques, l'interface avec le cobalt étant parallèle à la base du cylindre. L'existence d'une anisotropie de surface locale sur la surface latérale du cylindre entraîne pour tout le grain une anisotropie de forme. Cette anisotropie n'est nulle que lorsque la base du cylindre est circulaire. Si la base est elliptique, la direction facile sera déterminée par le petit ou le grand axe de l'ellipse selon le signe de l'anisotropie de surface (41). Si l'on admet qu'il n'y a pas d'orientation préférentielle de la forme des grains, les axes faciles des différents grains seront

distribués de façon uniforme dans le plan de la couche.

On peut alors s'attendre à des valeurs assez grandes de l'anisotropie, pouvant en particulier conduire à des paramètres ρ supérieurs à 2,22 et à la non rigidité de certaines régions antiferromagnétiques.

De plus, l'anisotropie étant dans ce cas une anisotropie de forme, K_{af} doit pouvoir varier entre des valeurs très faibles ou nulles pour des grains à base circulaire et des valeurs très grandes pour les grains les plus allongés. Ce type d'anisotropie doit donc contribuer à augmenter l'inhomogénéité du système, les paramètres K_{af} et A variant tous deux fortement d'une région à l'autre.

En conclusion, l'étude de l'hystérésis oscillante confirme qu'on puisse considérer la couche antiferromagnétique comme un ensemble de régions à anisotropie uniaxiale à axes distribués de façon pratiquement isotrope dans le plan de la couche. Cependant, elle indique que les angles critiques de basculement peuvent être supérieurs à $3\pi/4$, donc que certaines de ces régions, ayant une anisotropie relativement grande, se "déforment" du point de vue magnétique sous l'effet du couple d'interface. Ce mécanisme doit contribuer à augmenter les pertes par hystérésis des échantillons, puisque dans ces régions "déformables", les moments magnétiques ne peuvent plus suivre de façon réversible l'aimantation ferromagnétique.

CHAPITRE VII

VARIATION DES PROPRIETES DES COUCHES AVEC LA TEMPERATURE

On a étudié quelques propriétés des couches en fonction de la température au-dessous du point de Néel de l'oxyde et on se propose d'interpréter les résultats en fonction des modèles donnés précédemment.

7.1 - RESULTATS EXPERIMENTAUX

7.1.1. Cycle d'hystérésis

La figure 39 correspond au cycle d'hystérésis relevé entre -140°C et 20°C à l'hystérésiscope à la fréquence de 1000 Hz, donc au cycle limite stabilisé. On remarque que le décalage de cycle H_e décroît régulièrement quand la température augmente et s'annule à une température T_t inférieure au point de Néel. La demi-largeur du cycle H_c passe par un maximum au voisinage de T_t , sa valeur à 20°C étant peu différente de sa valeur à basse température. (42)

7.1.2. Courbe de couple

La figure 40 représente la variation des composantes de Fourier de la courbe de couple relevée à la balance de torsion entre -190°C et 20°C . Les mesures ont été faites sur des courbes obtenues après plusieurs rotations de 360° du champ et donc approximativement reproductibles d'un tour au suivant.

La constante d'anisotropie uniaxiale K_u varie peu avec la température, comme dans une couche non oxydée. On peut donc admettre qu'elle n'est pas modifiée par la présence de la couche antiferromagnétique.

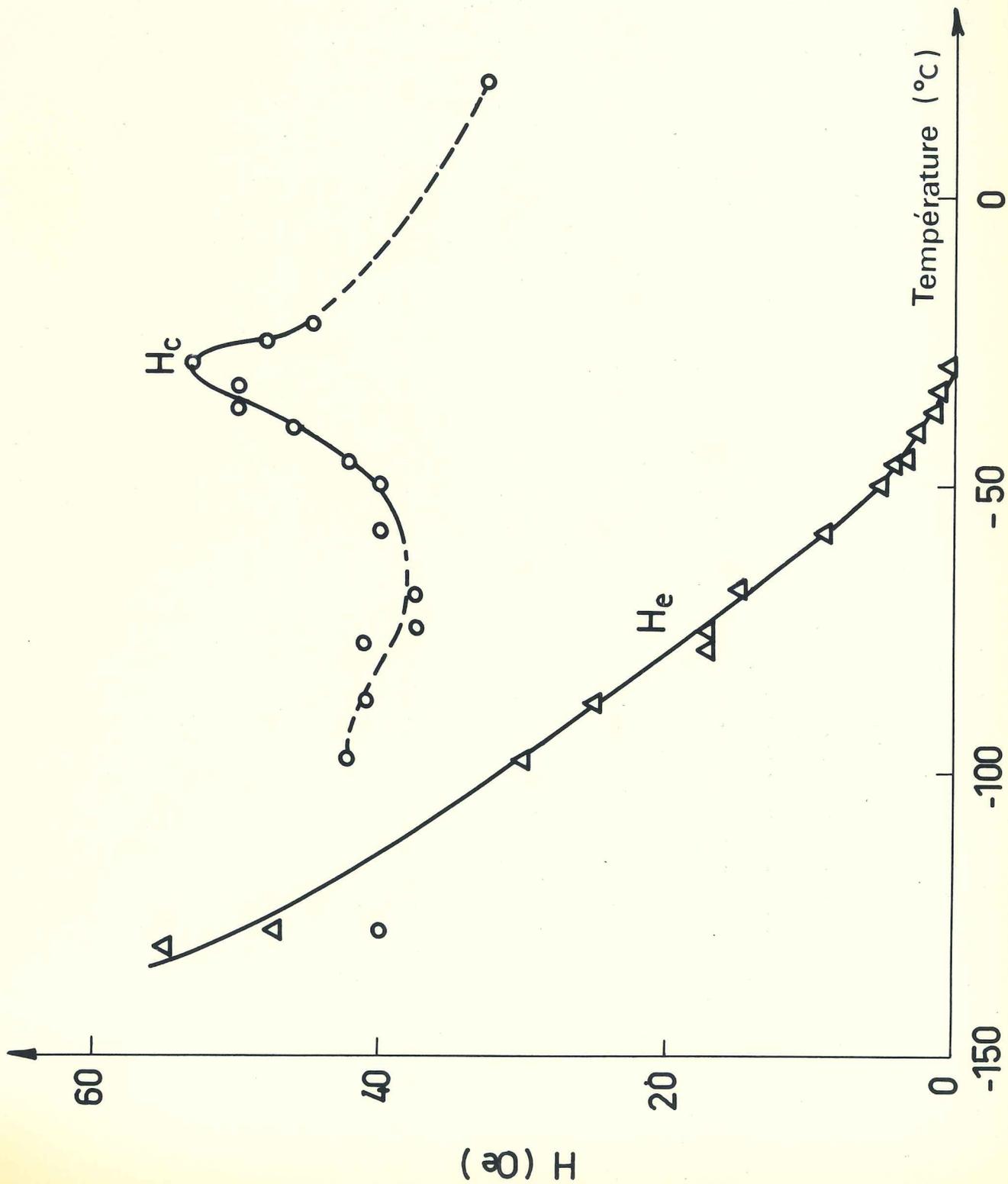
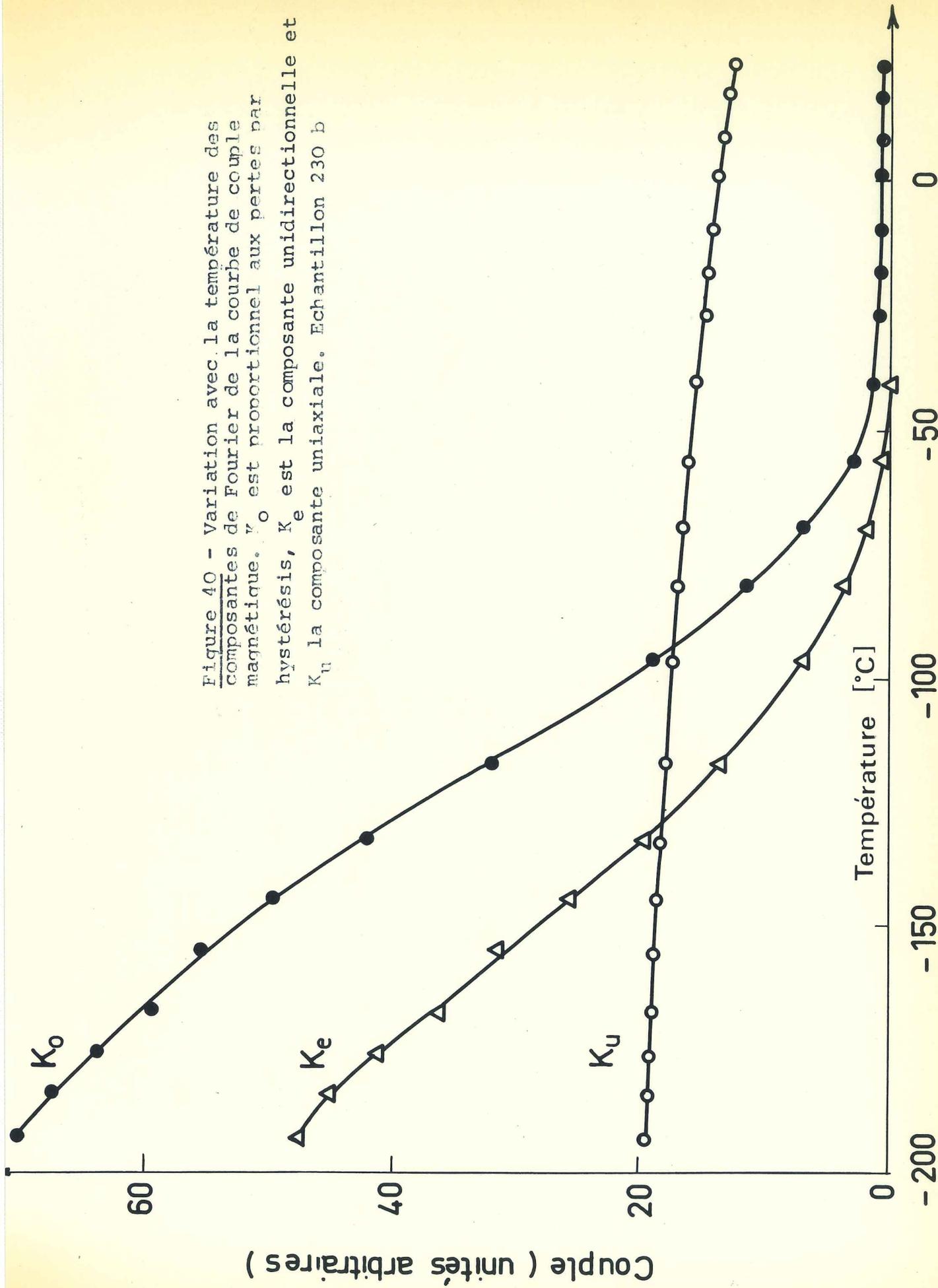


Figure 39 - Variation avec la température de la demi largeur H_c et du décalage H_e du cycle. Cycle d'hystérésis relevé à la fréquence de 1000 Hz. Echantillon 227 f

Figure 40 - Variation avec la température des composantes de Fourier de la courbe de couple magnétique. K_0 est proportionnel aux pertes par hystérésis, K_e est la composante unidirectionnelle et K_u la composante uniaxiale. Echantillon 230 b



La constante d'anisotropie unidirectionnelle K_e diminue lorsqu'on élève la température et s'annule en même temps que le décalage de cycle à la température T_t .

Les pertes par hystérésis de rotation décroissent aussi lorsque T augmente, sont faibles à la température T_t et disparaissent légèrement au-dessus de T_t .

Les déphasages δ_e et δ_u diminuent rapidement lorsqu'on augmente la température et s'annulent pratiquement vers la température de transition. Ceci confirme qu'ils proviennent bien du couplage avec la couche antiferromagnétique. (Figure 41)

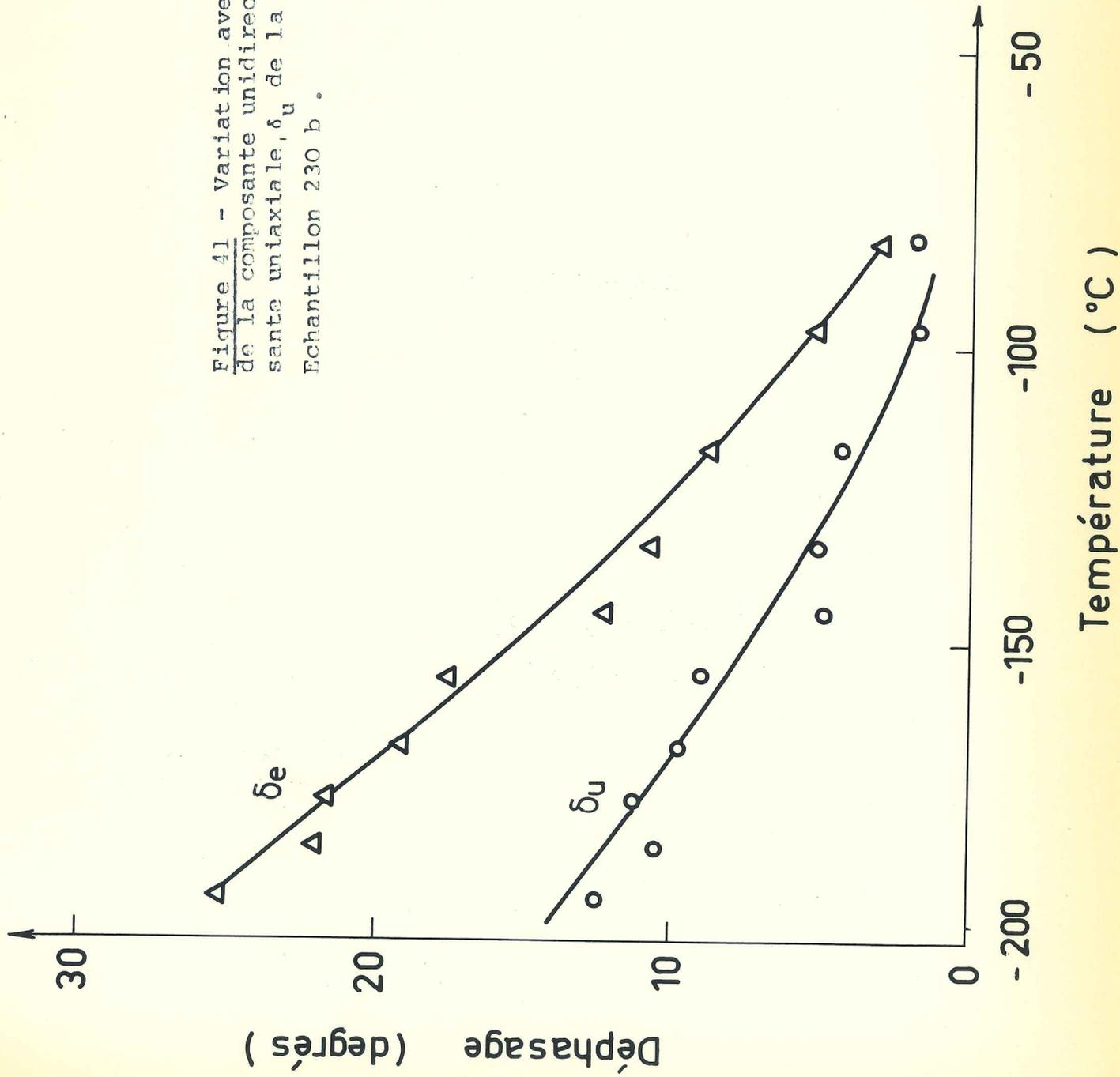
7.2. INTERPRETATION

L'allure des phénomènes s'interprète aisément en remarquant que l'anisotropie antiferromagnétique K_{af} et la constante de couplage A doivent diminuer avec la température pour s'annuler au point de Néel. Mais l'anisotropie doit varier plus rapidement que la constante de couplage.

En première approximation, si l'on néglige la variation de la constante d'échange a (Voir 1 - 4), A varie proportionnellement à l'aimantation J du cobalt et à l'aimantation de sous-réseau de CoO . Entre -190°C et 20°C , la variation de J est très faible, et celle du champ fictif aJ aussi, tandis que l'aimantation de sous-réseau de CoO diminue rapidement. A varie donc approximativement comme cette dernière.

L'anisotropie antiferromagnétique varie certainement plus rapidement que l'aimantation de sous-réseau. La contribution du couplage dipolaire, par exemple, doit donner un terme qui varie comme le carré de cette aimantation. Il en résulte que le rapport

Figure 41 - Variation avec la température des déphasages de la composante unidirectionnelle, δ_e et de la composante uniaxiale, δ_u de la courbe de couple. $H = 360$ Oe
Echantillon 230 b.



K_{af}/A doit diminuer avec la température.

7.2.1 - Cas des régions antiferromagnétiques rigides

Le comportement d'une telle région en présence du champ fictif $a J$ dépend des valeurs relatives de l'énergie d'anisotropie et de l'énergie de couplage antiferromagnétique, ou du rapport $e' K_{af}/A$. On a représenté sur la figure 42 a une variation possible de ce rapport en fonction de la température. Lorsque le point représentatif de l'état du système se trouve dans la région I, on observe de l'anisotropie unidirectionnelle. Les pertes par hystérésis apparaissent dans la région II, tandis que dans la région III les moments antiferromagnétiques n'effectuent que des mouvements réversibles en champ tournant.

Un grain dont l'état à la température la plus basse T_0 est représenté par le point M_1 donnera lieu lors du réchauffement successivement à de l'anisotropie unidirectionnelle jusqu'à une température T_t , puis à des pertes par hystérésis aux températures comprises entre T_t et T'_t . Un grain dont l'état à T_0 est représenté par le point M_2 donnera seulement de l'hystérésis de rotation aux températures inférieures à la température T'_t définie par la courbe 2. Les propriétés macroscopiques dépendront de la distribution du paramètre $e' K_{af}/A$ dans les différentes régions et aux différentes températures.

On justifie ainsi l'existence de températures de transition inférieures au point de Néel. De plus, on s'attend à ce que la température de transition T_t soit d'autant plus élevée que l'épaisseur e' moyenne de la couche antiferromagnétique est plus grande, la constante de couplage A et la constante d'anisotropie par unité de volume K_{af} étant toutes deux indépendantes de e' , même lorsque l'anisotropie est d'origine superficielle. Les résultats expérimentaux donnés dans le tableau XIV sont approximativement compatibles avec cette remarque, une couche oxydée à 150°C

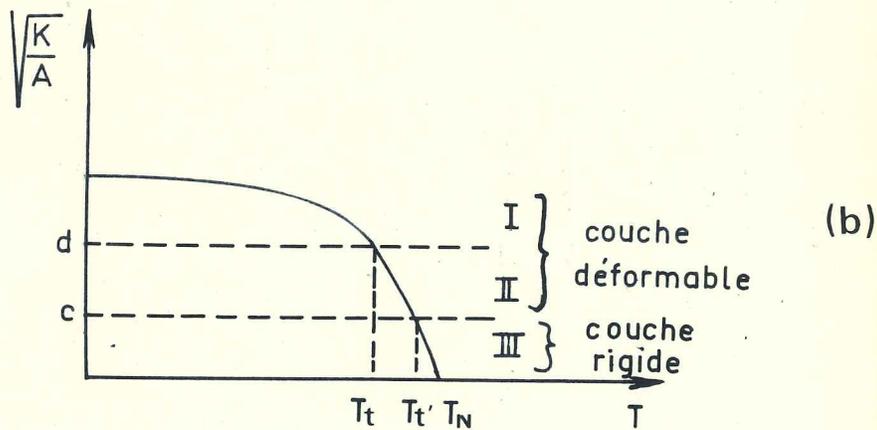
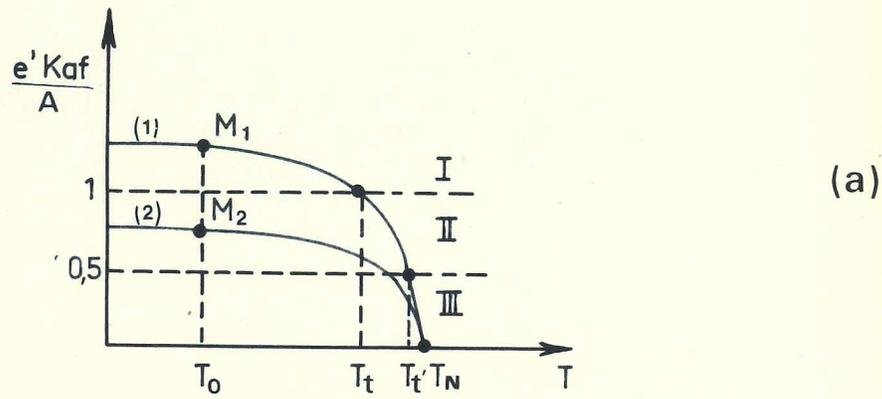


Figure 42 (a) Couche antiferromagnétique rigide. Variation possible du rapport $e'K_{af}/A$ avec la température. Les régions I, II et III correspondent respectivement aux cas de l'anisotropie unidirectionnelle des pertes par hystérésis et des mouvements réversibles de spins antiferromagnétiques derrière l'aimantation ferromagnétique.

(b) Couche antiferromagnétique déformable à basse température. Variation possible du rapport $\sqrt{K/A}$ avec T. les régions I et II correspondent respectivement au cas de l'anisotropie unidirectionnelle et des pertes par hystérésis.

pendant 2 h ayant une épaisseur moyenne plus faible qu'une couche oxydée à 200°C pendant 1 h. Cette propriété a aussi été

Tableau XIV

Echantillon	Température d'oxydation	Durée d'oxydation	Température de transition T_t
227 f	200°C	1 h	- 30°C
230 b	200°C	1 h	- 50°C
228 f	150°C	2 h	-100°C

observée qualitativement dans le système FeNi oxydé superficiellement (21).

La température de transition observée macroscopiquement correspond aux régions pour lesquelles le rapport $e' K_{af}/A$ est le plus grand. Ces mêmes régions correspondent aux valeurs les plus grandes de T_t' . Les valeurs T_t et T_t' mesurées sont voisines, parce que le paramètre $e' K_{af}/A$ doit varier très vite au voisinage de T_t , il doit être approximativement divisé par 2 entre T_t et T_t' .

Certaines substances à couplage ferro-antiferromagnétique présentent un maximum de pertes par hystérésis à la température où l'anisotropie unidirectionnelle disparaît (4). Ce n'est pas le cas dans nos échantillons où les propriétés macroscopiques résultent de la superposition d'un grand nombre de régions représentées par des courbes du type (1) aussi bien que par des courbes du type (2) (Figure 42 a). De plus, pour un cristallite donné, les pertes diminuent en même temps que l'anisotropie. On remarque cependant sur la figure 43 que le rapport K_o/K_e augmente rapidement avec la température vers T_t . D'autre part, par suite de l'isotropie

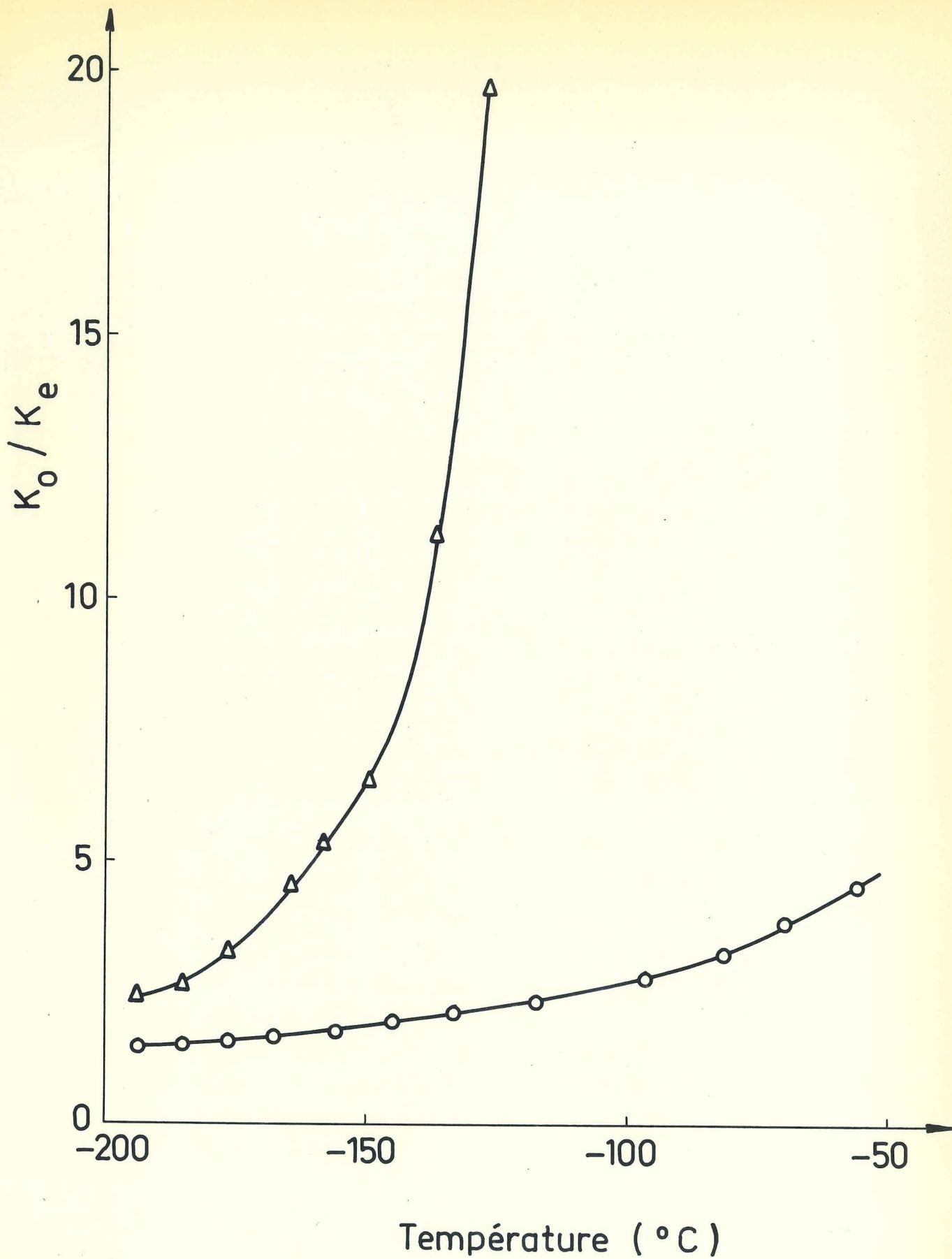


Figure 43 - Variation du rapport K_o / K_e avec la température.

Δ Co 228 f $T_t = -90^{\circ}\text{C}$

\circ Co 230 b $T_t = -45^{\circ}\text{C}$

de la distribution de leurs axes faciles, les régions antiferromagnétiques ne peuvent pas contribuer à l'anisotropie uniaxiale du système, conformément à ce qu'indique la variation de K_u avec T .

Pour comprendre l'existence du maximum de H_c vers la température de transition, il ne faut pas oublier qu'à -180°C , le champ coercitif mesuré à 1000 Hz correspond à une partie seulement de l'aimantation ferromagnétique. Lorsque la température s'élève, la fraction d'aimantation qui bascule augmente, le nombre de régions antiferromagnétiques qui suivent réellement de façon irréversible l'aimantation augmente aussi, entraînant une augmentation de l'hystérésis alternative. Aux températures supérieures à T_t' , ces mêmes régions effectuent des mouvements réversibles et l'hystérésis alternative diminue. Le basculement de l'aimantation ferromagnétique se faisant par déplacement de parois, la rotation irréversible des régions antiferromagnétiques au-dessous de T_t' , gêne ces déplacements et augmente le champ coercitif.

7.2.2. Cas des régions antiferromagnétiques déformables à -180°C

Si l'on néglige la déformation possible des couches ferromagnétiques, la variation des propriétés des couches dépendent d'une part de la valeur de A par rapport au maximum Γ_{nm} des courbes Γ_n , d'autre part du paramètre ρ . En première approximation, Γ_{nm}/A et ρ doivent varier à peu près comme $\sqrt{K/A}$. La figure 42 b schématise un comportement possible en fonction de la température. La valeur c de $\sqrt{K/A}$ correspond à la valeur 2,22 de ρ , la couche antiferromagnétique étant rigide dans la région III et déformable ailleurs. Si la valeur de $\sqrt{K/A}$ pour laquelle Γ_{nm} est égal à A , est supérieure à c , on observera de l'anisotropie unidirectionnelle aux températures inférieures à T_t et des pertes par hystérésis au-delà de T_t . Lorsque la couche devient rigide, les mouvements des moments antiferromagnétiques deviennent le

plus souvent réversibles et la région III doit correspondre à des mouvements réversibles. Dans ce cas, la température T_t' pour laquelle les pertes par hystérésis disparaissent est approximativement celle pour laquelle la couche devient rigide.

7.2.3 - Superparamagnétisme

La présence de phénomènes de trainage magnétique et la petite taille des grains antiferromagnétiques permet de penser que certains d'entre eux deviennent superparamagnétiques lors du réchauffement (voir chapitre VIII). En particulier, lorsque la température de blocage est inférieure à la température à laquelle les pertes par hystérésis disparaîtraient, l'apparition du superparamagnétisme va modifier la variation des propriétés avec la température. Au-dessus de la température de blocage, les grains sont superparamagnétiques et n'ont alors aucun effet sur la couche ferromagnétique.

En résumé, on peut retenir trois mécanismes contribuant à la variation des propriétés des couches avec la température. Il faut cependant remarquer qu'on peut parfaitement comprendre l'allure des variations en considérant que la couche antiferromagnétique est composée d'un grand nombre de régions dont les axes d'anisotropie sont distribués de façon isotrope et dans lesquelles l'aimantation reste "rigide".

CHAPITRE VIII

TRAINAGE MAGNETIQUE

Les couches Co-CoO présentent des phénomènes importants de trainage magnétique. Une telle propriété a aussi été observée sur les couches FeNi - FeNiMn (12) et est liée à l'existence du composé antiferromagnétique. Une étude quantitative de ce trainage, en particulier sa variation avec la température, doit donner de nouveaux renseignements sur le matériau antiferromagnétique.

Le trainage se manifeste d'une part, lors du tracé du cycle d'hystérésis en très basse fréquence ; si, l'aimantation ferromagnétique étant initialement presque saturée, on maintient le champ à une valeur voisine du champ de basculement, la couche ferromagnétique se désaimante lentement dans le temps. D'autre part, on a remarqué que, si l'on maintient le champ constant en intensité et en direction au cours des mesures en champ tournant, le couple mesuré diminue progressivement. Cette dernière propriété nous a paru plus commode pour une étude systématique.

8.1- RESULTATS EXPERIMENTAUX

Les mesures ont donc été faites au moyen de la balance de torsion dans les conditions du relevé de la courbe de couple. On maintient le champ constant après lui avoir fait effectuer plusieurs "oscillations" de 360° pour éliminer les phénomènes transitoires des premiers cycles suivant le refroidissement. On mesure le couple r en fonction du temps t . r_0 étant le couple enregistré à l'instant initial d'arrêt du champ et $r(t)$ à l'instant t , on définit : $\Delta r(t) = r_0 - r(t)$. On a porté sur les figures 44 a et b, $\Delta r(t)$ en fonction de $\log t$, à différentes températures. La direction et le sens du champ sont ceux de l'anisotropie

$T = -193,4 \text{ } ^\circ\text{C}$ $\Gamma_0 = 211,3$

$-128,5 \text{ } ^\circ\text{C}$ $124,3$

$-100,1 \text{ } ^\circ\text{C}$ $81,2$

$-86,5 \text{ } ^\circ\text{C}$ $52,2$

$-80,7 \text{ } ^\circ\text{C}$ $43,5$

$-74,3 \text{ } ^\circ\text{C}$ $32,7$

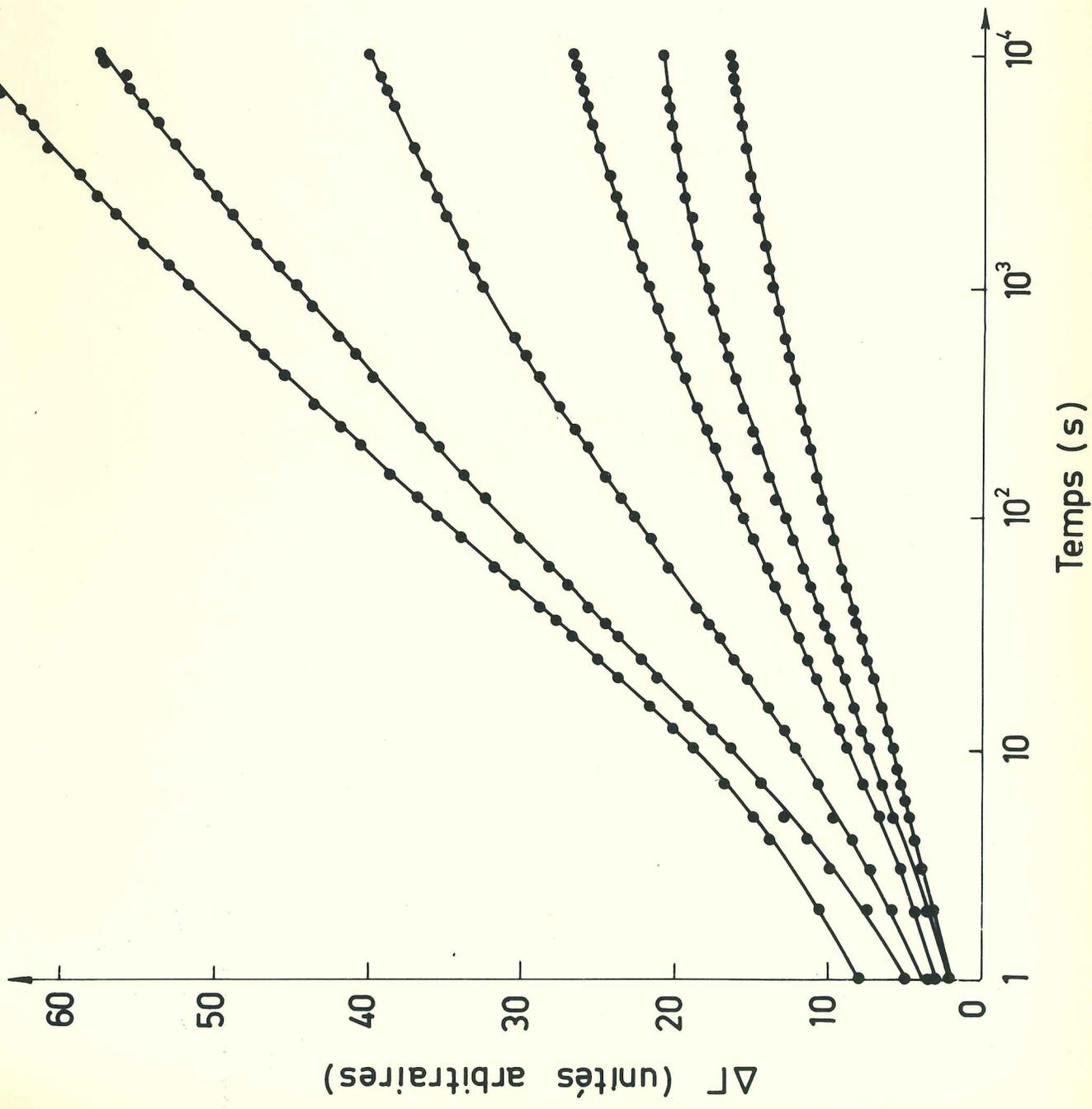


Figure 11 a) : Traînage magnétique : $\Delta\Gamma(t) = \Gamma_0 - \Gamma(t)$. Γ_0 et $\Delta\Gamma$ sont exprimés dans les mêmes unités (a) Echantillon 230 b $^\circ$

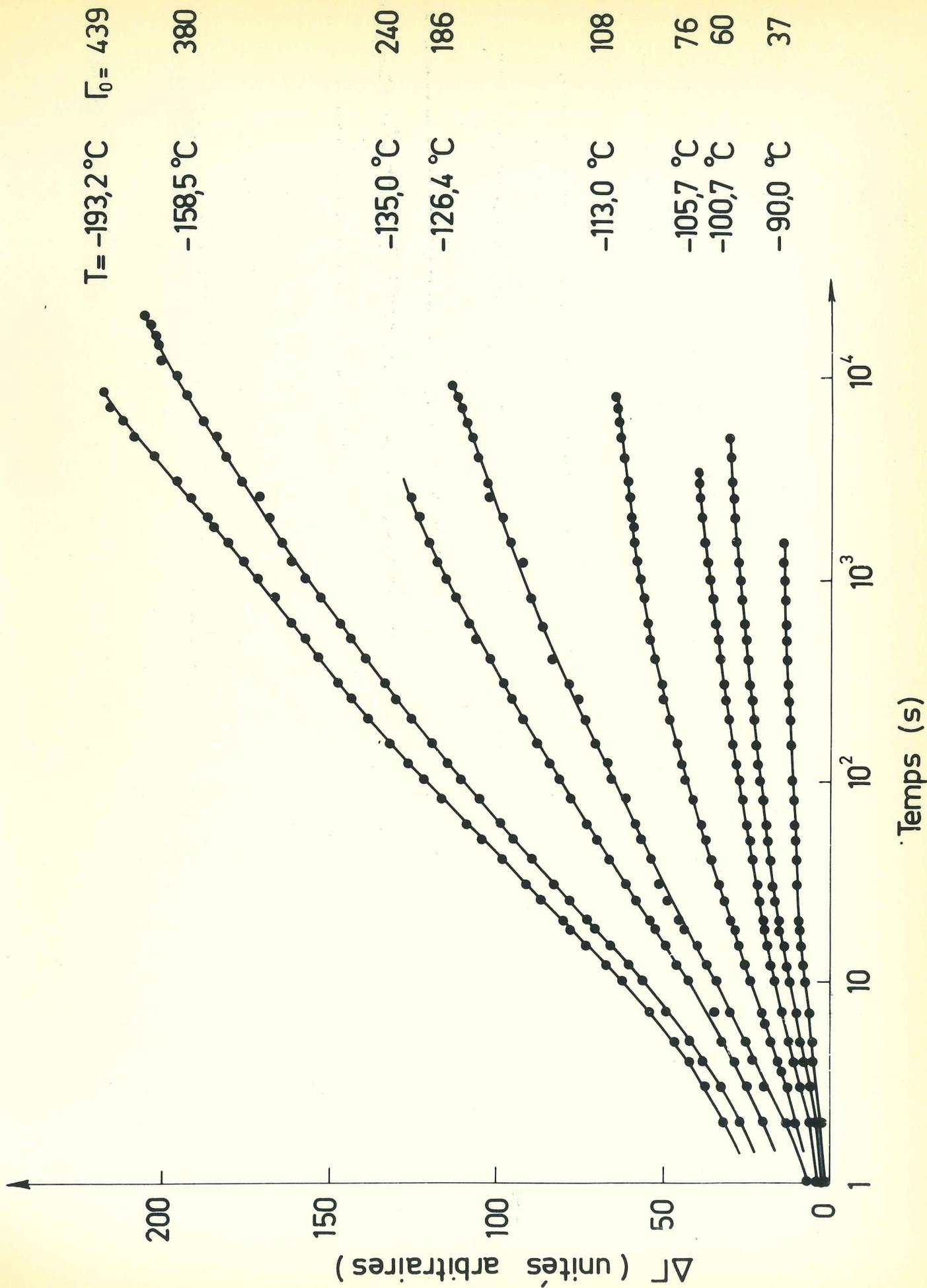


Figure 11 b): Trainage magnétique : $\Delta\Gamma(t) = \Gamma_0 - \Gamma(t)$. Γ_0 et $\Delta\Gamma$ sont exprimés dans les mêmes unités
 (c) Echantillon 220 f

unidirectionnelle. On remarque que la variation du couple se poursuit de façon non négligeable pendant des intervalles de temps supérieurs à plusieurs heures et que les quantités $\Delta\Gamma/\Gamma_0$ peuvent atteindre 30 à 60 % selon la température. On peut toujours assimiler les courbes à des droites pendant de grands intervalles de temps, et poser : $\Delta\Gamma = a \log t + b$. On peut alors déterminer la constante a expérimentalement avec une précision raisonnable.

8.1.1 - Variation avec l'intensité du champ magnétique

Les mesures correspondant à la figure 45 ont aussi été effectuées dans la direction de l'anisotropie unidirectionnelle. Le paramètre a devient approximativement indépendant du champ appliqué, en champ supérieur à 500 Oe. Il varie avec H comme les pertes par hystérésis de rotation. On peut donc en déduire que le traînage provient essentiellement du matériau antiferromagnétique.

8.1.2 - Variation avec la direction du champ magnétique

Le tableau XV donne le paramètre a pour différentes valeurs de l'angle θ entre le champ et la direction facile. Les variations relatives de a sont faibles. Il semble cependant que a soit maximum dans la direction perpendiculaire à la direction facile.

Ce résultat confirme que le traînage est lié en grande partie aux pertes par hystérésis de rotation.

Tableau XV

Variation du traînage avec la direction du champ (Echantillon 228 f)

θ (degrés)	0	64	90	156	180	220	270	360
a (unités arbitraires)	15,8	16,3	17,5	16,5	16,1	17,5	18,6	17,5

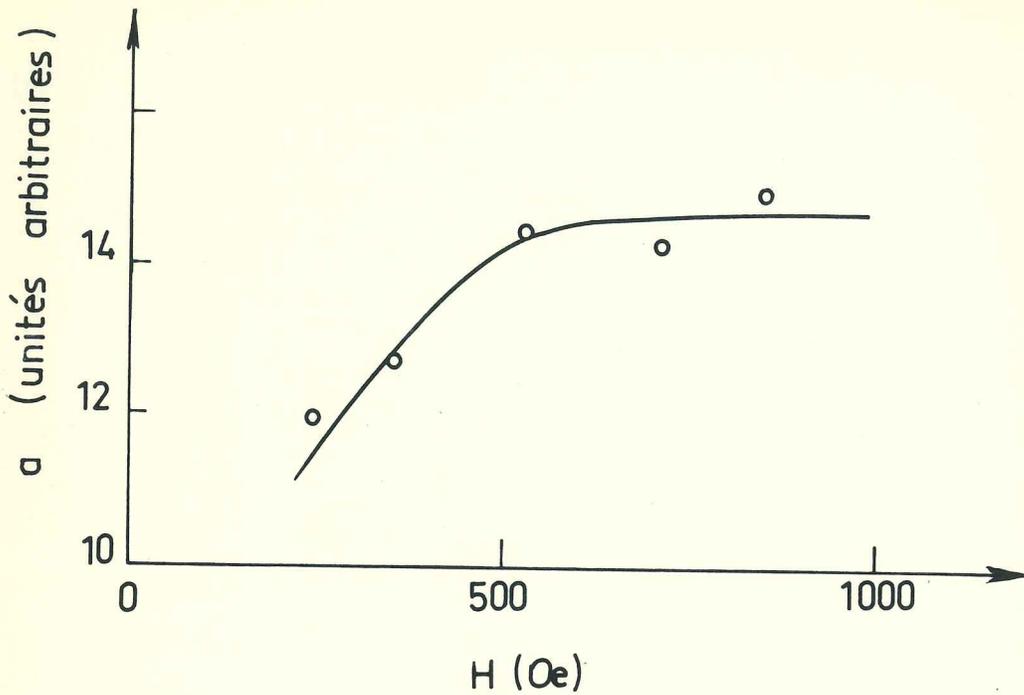


Figure 45 - Variation avec H de la pente a définie par :

$$\Delta F = a \text{ Log } t + b$$

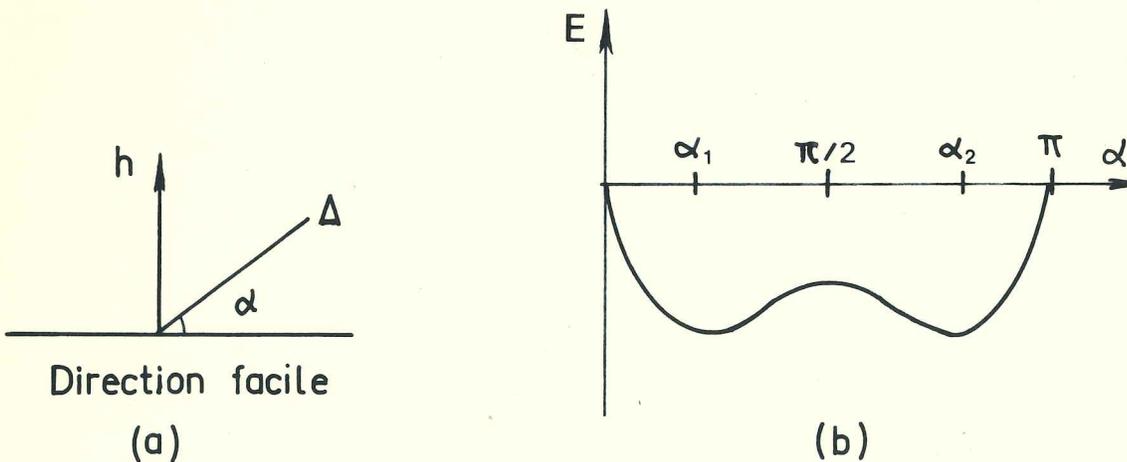


Figure 46 - Cas d'un grain dont la direction facile est perpendiculaire au champ de couplage h .

8.2. INTERPRETATION

Le trainage est observable dans toute la gamme de températures où le couplage ferro-antiferromagnétique et en particulier l'hystérésis qui lui est associée sont mesurables.

Il ne s'agit donc pas d'un trainage de diffusion qui se manifeste d'ordinaire dans une bande de températures assez étroite. Il doit plutôt provenir de réorientations des moments magnétiques dans les différentes régions antiferromagnétiques sous l'effet des fluctuations thermiques (22). Ce mécanisme est possible grâce à la petite taille des grains, les énergies d'activation nécessaires aux réorientations étant d'un ordre de grandeur comparable à l'énergie d'agitation thermique.

8.2.1. Rappel sur le trainage de fluctuations thermiques dans le cas de grains fins (43)

Dans un grain monodomaine, de volume V , à anisotropie uniaxiale de constante K , en l'absence de champ extérieur, les moments magnétiques ont deux positions d'équilibre stable suivant les deux sens de la direction facile. Pour passer d'un sens à l'autre, ils doivent franchir une barrière de potentiel de hauteur : $W = K V$. Sous l'effet des fluctuations thermiques, ils pourront "sauter" d'une position à l'autre avec une constante de temps : $\tau = c e^{W/kT}$. $1/c$ est une fréquence de l'ordre de grandeur de la fréquence de précession des moments autour de la direction facile (44).

Si la constante de temps τ est petite devant la durée des expériences, l'équilibre thermodynamique est atteint instantanément et les grains sont superparamagnétiques (41). Si τ est au contraire très grand, il n'y a pas de réorientations pendant les temps expérimentaux, les grains sont "bloqués" et on observe les phénomènes habituels. Pour les valeurs intermédiaires de τ , les réorientations qui ont lieu pour amener le système à l'équilibre thermodynamique sont mesurables et on

observe en particulier du trainage magnétique.

En l'absence de champ extérieur, la loi d'approche à l'équilibre pour une quantité S liée à l'orientation des moments suivant l'une ou l'autre des directions privilégiées est :

$$S = S_0 e^{-t/\theta}, \text{ avec } \theta = 2\tau. S_0 \text{ est la valeur initiale de } S. \text{ Dans le cas de grains antiferromagnétiques, } S \text{ est par exemple l'aimantation superficielle des grains.}$$

Les substances réelles présentent rarement des phénomènes de trainage obéissant à des lois exponentielles. En réalité pour un ensemble de grains, les constantes de temps sont distribuées de façon très large puisque θ varie très vite avec W . Les lois logarithmiques dans certains intervalles de temps sont fréquentes. On justifie ce résultat en considérant que la fonction de distribution des énergies d'activation est uniforme entre deux bornes W_1 et W_2 , nulle ailleurs (45). Si l'on appelle θ_1 et θ_2 les constantes de temps associées aux valeurs extrêmes W_1 et W_2 , $\Delta S(t)$ la variation de la quantité S entre l'instant initial et l'instant t , ΔS_∞ la limite de $\Delta S(t)$ lorsque $t \rightarrow \infty$, on montre que :

$$\frac{\Delta S(t)}{\Delta S_\infty} = \frac{\ln t + 0,577 - \ln \theta_1}{2 \ln x} \quad \text{pour } \theta_1 \ll t \ll \theta_2$$

$$\text{On a posé } x = \sqrt{\theta_2 / \theta_1}$$

8.2.2 - Cas du couplage ferro-antiferromagnétique

Dans le cas des couches Co-CoO, les énergies d'activation varient d'un grain antiferromagnétique à l'autre en même temps que le volume des grains, que l'énergie d'anisotropie et que la constante de couplage. Il n'est donc pas étonnant que le

traînage suivent une loi approximativement logarithmique.

Nous considérerons des grains antiferromagnétiques monodomains et ne tiendrons pas compte des interactions entre grains et des "déformations" magnétiques possibles des couches. On a vu (chapitre IV) qu'on pouvait classer les grains en trois catégories selon les valeurs du rapport $e' K_{af}/A$ ou $K_{af} V / \Lambda s$. V étant le volume du grain et s l'interface ferro-antiferromagnétique.

- Les grains pour lesquels $K_{af} V / \Lambda s < 0,5$ ne donnant lieu qu'à des mouvements de spin réversibles, ne sont pas "visibles" par la couche ferromagnétique et en particulier ne contribuent pas au traînage.
- Les grains à l'origine de l'anisotropie unidirectionnelle ($K_{af} V / \Lambda s > 1$) doivent en moyenne rester bloqués et ne pas donner lieu à du traînage, au moins dans la direction facile des couches. Ils doivent d'ailleurs correspondre le plus souvent aux grandes valeurs de $K_{af} V$, donc vraisemblablement à des constantes de temps très longues.
- Les grains donnant lieu aux pertes par hystérésis doivent largement contribuer au traînage. Pour une position donnée du champ de couplage, donc du champ extérieur, par rapport à l'axe d'anisotropie du grain, il existe deux positions d'équilibre stable pour la direction d'antiferromagnétisme Δ , donc pour l'aimantation superficielle S qui participe au couplage. Lors des mesures en champ tournant, la position d'équilibre occupée ne dépend que du sens de rotation du champ. Lorsqu'on immobilise H , Δ peut se réorienter suivant la deuxième position d'équilibre.

Remarquons qu'étant donnée la méthode d'étude expérimentale, on doit mesurer pratiquement la variation de la composante de l'aimantation superficielle antiferromagnétique perpendiculaire à l'aimantation ferromagnétique, donc approximativement

au champ. Donc les grains qui contribuent le plus largement au traînage doivent être ceux dont la direction facile fait un angle assez grand avec H.

Considérons en particulier ceux dont l'axe est perpendiculaire à H (Figure 45 a). L'énergie du grain est :

$$E = K_{af} V \sin^2 \alpha - A s \sin \alpha$$

V est le volume du grain et s l'interface ferro-antiferromagnétique.

Les deux positions d'équilibre stable α_1 et α_2 correspondent à : $\sin \alpha = \frac{A s}{2 K_{af} V}$. Elles sont symétriques par rapport à H. La hauteur de la barrière de potentiel qui les sépare est indépendante du sens de la réorientation et a pour hauteur :

$$W = E(\pi/2) - E(\alpha_1) = K_{af} V \left(1 - \frac{A s}{2 K_{af} V}\right)^2$$

(Figure 46 b)

Pour les grains à l'origine des pertes par hystérésis ($1 < \frac{A s}{K_{af} V} < 2$), l'énergie d'activation reste comprise entre 0 et $K_{af} V/4$ tandis qu'elle peut varier de $K_{af} V/4$ à $K_{af} V$, pour les grains donnant l'anisotropie unidirectionnelle.

Pour les grains dont l'axe est voisin de la direction du champ, la barrière de potentiel a pour hauteur

$$K_{af} V \left(1 + \frac{A s}{2 K_{af} V}\right)^2 \text{ ou } K_{af} V \left(1 - \frac{A s}{2 K_{af} V}\right)^2$$

selon que la réorientation se fait du sens privilégié par le couplage (sens +) à l'autre ou inversement. Dans le cas des grains donnant lieu à l'hystérésis, l'aimantation superficielle antiferromagnétique doit être initialement parallèle au champ de

couplage et de même sens que lui. Or les constantes de temps correspondant aux réorientations du sens + vers le sens -, donc à des énergies d'activation comprises entre $9 K_{af} V/4$ et $K_{af} V$ sont beaucoup plus grandes que celles relatives aux passages inverses pour lesquels les W sont compris entre 0 et $K_{af} V/4$. Un tel mécanisme ne doit pas donner lieu à des phénomènes observables.

Les grains dont la direction facile est comprise entre les directions parallèle et perpendiculaire à H doivent donner des résultats intermédiaires aux précédents.

8.3. Valeurs des constantes de temps et des énergies d'activation

L'approximation du spectre rectangulaire des énergies d'activation conduit à la loi de traînage :

$$\frac{\Delta \Gamma(t)}{\Delta \Gamma_{\infty}} = \frac{\ln t + 0,577 - \ln \theta_1}{2 \ln \chi} \quad \text{pour } \theta_1 \ll t \ll \theta_2$$

L'interprétation des courbes expérimentales nécessite la connaissance de $\Delta \Gamma_{\infty}$. Les résultats ne nous permettent pas de connaître $\Delta \Gamma_{\infty}$ puisque les courbes ne présentent pas de saturation pour les temps les plus longs ; en réalité, elles s'incurvent légèrement, la fonction de distribution des W n'étant pas rectangulaire et diminuant vers les grandes valeurs de θ .

D'autre part, les mesures sont faites à la fréquence de 5.10^{-3} Hz et on peut considérer que les résultats correspondent à un état initial du système obtenu dans des temps de l'ordre de la seconde. On ne mesure donc que les constantes de temps plus longues qu'environ 1 s et les énergies d'activation correspondantes.

On peut cependant admettre que toutes les régions donnant lieu aux pertes par hystérésis contribuent au trainage avec des énergies d'activation correspondant à une distribution approximativement rectangulaire. Nous prendrons donc : $\Delta\Gamma_{\infty} = \Gamma_0$. Cette hypothèse est justifiée par l'allure des courbes expérimentales.

On peut alors déduire les valeurs des constantes de temps extrêmes θ_1 et θ_2 . La pente des droites expérimentales est proportionnelle à $[\text{Log}(\frac{2}{1})]^{-1}$; on a déterminé θ_1 et θ_2 en utilisant la relation :

$$\frac{\Delta\Gamma}{\Delta\Gamma_{\infty}} = \frac{1}{2} \text{ pour } t \approx 0,6 \theta_0 \text{ avec } \theta_0 = \sqrt{\theta_1 \theta_2} = C e^{\frac{W_1 + W_2}{2 k T}}$$

On obtient ainsi dans tous les cas une valeur de θ_1 voisine de la seconde liée à l'appareil de mesure et sans signification physique fondamentale. La constante de temps θ_2 est de l'ordre de 10^{12} à 10^{13} s à -190°C (Tableau XVI et XVII).

On admet généralement que la constante C varie lentement avec la taille des grains et avec la température et qu'elle est de l'ordre de 10^{-9} à 10^{-12} s. La variation de θ entre 1 s et 10^{12} s correspond donc à des énergies d'activation variant approximativement du simple au double seulement.

Définissons la demi-largeur w du spectre des énergies d'activation et l'énergie moyenne W_0 :

$$w = \frac{W_2 - W_1}{2} \quad W_0 = \frac{W_1 + W_2}{2}$$

La valeur de w calculée à partir de x est de l'ordre de 10^{-13} ergs (Figure 48).

On ne peut connaître avec précision l'énergie d'activation moyenne W_0 . On sait seulement qu'elle doit être supérieure à w . Dans le cas de grains de 50 Å de diamètre et de 50 Å d'épaisseur, la constante d'anisotropie K_{af} doit par conséquent être supérieure à 10^6 erg/cm³.

Tableau XVI

Trainage magnétique (Echantillon 230 b)

Température (°C)	θ_0 (s)	x
- 193,4	$2,75 \times 10^6$	$2,24 \times 10^6$
- 184,6	$8,50 \times 10^5$	$7,41 \times 10^6$
- 171,0	$3,42 \times 10^5$	$1,95 \times 10^5$
- 154,5	$9,35 \times 10^4$	$6,60 \times 10^4$
- 128,5	$1,95 \times 10^4$	$1,66 \times 10^4$
- 100,1	$7,67 \times 10^3$	$6,31 \times 10^3$
- 86,5	$6,50 \times 10^3$	$7,41 \times 10^3$
- 80,7	$6,00 \times 10^3$	$6,92 \times 10^3$
- 74,3	$5,67 \times 10^3$	$6,03 \times 10^3$

Tableau XVII

Trainage magnétique (Echantillon 228 f)

Température (°C)	θ_0 (s)	x
- 193,2	7 330	5 000
- 158,5	4 670	3 020
- 135	1 670	1 260
- 126,4	1 250	1 000
- 113	550	501
- 105,7	416	316
- 100,7	500	363

8.4. Variation avec la température

On a représenté sur la figure 47 en fonction de la température la pente a des courbes de traînage correspondant aux figures 43 et 44. On observe un léger maximum vers les basses températures puis une diminution rapide, a tendant vers 0 vers la température de transition T_t . Sur la figure 48 on remarque que la demi-largeur $w = (W_2 - W_1)/2$ du spectre des énergies d'activation augmente avec la température.

La variation du traînage avec la température ne nous donne pas de renseignements précis. Si l'énergie d'activation variait plus lentement avec la température que kT , on pourrait espérer obtenir la valeur de $W_0 = (W_1 + W_2) / 2$, énergie moyenne. En réalité, W_0 varie rapidement avec la température, et les courbes de $\text{Log } \theta_0$ en fonction de $(1/kT)$ montrent seulement que W_0 doit augmenter avec T (Figure 49).

W_1 , qui correspond quelle que soit la température à une constante de temps θ_1 , de l'ordre de la seconde, doit varier approximativement comme kT . Puisque w augmente avec T , il semble que W_2 augmente plus vite que kT .

En réalité, ce ne sont pas les mêmes grains qui contribuent au traînage aux différentes températures. Ceux qui interviennent à basse température peuvent devenir superparamagnétiques lors du réchauffement. Les grains où la constante de couplage est relativement faible et où l'anisotropie et l'épaisseur sont relativement grandes sont à l'origine de l'anisotropie unidirectionnelle à basse température. Lors du réchauffement, ils donnent lieu à des pertes par hystérésis et donc au traînage. Or, aux températures assez éloignées du point de Néel, K_{af} doit diminuer lentement avec la température. On conçoit donc que W_2 augmente par suite de l'augmentation de

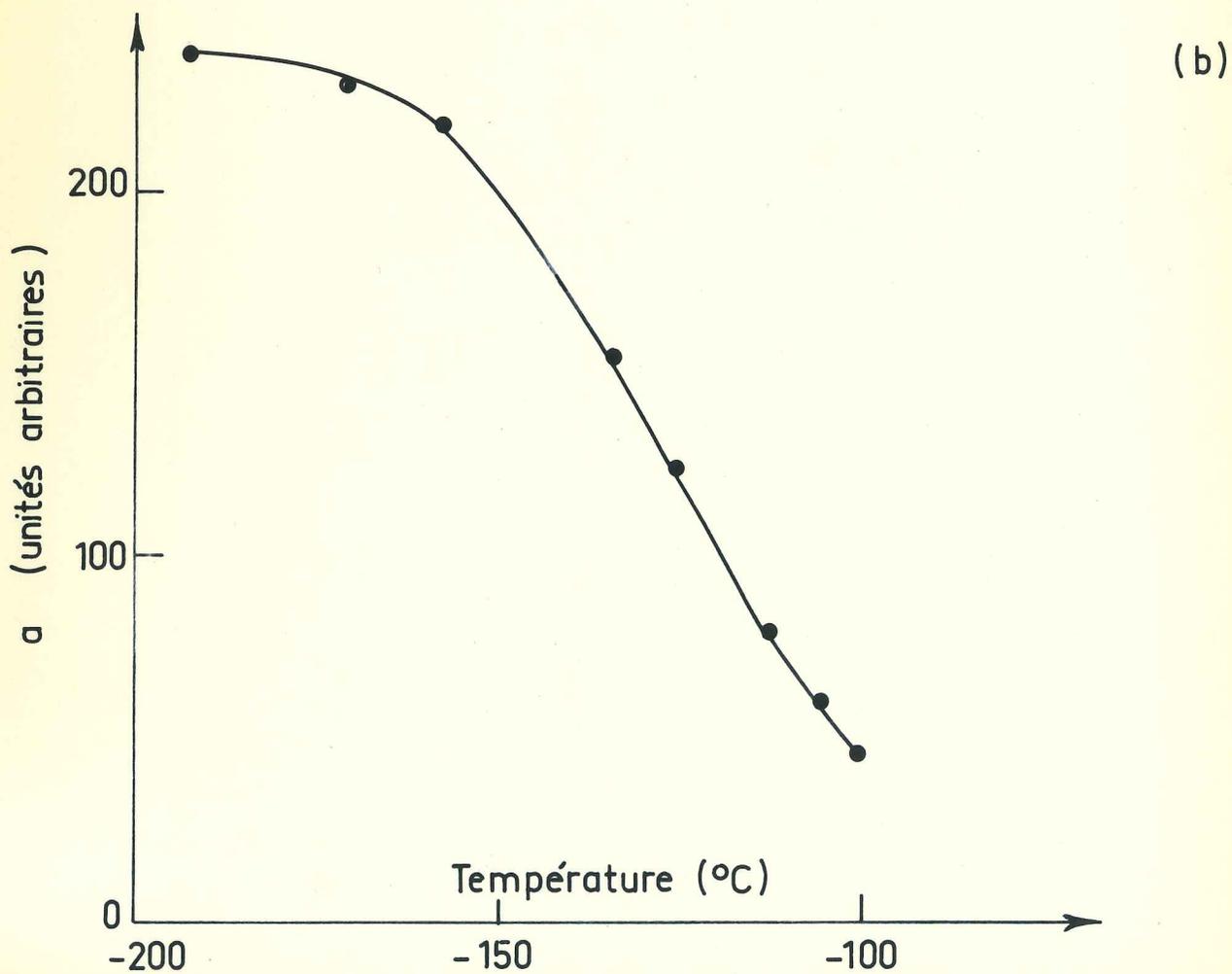
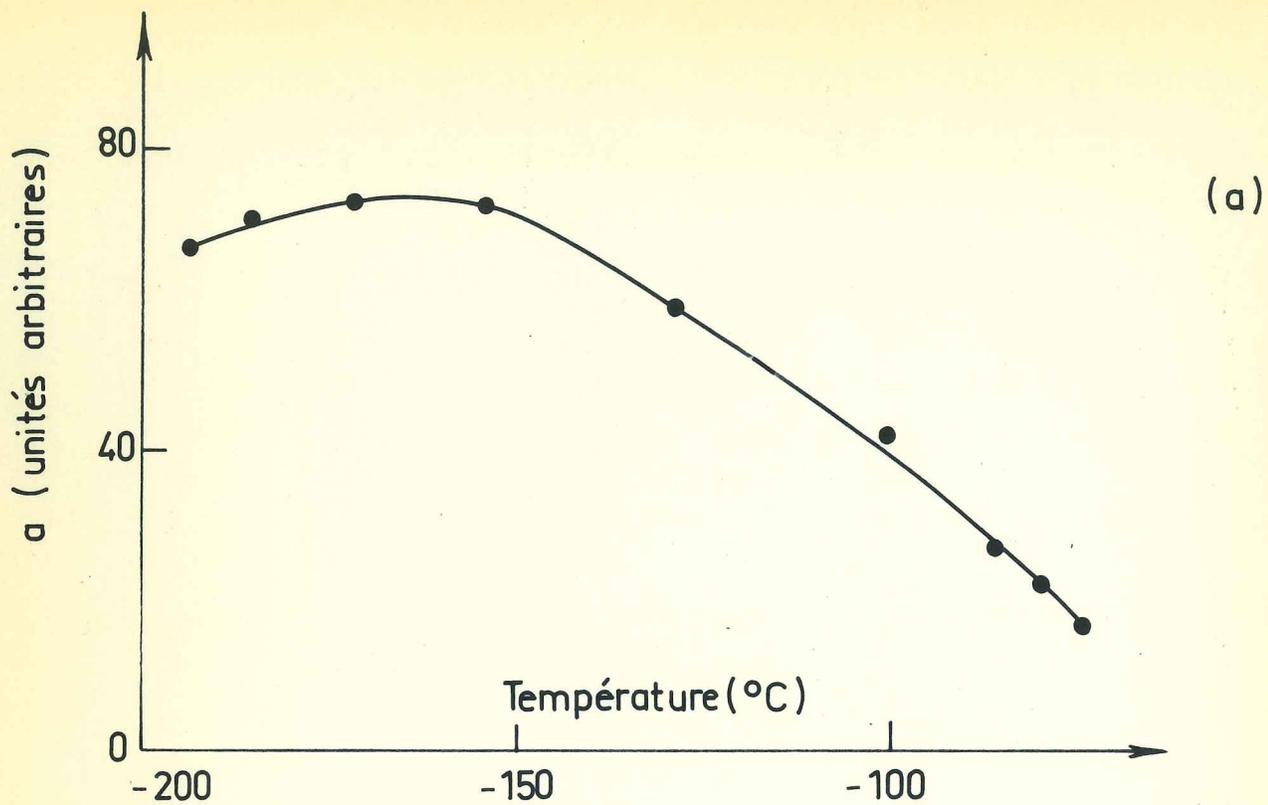


Figure 47 -Variation avec la température de la pente a des courbes de traînage. (a) Echantillon 230 b . (b) Echantillon 228 f

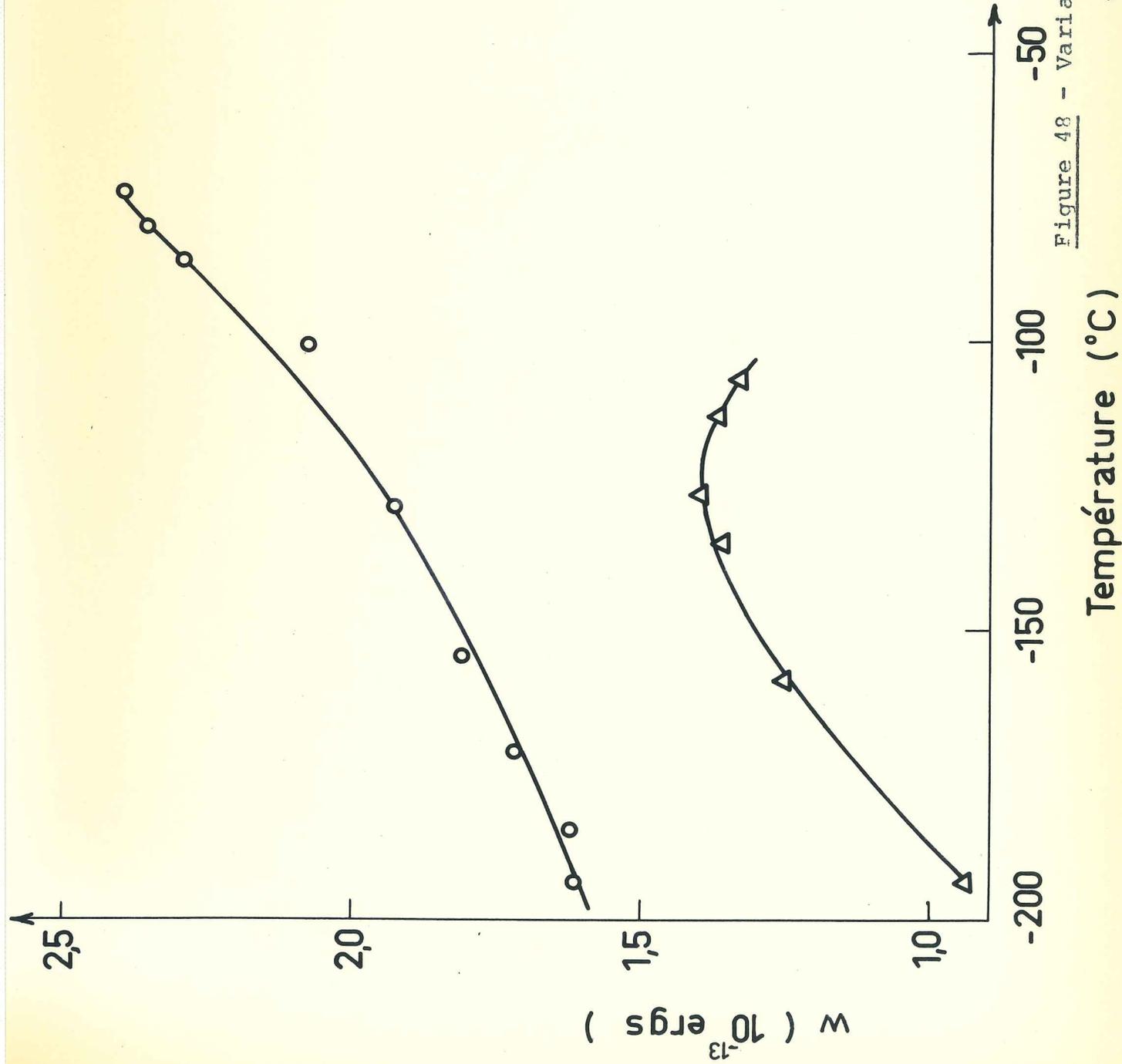


Figure 48 - Variation avec la température de

$$w = \frac{W_2 - W_1}{2}$$

- Echantillon 2301b
- △ Echantillon 228 f

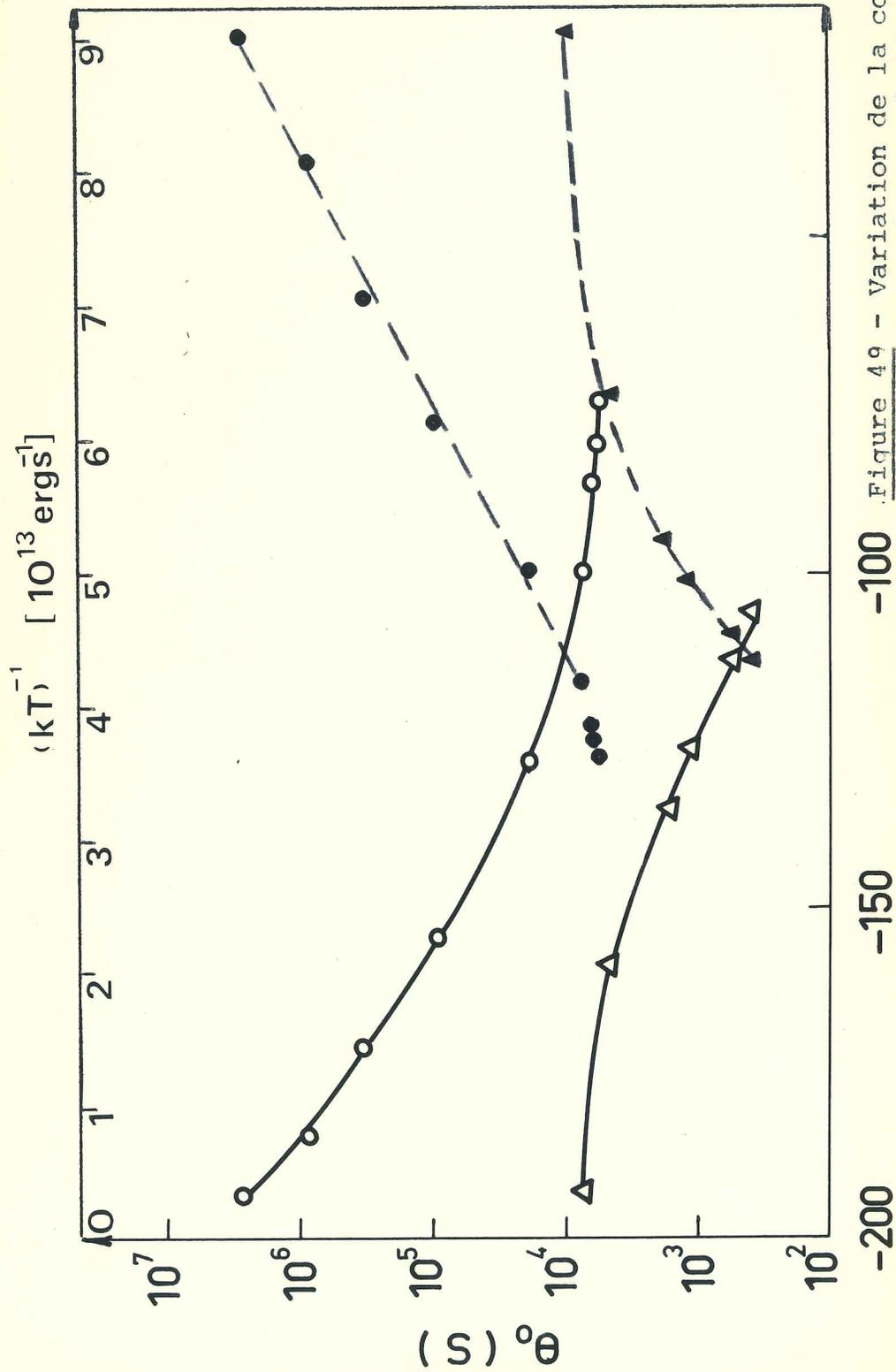


Figure 49 - Variation de la constante de temps moyenne θ_0 avec la température o et Δ en fonction de T • et Δ en fonction de $(kT)^{-1}$
 o et • Echantillon 230 b Δ et Δ Echantillon 228 f

l'anisotropie et du volume des grains mis en jeu. De plus, la constante de couplage A doit être en moyenne d'autant plus faible que l'interface des grains est plus grande, en particulier parce que la valeur de A est déterminée par l'existence de marches dans la structure de l'interface, le couplage changeant par exemple de sens d'une marche à la suivante et le nombre moyen de marches par grain augmentant avec la surface. Ce dernier mécanisme peut aussi contribuer à l'augmentation de W_2 avec T.

8.5 - Discussion

On a vu que la pente a des courbes de traînage dépend légèrement de la direction du champ extérieur (Tableau XV) et présente des maximums dans la direction difficile des couches. Quelques régions donnant lieu à l'anisotropie unidirectionnelle sont donc aussi susceptibles de se réorienter dans le temps. Il s'agit vraisemblablement des régions pour lesquelles le rapport $A s / 2 K_{af} V$ est proche de la valeur 0,5 et donc les énergies d'activation comparables à celles des régions qui sont à l'origine des pertes par hystérésis.

Par suite de la complexité des échantillons, on ne peut interpréter avec précision la variation thermique du traînage. Il semble cependant qu'on puisse conclure que les énergies d'anisotropie des grains antiferromagnétiques sont en moyenne supérieures à 10^6 erg/cm³ et peuvent atteindre au moins 10^7 erg/cm³. Ces valeurs correspondent à des anisotropies superficielles allant de 0,04 à 0,4 erg/cm² pour des plans d'interface (111). Ce résultat confirme que certaines régions antiferromagnétiques puissent être du type "déformable".

CONCLUSION

L'étude du système ferro-antiferromagnétique Co-CoO en couches minces a fait apparaître, outre les propriétés connues auparavant d'anisotropie unidirectionnelle et de pertes par hystérésis de rotation persistant en champ fort, une nouvelle propriété de contraction du cycle d'hystérésis qui suit des lois quantitatives assez précises. L'hystérésis a été étudiée au moyen d'une nouvelle méthode imaginée par L. Néel, l'hystérésis oscillante. On a mis en évidence également un phénomène important de traînage magnétique de fluctuations thermiques.

Toutes ces propriétés s'interprètent en considérant que la couche antiferromagnétique est composée d'un grand nombre de régions différant fortement les unes des autres par l'intensité du couplage avec le ferromagnétique ainsi que par la valeur et la direction de l'anisotropie. La diversité de ces régions justifie la présence simultanée d'anisotropie unidirectionnelle et de pertes par hystérésis. L'existence de fortes interactions entre elles est à l'origine de la contraction du cycle d'hystérésis

Le modèle des petites régions monodomaines à axes d'anisotropie uniaxiale distribués de façon isotrope dans le plan de la couche et dans lesquelles l'aimantation superficielle du plan d'interface est soumise au champ de couplage, permet d'expliquer qualitativement un grand nombre de résultats, en particulier la variation des propriétés avec la température et le traînage lié à la petite taille des régions.

Cependant, les résultats des mesures d'hystérésis oscillante s'interprètent en considérant, conformément aux prévisions de L. Néel, que l'orientation des moments magnétiques de certaines régions antiferromagnétiques varie d'un plan atomique au suivant, sous l'effet du couple d'interface. Cette propriété est à

l'origine des grandes valeurs des angles critiques de basculement. Enfin, la forte anisotropie antiferromagnétique doit provenir d'une anisotropie de surface donnant lieu à une anisotropie de forme des grains antiferromagnétiques.

La grande complexité des couches polycristallines ne permet pas d'obtenir des informations quantitatives précises. Il semble donc nécessaire de poursuivre les études sur le couplage ferro-antiferromagnétique avec des matériaux monocristallins. On envisage de préparer des couches minces ferromagnétiques monocristallines sur lesquelles on réalisera des couches minces antiferromagnétiques, ou de déposer des couches ferromagnétiques sur des plaquettes monocristallines antiferromagnétiques.

ANNEXE I

COURBE CRITIQUE OU ASTROÏDE

Dans le modèle de la rotation cohérente de l'aimantation d'une couche ferromagnétique mince d'aimantation J , à anisotropie uniaxiale de constante K_u , en présence d'un champ H , l'énergie du système est :

$$E = K_u \sin^2 \phi - JH \cos (\theta - \phi) \quad (\text{figure 2 b})$$

La courbe critique est le lieu des extrêmités du vecteur \vec{H} tel que :

$$\frac{\partial E}{\partial \phi} = \frac{\partial^2 E}{\partial \phi^2} = 0$$

Elle est représentée sur la figure 50. On montre qu'en présence d'un champ H , l'aimantation \vec{J} est parallèle à l'une des tangentes à l'astroïde issue de l'extrêmité de \vec{H} , selon le sens de rotation du champ.

Examinons le cas d'un champ tournant tel que la circonférence décrite par son extrêmité reste intérieure à l'astroïde c'est-à-dire tel que :

$$H < \frac{H_k}{2} = \frac{K_u}{J}$$

Si l'aimantation est initialement dirigée suivant OM_0 , le champ lui étant parallèle, lorsque ce dernier tourne, l'extrêmité M de \vec{J} reste au voisinage de M_0 ; \vec{J} oscille seulement autour de la direction facile.

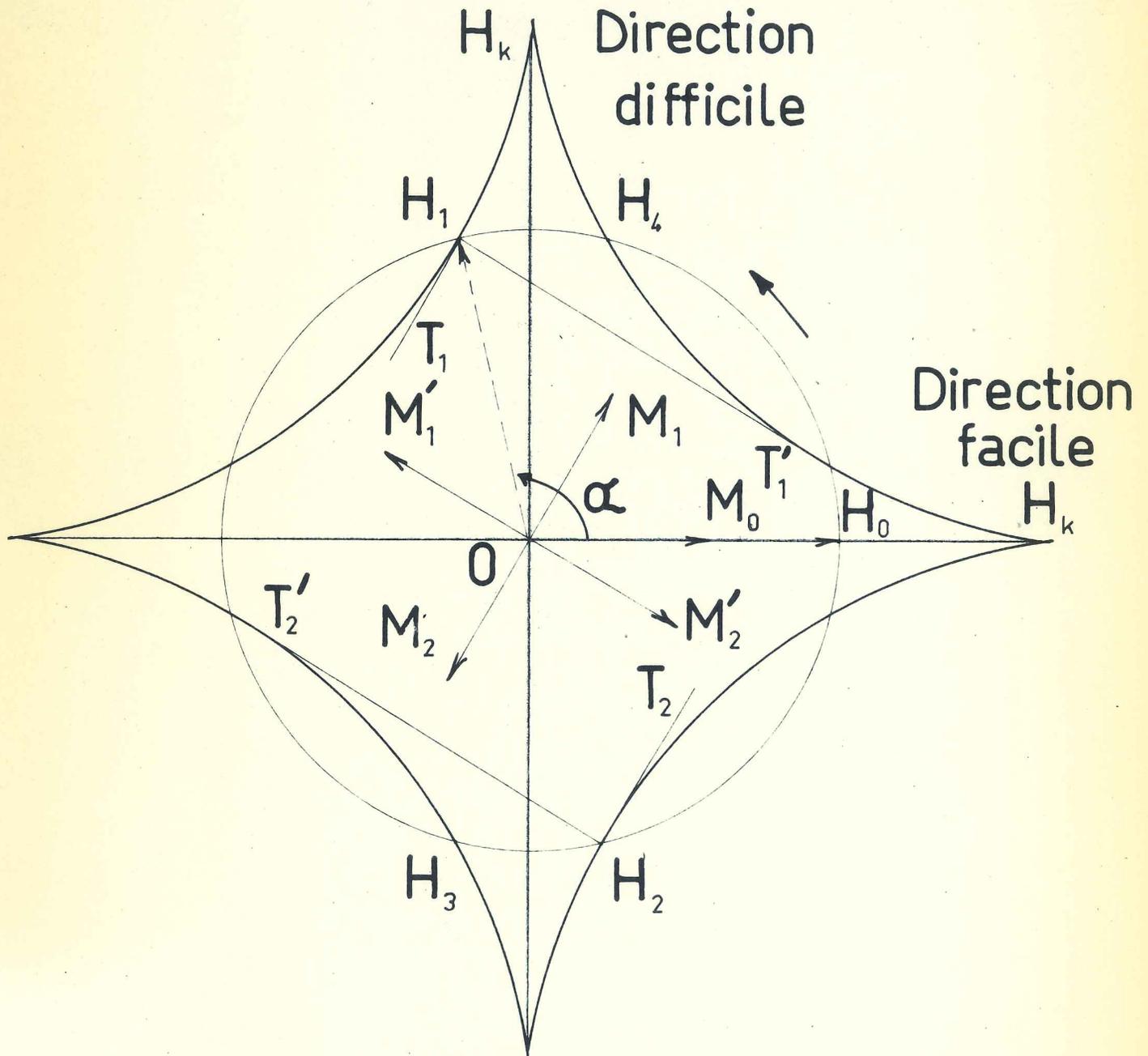
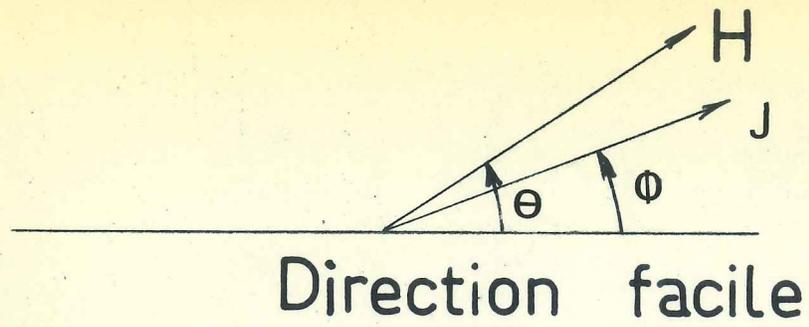


Figure 50 - Modèle de Stoner et Wohlfarth . Courbe critique (Astroïde)

Considérons le cas : $\frac{H_k}{2} < H < H_k$

Pour une rotation de \vec{H} de OH_0 en OH_1 , l'aimantation tourne d'une manière continue et réversible de OM_0 en OM_1 . Au passage de \vec{H} par OH_1 , elle saute de OM_1 en OM'_1 , ce qui entraîne une perte d'énergie W . Puis elle tourne réversiblement de OM'_1 en OM_2 lorsque \vec{H} va de OH_1 en OH_2 ; il y a une nouvelle perte d'énergie W au passage de \vec{H} par OH_2 , puis rotation réversible pendant le mouvement de OH_2 en OH_0 . Pour le sens inverse de rotation de \vec{H} , le vecteur \vec{J} subit des mouvements discontinus lorsque \vec{H} est en OH_3 et OH_4 .

La valeur α de θ pour laquelle H est en H_1 est donc l'angle critique de basculement. On remarque que α est toujours compris entre $\frac{\pi}{2}$ et $\frac{3\pi}{4}$.

On vérifie aisément que si H est supérieur à H_k , \vec{J} suit toujours \vec{H} réversiblement avec un retard ou une avance d'autant plus faible que H est plus grand.

ANNEXE II

INTERPRETATION DE L'ECART ENTRE LES DEUX PREMIERS CYCLES
D'HYSTERESIS AU MOYEN DU DIAGRAMME DE PREISACH

On représente un grain à cycle rectangulaire de champs coercitifs a et b ($b < a$) par un point du demi-plan ab défini par $b < a$. On l'affecte d'un signe $+$ si son aimantation est positive et $-$ dans le cas contraire.

L'état de l'aimantation superficielle S obtenue après refroidissement entre des températures T_a et T_b , en présence du champ fictif $h = a J$ est représenté sur la figure 51 a. Les grains représentés par les points de la région $z C B'$ sont soumis au champ h plus grand que leur champ coercitif a et sont aimantés positivement tandis que ceux de la région $z' C A'$ le sont négativement. Les grains de la région $A' C B'$ seraient aimantés positivement ou négativement avec des probabilités égales si leurs propriétés étaient indépendantes de la température. Mais lors du refroidissement, l'anisotropie antiferromagnétique augmente beaucoup plus vite que le champ fictif $a J$ et tout se passe comme si le système était soumis à un champ très fort au voisinage de T_a diminuant rapidement avec la température. On peut alors considérer que tous les grains de la région $A' C B'$ sont aimantés positivement.

Les figures 51 b et c correspondent aux états obtenus à la température T_b respectivement après le premier basculement en présence du champ fictif $-h$ et après le deuxième en présence du champ $+h$. Pour les cycles ultérieurs l'état du système en présence de $+h$ est toujours représenté par la figure 51 b et en présence de $-h$ par la figure 51 c.

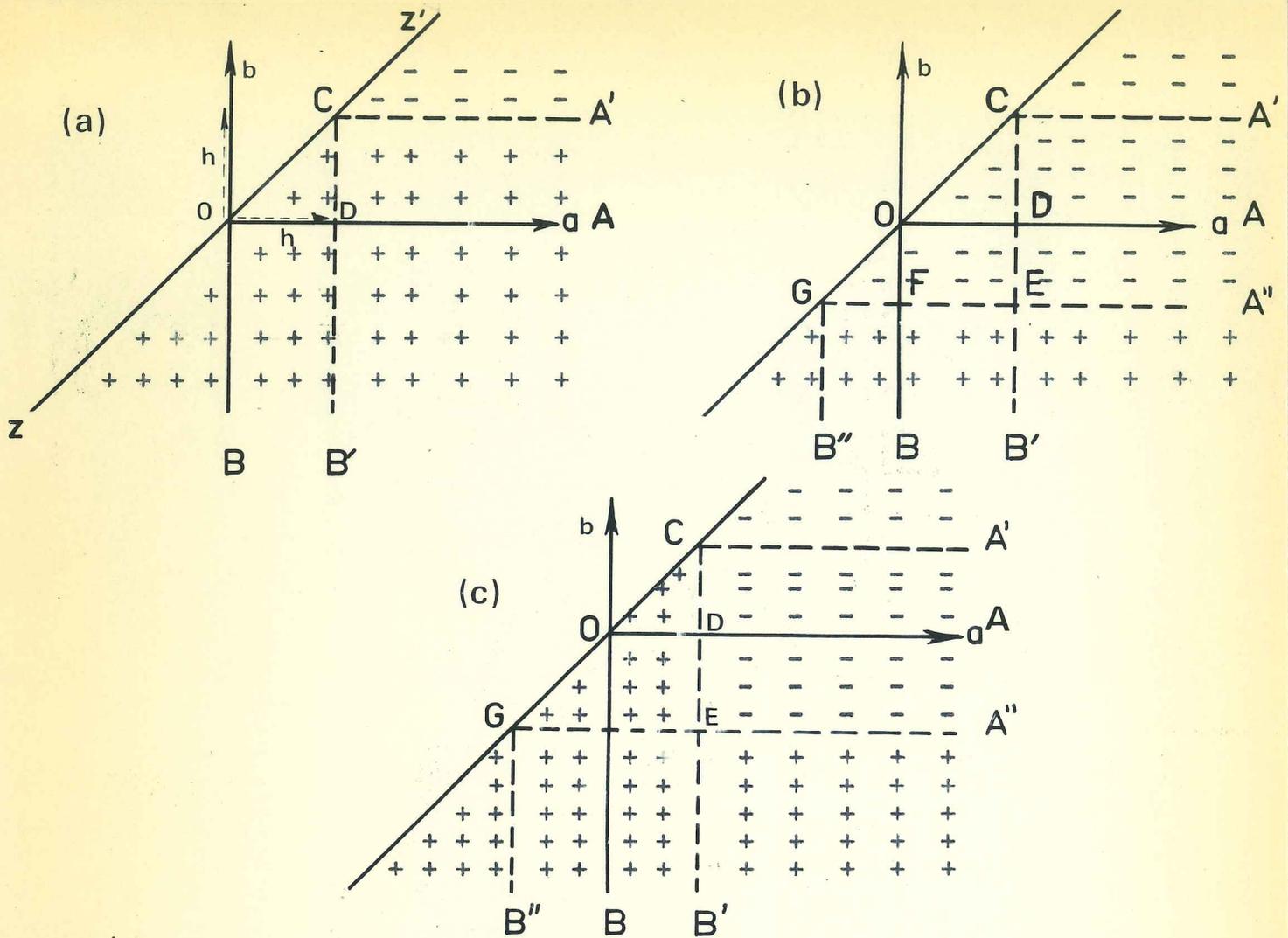


Figure 51 - Diagramme de Preisach. Interprétation de la variation entre les deux premiers cycles. (a) Etat initial du système après refroidissement (b) Etat du système après un basculement (c) Après le premier cycle

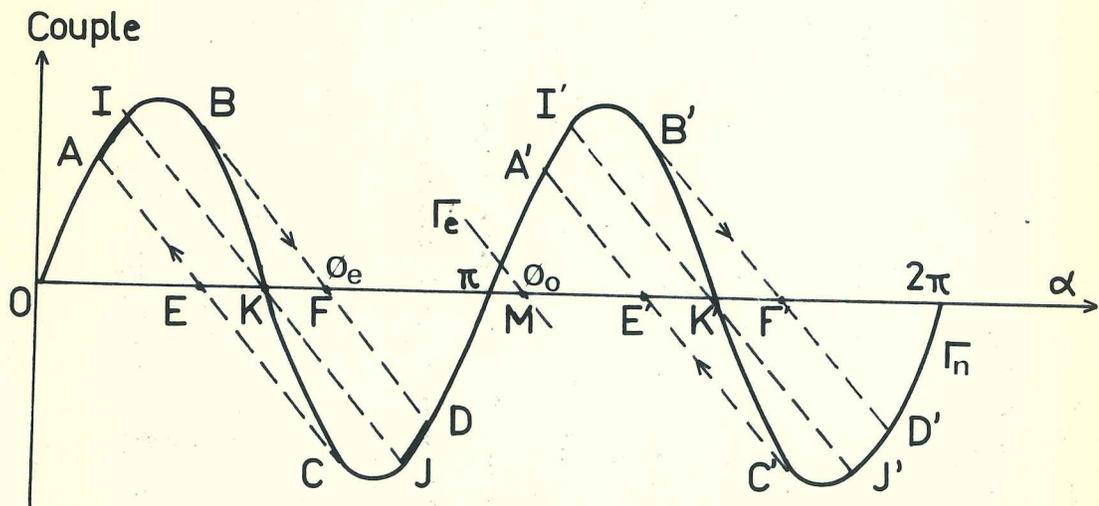


Figure 52 - Etude des pertes oscillantes dans le cas de la couche antiferromagnétique rigide. Γ_n correspond au couple d'anisotropie, Γ_e au couple d'échange

La comparaison des figures a et c montre qualitativement que l'aimantation S est plus faible dans l'état C que dans l'état a, donc que le premier cycle décrit par S n'est pas fermé.

ANNEXE III
 HYSTERESIS OSCILLANTE
 ETUDE DE LA PREMIERE OSCILLATION SUIVANT LE REFROIDISSEMENT

La position d'équilibre de l'aimantation superficielle antiferromagnétique S est telle que le couple exercé sur elle par le champ de couplage soit égal et opposé au couple d'anisotropie :

$$- a S J \sin (\alpha - \phi) = K_{af} e' \sin 2 \alpha$$

ou

$$- 2 h \sin (\alpha - \phi) = h_k \sin 2 \alpha$$

Les notations sont précisées dans le chapitre I (1-3).

La solution graphique est donnée par l'intersection des courbes Γ_e et Γ_n représentatives des deux couples (figure 52).

Lorsque le champ extérieur oscille entre deux directions faisant entre elles un angle Ψ , il en est approximativement de même pour J et la courbe Γ_e se déplace par rapport à Γ_n .

Soient M et M' les points correspondant pour un grain donné aux positions initiale et finale de J : $MM' = \Psi$. Pour un grand nombre de grains identiques dont les axes d'anisotropie sont orientés de façon isotrope, tout se passe comme si les différents points M étaient distribués sur un segment de longueur Π , par exemple EE'.

Dans le cas où $h_k/2 < h < h_k$, S effectue un saut irréversible lorsque ϕ atteint la valeur critique ϕ_e , c'est-à-dire

lorsque les deux courbes Γ_e et Γ_n deviennent tangentes en B ($OF = \phi_e$).

Avant la première oscillation du champ, le point P correspondant à la position d'équilibre de S ne peut être que sur les arcs de courbe A I et J D A'. En effet, le champ fictif de couplage a J est relativement très grand au point de Néel et la courbe représentative du couple correspondant est pratiquement une droite verticale au voisinage des valeurs du couple d'anisotropie. Lorsqu'on refroidit l'échantillon, pour les grains tels que M soit entre E et K, P reste sur l'arc de courbe A I, et pour ceux tels que M soit entre K et F, P reste sur J D.

Lorsque Ψ est inférieur à l'arc K F, S n'effectue jamais de mouvement irréversible et les pertes oscillantes sont nulles.

Lorsque Ψ est compris entre K F et E F, les grains tels que M soit sur E K et tels que M F soit supérieur à Ψ donneront lieu à un saut de S lors d'une oscillation de J, les autres à aucun.

Dans le cas où Ψ est supérieur à E F, les grains pour lesquels M est sur E K et ceux pour lesquels M F est inférieur ou égal à Ψ donnent lieu respectivement à 1 saut et à 2 sauts.

Pour une rotation de 2π de J, on remarque que S effectue 2 sauts pour tous les grains.

Le rapport des pertes oscillantes aux pertes de rotation est donc :

$$\frac{W(\Psi)}{W_r} = 0 \quad \text{pour } \Psi < \phi_e - \frac{\pi}{2}$$

$$\frac{W(\Psi)}{W_r} = \frac{\Psi - \frac{1}{2}(2\phi_e - \Pi)}{2\Pi}$$

pour $\phi_e - \frac{\Pi}{2} < \Psi < 2\phi_e - \Pi$

$$\frac{W(\Psi)}{W_r} = \frac{\Psi - \frac{3}{4}(2\phi_e - \Pi)}{\Pi}$$

pour $\Psi > 2\phi_e - \Pi$

Après la première oscillation de J, les seules positions possibles pour le point P sont sur l'arc C J D A' et le rapport $W(\Psi) / W_r$ prend les valeurs données dans 6 - 2 - 1.

BIBLIOGRAPHIE

- 1 - MEIKLEJOHN W.H., BEAN C.P.,
Phys. Rev. 1956, 102, 1413 ; 1957, 105, 904.
- 2 - MEIKLEJOHN W.H.,
J. Appl. Phys. 1962, 33 S, 1328
- 3 - SCHNAIDER C.,
Thèse de 3e cycle, Université de Grenoble, 1963.
- 4 - KOUVEL J.S.,
J. Phys. Chem. Solids 1963, 24, 795.
- 5 - VLASOV K.B., VOLKENSTEIN N.V., VONSOVSKII S.V., MITSEK A.I.,
TURSHINSKAYA M.I.,
Izv. Akad. Nauk SSSR, Ser. Fiz, 1964, 28, 423.
- 6 - BEAN C.P.,
Structure and properties of thin films, Neugebauer 1959,
p. 350.
- 7 - MASSENET O., MONTMORY R.,
C.R. Acad. Sci. Paris, 1964, 258, 1752.

MASSENET O., MONTMORY R., NEEL L.,
IEEE Trans. Magnetics, 1965, MAG 1, 63.
- 8 - MASSENET O., DEVENYI J.,
C.R. Acad. Sci. Paris, 1967, 265 B, 605.
- 9 - WAKSMANN B., BUDER R., ESCUDIER P., KOOI C.F., MASSENET O.,
J. Phys., 1968, 29, C 2 - 128.
- 10 - WAKSMANN B., MASSENET O., KOOI C.F.,
Intern. Colloquium on Phys. of Magnetic Films, Irkutsk,
1968, (AN. SSSR) p. 308.

- 11 - VALIN J., CHEVALIER G., BRUYERE J.C.,
Intermag 1968, à paraître dans IEEE Trans. Magnetics.
- 12 - GLAZER A.A., POTAPOV A.P., TAGIROV R.I., SHUR Ya S.,
Phys. Stat. Sol., 1966, 16, 745.
- 13 - GLAZER A.A. et al.,
Izv. AN SSSR, Ser. Fiz, 1966, 30, 1059.
- 14 - GLAZER A.A. et al.
Soviet Phys. Sol. State, 1967, 8, 2413.
- 15 - GLAZER A.A. et al.,
Izv. AN SSSR, Ser. Fiz, 1967, 31, 735.
- 16 - GLAZER A.A. et al.,
Intern. Colloquium on Phys. of Magnetic Films, Irkutsk,
1968, (AN SSSR) p. 190.
- 17 - SALANSKII N.M., CHRUSTOLEV B.P., GLAZER A.A.,
Intern. Colloquium on Phys. of Magnetic Films, Irkutsk,
1968 (AN SSSR) p. 207.
- 18 - PACCARD D., SCHLENKER C., MASSENET O., MONTMORY R., YELON A.,
Phys. Stat. Sol. 1966, 16, 301.
- 19 - GREINER J.H.,
J. Appl. Phys. 1966, 37, 1474.
- 20 - SHARP R.W., ARCHIBALD P.C.,
J. Appl. Phys., 1966, 37, 1462.
- 21 - HAGEDORN F.B.,
J. Appl. Phys., 1967, 38, 3641.
- 22 - NEEL L.,
Ann. Phys., 1967, 2, 61 et C.R. Acad. Sci. Paris, 1967,
264 B, 1002.

- 9
- 23 - Voir par exemple : PRUTTON M.,
Thin ferromagnetic Films, London Butterworths 1964, p. 54
à 62.
 - 24 - BRUYERE J.C.,
J. Phys. Radium, 1960, 21, 222 A.
 - 25 - PACCARD D.,
Thèse d'Ingénieur-Docteur, Université de Grenoble, 1964.
 - 26 - TOROK E.J., AGOURIDIS D.G., OLSON A.L., OREDSON H.N.,
Rev. Sci. Instr., 1964, 35, 1039.
 - 27 - SCHLENKER C., PACCARD D.,
J. Phys. 1967, 28, 611.
 - 28 - PRUTTON M.,
Thin Ferromagnetic Films, London Butterworths, 1964
ROTH M., Thèse d'Etat, Université de Grenoble,
 - 29 - NEEL L.,
J. Phys. Radium, 1956, 17, 250.
 - 30 - SUCKSMITH W., THOMPSON J.E.,
Proc. Roy. Soc. London, 1954, A 225, 362.
 - 31 - CALSOU R., LAFOURCADE L.,
C.R. Acad. Sci. Paris, 1967, 264 B, 1300.
 - 32 - Standard X-ray Diffraction Powder Patterns NBS Vol. I, p.
 - 33 - NEWKIRK J.B., MARTIN W.G.,
Trans. Metallurgical Society of AIME, Juin 1958, 398.
 - 34 - KUBASCHEWSKI O., HOPKINS B.E.,
Oxidations of Metals and Alloys, London Butterworths, 1962
BENARD J.,
L'oxydation des métaux, Paris, Gauthier-Villars, Tome I, 1
Tome II, 1

SEYBOLT A.U.,
Oxidation of Metals, Adv. in Physics (Phil. Mag. Suppl.)
1963, 12, n° 45, p. 1.

GWATHMEY A.T., LAWLESS K.R.,
The Surface Chemistry of Metals and Semiconductors, p. 483
Ed. Gatos, John Wiley and Sons, New-York, 1960.

35 - NEEL L.,
Phil. Mag. Suppl. 1955, 4, 191, voir p. 232.

36 - ROTH W.L.,
J. Appl. Phys., 1960, 31, 2000.

37 - NEEL L.,
C.R. Acad. Sci., 1958, 246, 2963 et 1958, 246, 2313.

38 - NEEL L.,
C.R. Acad. Sci., 1957, 244, 2668 et J. Phys. Radium, 1959,
20, 215.

39 a - ROTH W.L.,
Phys. Rev., 1958, 110, 1333.
SAITO S., NAKAHIGASHI K., SHIMOMURA Y.,
J. Phys. Soc. Japan, 1966, 21, 850.

39 b - VAN LAAR B.,
Thèse Université de Leyde, 1968

40 - KANAMORI J.,
Magnetism, Ed. RADO G.T. et SUHL H., Acad. Press, Vol. 1,
1963, p. 198

41 - NEEL L.,
J. Phys. Soc. Japan, 1962, 17 B I, 676.
et Cours de l'Ecole d'Eté des Houches, 1961 (Low Temperature
Physics, Gordon et Breach, New York, 1962).

- 42 - SCHLENKER C.,
Phys. Stat. Sol., 1968, 28, 507
- 43 - NEEL L.,
Ann. Géophys., 1949, 5, 99
- 44 - BROWN W.F.,
Fluctuation Phenomena in Solids, Ed. R.E. Burgess, Acad.
Press, 1965, p. 43
- 45 - NEEL L.,
J. Phys. Radium, 1950, 11, 49

DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté

TRANSITION ISOLANT-METAL DANS LES OXYDES DE METAUX DE TRANSITION

VU

Grenoble, le

Le Président de la Thèse,

VU

Grenoble, le

Le Doyen de la Faculté des Sciences,