

T0214
1963/20 C

3e CYCLE
D'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR

T H E S E

présentée à la

FACULTE DES SCIENCES DE L'UNIVERSITE DE GRENOBLE

pour obtenir le titre de

DOCTEUR du 3e CYCLE
de Magnétisme et Physique
du Solide

par

Claire SCHNAIDER

Licenciée es Sciences

COUPLAGES FERROMAGNETIQUES-ANTIFERROMAGNETIQUES

APPAREILLAGES DESTINES A CETTE ETUDE

Soutenue le 15 novembre 1963, devant la Commission d'Examen

MM. L. NEEL Président

R. MONTMORY
J.C. BARBIER } Examineurs

FACULTE DES SCIENCES DE L'UNIVERSITE DE GRENOBLE

LISTE DES PROFESSEURS

DOYENS HONORAIRES	M. FORTRAT P.	
	M. MORET L. Membre de l'Institut	
DOYEN	M. WEIL L.	
PROFESSEURS	MM. WOLFERS F.	PHYSIQUE
	NEEL L.	MAGNETISME ET PHYSIQUE DU SOLIDE
	DORIER A.	ZOOLOGIE
	HEILMANN R.	CHIMIE ORGANIQUE
	KRAVTCHENKO J.	MECANIQUE RAISONNELLE
	CHABAUTY C.	CALCUL DIFFERENTIEL ET INTEGRAL
	PARDE M.	POTAMOLOGIE
	BENOIT J.	RADIOELECTRICITE
	CHENE M.	CHIMIE PAPETIERE
	BESSON J.	ELECTROCHIMIE
	WEIL L.	THERMODYNAMIQUE
	FELICI N.	ELECTROSTATIQUE
	KUNTZMANN J.	MATHEMATIQUES APPLIQUEES
	BARBIER R.	GEOLOGIE APPLIQUEE
	SANTON L.	MECANIQUE DES FLUIDES
	OZENDA P.	BOTANIQUE
	FALLOT M.	PHYSIQUE INDUSTRIELLE
	MOUSSA A.	CHIMIE NUCLEAIRE
	TRAYNARD P.	CHIMIE
	SOUTIF M.	PHYSIQUE
	CRAYA A.	HYDRODYNAMIQUE
	REEB G.	MATHEMATIQUES
	BLAMBERT M.	MATHEMATIQUES
	BONNIER E.	ELECTROCHIMIE
	DESSAUX G.	PHYSIOLOGIE ANIMALE
	PILLET E.	ELECTROTECHNIQUE
	DEBEILMAS J.	GEOLOGIE
	VAUQUOIS B.	MATHEMATIQUES APPLIQUEES
	GALVANI O.	MATHEMATIQUES
	REULOS R.	THEORIE DES CHAMPS
	AYANT	PHYSIQUE APPROFONDIE
	GALISSOT F.	MATHEMATIQUES APPLIQUEES
M ^{le}	LUTZ E.	MATHEMATIQUES
	BOUCHEZ R.	PHYSIQUE NUCLEAIRE
	LLIBOUTRY L.	GEOPHYSIQUE
	MICHEL R.	GEOLOGIE ET MINERALOGIE
	GERBER R.	MATHEMATIQUES
	PAUTHENET R.	ELECTROTECHNIQUE
PROFESSEURS A TITRE		
PERSONNEL	MM. SILBER R.	MECANIQUE DES FLUIDES
	MOUSSIEGT J.	ELECTRONIQUE
	BARBIER J.C.	PHYSIQUE

.../

PROFESSEURS SANS CHAIRE

MM. BUYLE-BODIN	ELECTRONIQUE
M ^{me} . KOFLER	BOTANIQUE
DREYFUS	THERMODYNAMIQUE
VAILLANT	ZOOLOGIE ET HYDROBIOLOGIE
GIRAUD P.	GEOLOGIE
SAVELLI M.	PHYSIQUE GENERALE
M ^{me} . LUMER L.	MATHEMATIQUES
PERRET R.	SERVOMECHANISMES
ARNAUD P.	CHIMIE
M ^{me} . BARBIER M.J.	ELECTROCHIMIE
BRISSONNEAU	PHYSIQUE
COHEN J.	ELECTROTECHNIQUE
M ^{me} . SOUTIF J.	PHYSIQUE
DEPASSEL R.	MECANIQUE
GIDON P.	GEOLOGIE ET MINERALOGIE

PROFESSEURS ASSOCIES

MM. REIZNICK	PHYSIOLOGIE VEGETALE
LUMER	MATHEMATIQUES

MAITRES DE CONFERENCES

MM. ROBERT	CHIMIE PAPETIERE
ANGLES D'AURIAC	MECANIQUE DES FLUIDES
BIAREZ J.	MECANIQUE PHYSIQUE
COUMES A.	ELECTRONIQUE
DODU J.	MECANIQUE DES FLUIDES
DUCCROS P.	MINERALOGIE ET CRISTALLOGRAPHIE
GLENAT R.	CHIMIE
HACQUES G.	CALCUL NUMERIQUE
LANCIA R.	PHYSIQUE AUTOMATIQUE
PEBAY-PEROULA J.	PHYSIQUE
GASTINEL N.	MATHEMATIQUES APPLIQUEES
LACAZE A.	THERMODYNAMIQUE
GAGNAIRE D.	CHIMIE PAPETIERE
DEGRANGE D.	ZOOLOGIE
KLEIN J.	MATHEMATIQUES
M ^{me} . KAHANE J.	PHYSIQUE
RASSAT	CHIMIE SYSTEMATIQUE
DEPORTES C.	CHIMIE
DEPOMMIER P.	PHYSIQUE NUCLEAIRE
POLOUJADOFF M.	ELECTROTECHNIQUE
BARRA J.	MATHEMATIQUES APPLIQUEES
M ^{me} . BOUCHE L.	MATHEMATIQUES
PERRIAUX J.	GEOLOGIE
SARROT-REYNAUD	GEOLOGIE
CAUQUIS G.	CHIMIE GENERALE
LABBE A.	BOTANIQUE
BETHOUX P.	MATHEMATIQUES APPLIQUEES
BONNET G.	PHYSIQUE GENERALE

MAITRE DE CONFERENCE ASSOCIE M. ISHIKAWA Y. MAGNETISME

Je tiens à exprimer ma respectueuse reconnaissance à Monsieur le Professeur L. NEEL qui a bien voulu m'accueillir dans son laboratoire.

Je remercie Monsieur J.C. BARBIER qui a bien voulu faire partie du jury.

Je remercie aussi Monsieur R. MONTMORY qui a suivi et dirigé mon travail avec intérêt.

Mes remerciements s'adressent également à Monsieur J.C. BRUYERE qui m'a initiée à mon travail et au Personnel technique du service :

MM. FERRARI	{	Bureau d'Etudes "Mécanique"
MAHE		
BROZY	{	Techniciens d'Atelier
BIRAGHI		
ROBLIN		Souffleur de verre
BILLAT		Etude et réalisation des montages électroniques
Mlles PINGUET	{	Secrétariat et dactylographie
COSTE		
Mr DEVENYI		Photographie

Cette étude a été financée par des crédits émanant du CENTRE NATIONAL DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE et de la DELEGATION GENERALE à la RECHERCHE SCIENTIFIQUE et TECHNIQUE. (Contrat I962 FR I63).

I N T R O D U C T I O N

Le phénomène de couplage entre ferromagnétique et antiferromagnétique a été mis en évidence pour la première fois en 1956 par MEIKLEJOHN et BEAN ⁽¹⁾ sur des grains fins de cobalt partiellement oxydés. Ils lui donnèrent le nom "d'anisotropie d'échange".

Un certain nombre d'autres travaux sur le même sujet suivirent. Il apparut en particulier que des études sur des films minces pouvaient être extrêmement intéressantes pour faire progresser ces recherches.

Dans une première partie, nous exposerons sous forme de mise au point bibliographique les résultats acquis sur les couplages ferromagnétiques-antiferromagnétiques.

Nous décrirons ensuite les appareils que nous avons été amenés à construire avant de commencer cette étude sur des films minces.

Nous suivrons donc le plan suivant :

- CHAPITRE I - Mise au point bibliographique
- CHAPITRE II - Groupe d'évaporation
- CHAPITRE III - Groupe d'oxydation et de recuit
- CHAPITRE IV - Hystérésiscope basse-température.

C H A P I T R E I

MISE AU POINT BIBLIOGRAPHIQUE

Couplages ferromagnétiques-antiferromagnétiques

Les résultats obtenus sur des grains fins de cobalt oxydés permirent à MEIKLEJOHN et BEAN de donner des interprétations assez précises du phénomène. Diverses études confirmèrent ensuite ces premiers travaux.

En particulier, une série d'alliages désordonnés présentèrent des propriétés magnétiques analogues à celles du matériau de MEIKLEJOHN et BEAN. Ils permirent de vérifier un certain nombre de points de leur théorie et de servir de base à une théorie plus générale.

D'autre part, plusieurs auteurs ont essayé de relier un ensemble de résultats obtenus sur des films minces aux phénomènes de couplages ferromagnétiques-antiferromagnétiques.

Nous développerons donc les points ci-dessous :

A - GRAINS FINS

- 1° - Résultats expérimentaux
- 2° - Interprétations qualitatives
- 3° - Théorie phénoménologique
- 4° - Calcul du cycle d'hystérésis par les méthodes de micromagnétisme

B - ALLIAGES DESORDONNES - RESULTATS DIVERS

- 1° - Alliages désordonnés
- 2° - Résultats divers - Généralisation
- 3° - Modèle de Kouvel

C - FILMS MINCES

- 1° - Divers résultats expérimentaux
- 2° - Couplages ferromagnétiques-antiferromagnétiques.

A - GRAINS FINS

1° - Résultats expérimentaux

Considérons d'abord des grains fins de cobalt pur :

- Le cycle d'hystérésis est symétrique par rapport aux axes
- Le couple magnétique exercé sur un grain fin par un champ magnétique le saturant est uniaxial ou en $\sin 2 \Theta$ (Θ étant l'angle entre la direction de l'axe facile et celle du champ magnétique). L'échantillon aurait deux positions d'équilibre stable dans le champ magnétique ; il possède une anisotropie uniaxiale classique.
- L'énergie perdue par hystérésis de rotation est nulle aux champs faibles et tend vers zéro aux très grands champs. Elle n'est pas nulle pour : $\frac{K}{I_s} < H < \frac{2K(2)}{I_s}$, K étant la constante d'anisotropie et I_s l'aimantation spontanée du grain.

Les grains fins de cobalt partiellement oxydés ont été refroidis à partir de la température ambiante jusqu'à 77°K en présence d'un fort champ magnétique (de l'ordre de 10 000 Oe). Les mesures faites à la température de l'air liquide ont montré que :

- Le cycle d'hystérésis est dissymétrique par rapport à l'axe des aimantations ; il est "déplacé" sur l'axe H. Le même matériau refroidi sans champ magnétique présente un cycle d'hystérésis symétrique (Figure 1)
- Le couple magnétique obtenu à la balance de torsion est en $\sin \Theta$ (Figure 2). L'échantillon a donc une seule position d'équilibre stable en présence d'un champ magnétique. Il a une anisotropie orientée par le champ de refroidissement. Cette propriété a été définie comme une anisotropie "unidirectionnelle".

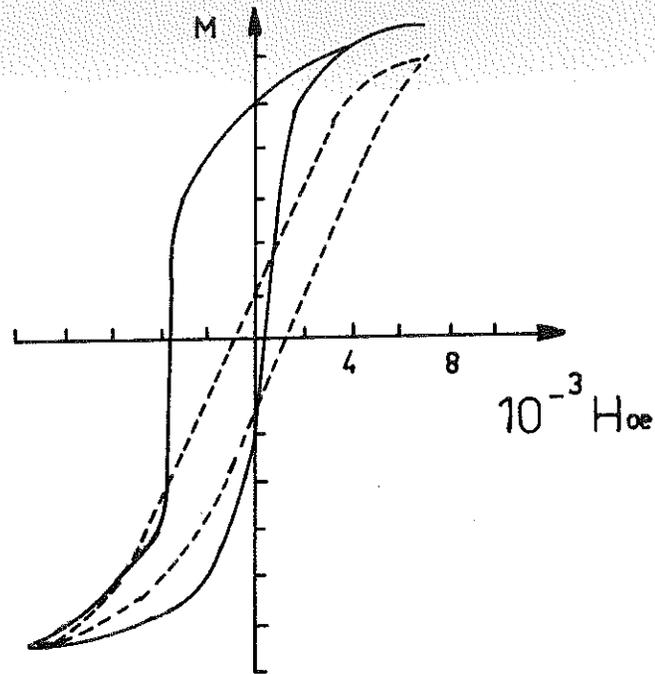


Fig 1: Cycle d'hystérésis à 77°K

— Champ de refroidissement de 10000 Oe
 --- " " nul

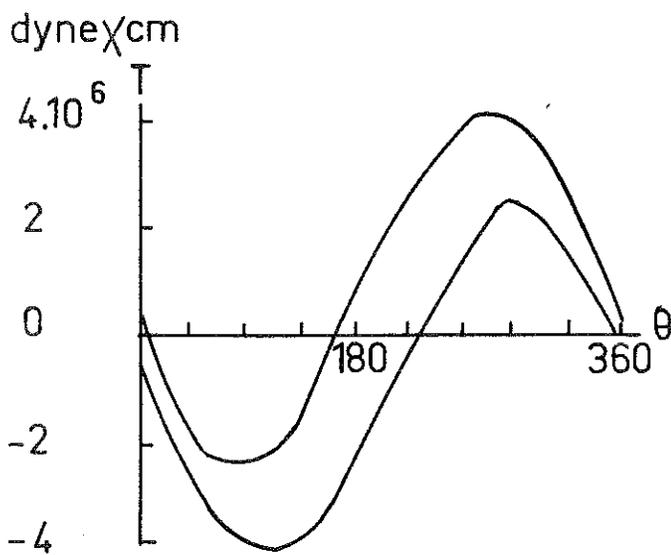


Fig 2: Couple magnétique à 77°K
 Champ de refroidissement 20000 Oe
 Champ de mesure 7500 Oe

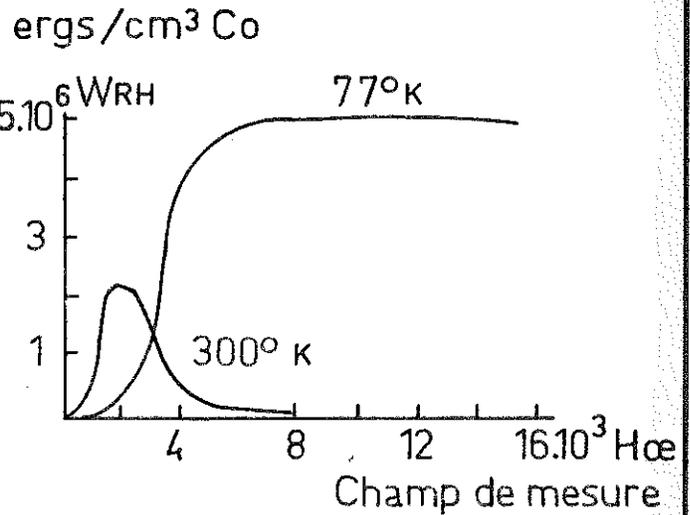


Fig 3: Hystérésis de rotation

Grains fins Co₂CoO D'après Meiklejohn et Bean (1)

- L'hystérésis de rotation persistait pour des valeurs très grandes du champ magnétique de mesure (Figure 3).

Les expériences ont montré que ces propriétés anormales étaient dues à l'existence de l'oxyde CoO antiferromagnétique.

- Elles disparaissaient presque totalement après réduction des grains oxydés et réapparaissaient après réoxydation.

- L'amplitude du déplacement de cycle diminuait quand la température augmentait et tendait vers 0 pour une température voisine de la température de NEEL de l'oxyde, soit environ 300°K.

- Des études de diffraction électronique ont établi que l'oxyde était bien CoO.

Des travaux similaires ont été faits sur des grains fins de fer(3), de nickel(4), de fer-cobalt(5) après oxydation partielle du matériau.

On a observé dans tous les cas une hystérésis de rotation persistante aux champs forts. Dans le cas du nickel, on observe une forte composante en $\sin \theta$ dans la courbe du couple, mais pas de déplacement du cycle d'hystérésis. Dans le cas du fer-cobalt par contre, on trouve les trois propriétés simultanément.

2° - Interprétations qualitatives

On peut admettre facilement que le cycle d'hystérésis déplacé et la courbe du couple magnétique en $\sin \theta$ sont deux manifestations d'un même phénomène, l'anisotropie unidirectionnelle. Il faut donc distinguer d'une part l'anisotropie unidirectionnelle, d'autre part l'hystérésis de rotation.

a) - Anisotropie unidirectionnelle.

L'anisotropie d'échange est un phénomène d'interface. Cette hypothèse est justifiée par le fait que l'amplitude des effets diminue quand la taille des grains augmente, donc quand le rapport surface d'échange/volume diminue.

Considérons un grain de cobalt oxydé. On peut supposer que les moments magnétiques dans l'antiferromagnétique sont maintenus à basse-température dans une direction privilégiée par la forte anisotropie magnétocristalline de l'oxyde. Supposons de plus que l'interface soit constituée dans l'oxyde et dans le métal de plans d'alignement ferromagnétique. Par interaction d'échange les spins dans le cobalt auront tendance à rester alignés avec les spins dans l'oxyde (Figure 4). Il en résultera une anisotropie unidirectionnelle. En particulier, le grain s'aimantera plus facilement dans le sens des spins Co^{++} de l'interface que dans le sens contraire.

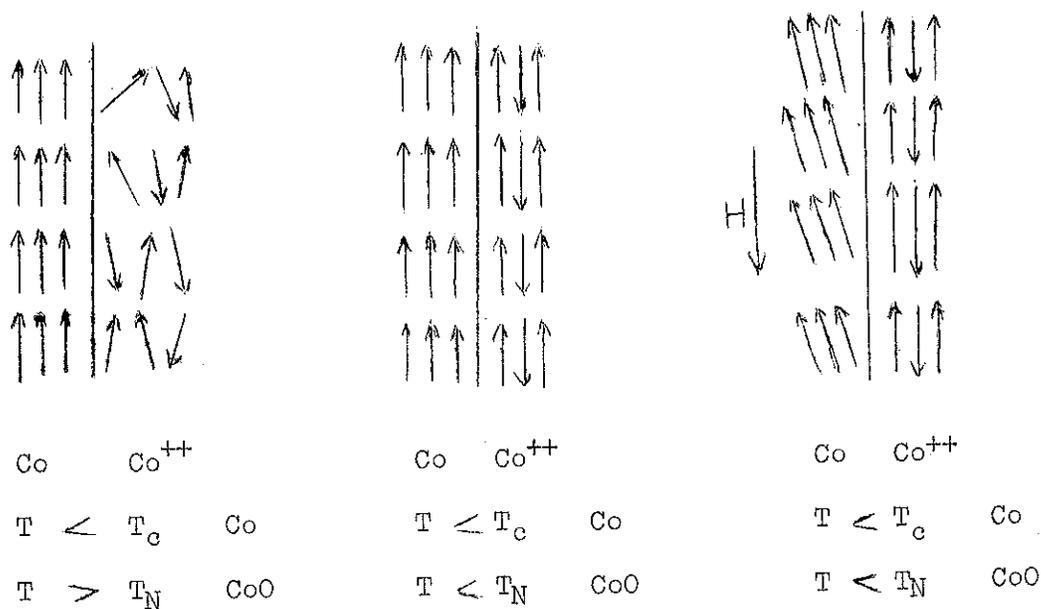
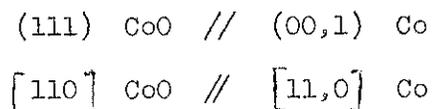


Figure 4 - D'après C.P. BEAN(6)

On est alors amené à étudier le plan d'interface, donc la croissance de l'oxyde sur le métal. On sait que cette croissance est épitaxiale. Dans le cas du cobalt (7), on sait que :



D'autre part, les spins dans le métal et l'oxyde ont des directions particulières, $[001]$ pour Co, $[11\bar{7}]$ pour Co^{++} . Lors du refroidissement au-dessous du point de NEEL, les spins de l'oxyde vont pouvoir prendre un certain nombre de directions privilégiées par rapport aux spins du métal. Si l'on refroidit les grains oxydés sans champ magnétique, le couplage d'échange se manifestera dans chaque grain, mais macroscopiquement on n'observera rien. Par contre, si on les refroidit en présence d'un champ magnétique les spins Co^{++} choisiront dans chaque grain la direction privilégiée rendue la plus favorable par le champ appliqué. On observera alors une anisotropie unidirectionnelle macroscopique.

On peut même supposer que si l'oxydation a lieu à une température inférieure au point de NEEL, un champ magnétique appliqué pendant la formation de l'oxyde doit faire apparaître cette anisotropie macroscopique (4).

b) - Hystérésis de rotation

L'hystérésis de rotation est associée à une perte d'énergie. Deux interprétations différentes ont été données dans le cas des grains fins de cobalt oxydés.

b)1 - Première interprétation(6)

On peut supposer que pendant la rotation d'aimantation du ferromagnétique, une paroi de domaine à 180° est créée à l'interface. Cette paroi serait détruite pendant la deuxième moitié du cycle.

Ce processus serait à l'origine de la perte d'énergie. Cette interprétation tient compte de la continuité des changements d'orientation des spins à l'interface. Dans cette hypothèse, on doit donc observer simultanément l'anisotropie unidirectionnelle et l'hystérésis de rotation.

b)2 - Deuxième interprétation (1)

En fait, dans certains cas⁽³⁾, on observe une hystérésis de rotation et pas d'anisotropie unidirectionnelle. Ce résultat est à l'origine de cette deuxième interprétation. Les deux phénomènes n'apparaîtraient pas simultanément.

La perte d'énergie n'aurait lieu que si l'anisotropie de l'antiferromagnétique était assez faible pour que les spins dans l'oxyde et dans le métal puissent subir des réorientations discontinues autour du champ extérieur quand celui-ci tourne. Le champ agirait sur l'antiferromagnétique non pas directement, mais par l'intermédiaire du couplage d'échange ferromagnétique-antiferromagnétique.

Dans le cas des grains de cobalt oxydés, il faudrait supposer que dans certains grains la couche d'oxyde soit très mince et que l'anisotropie antiferromagnétique soit alors beaucoup plus faible que celle du matériau massif. Certains grains seraient donc à l'origine de l'hystérésis de rotation, tandis que les autres seraient à l'origine de l'anisotropie unidirectionnelle.

3° - Théorie phénoménologique

Considérons un grain fin ferromagnétique sphérique recouvert d'une couche antiferromagnétique . Supposons que le grain ferromagnétique possède une anisotropie uniaxiale et que l'antiferromagnétique soit aussi uniaxial à axe confondu avec le ferromagnétique. Supposons de plus que chaque région soit monodomaine, et qu'il existe une interaction d'échange ferromagnétique - antiferromagnétique à l'interface.

L'énergie totale du système comprend les termes suivants :

- Energie d'anisotropie uniaxiale du ferromagnétique
- Energie d'anisotropie uniaxiale de l'antiferromagnétique
- Energie de couplage ferromagnétique-antiferromagnétique
- Energie de couplage du ferromagnétique avec le champ appliqué
- Energie de champ démagnétisant dans le ferromagnétique ; si le grain est sphérique, cette énergie est constante ; nous n'en tiendrons donc pas compte.

Plaçons nous dans un cas général où le champ appliqué H , l'aimantation ferromagnétique M_S et la direction des moments dans l'antiferromagnétique (représenté par AF) font les angles θ , ϕ et α avec l'axe d'anisotropie commun (figure 5).

Soient K_F et K_{AF} les constantes d'anisotropie ferromagnétique et antiferromagnétique, respectivement.

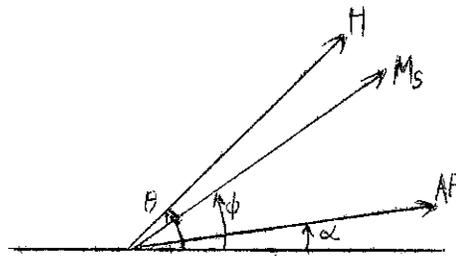


Figure 5 - Axe d'anisotropie

Définissons une constante d'interaction d'échange K_u . En tenant compte des résultats expérimentaux, on peut exprimer l'énergie de couplage par le terme :

$$E_c = - K_u \cos (\phi - \alpha)$$

cette expression introduit en effet l'angle entre l'aimantation ferromagnétique et la direction des moments antiferromagnétiques ; de plus, on constate qu'elle traduit bien un terme unidirectionnel puisqu'elle n'est minimum que pour $\phi - \alpha = 2k\pi$. Nous introduisons donc pour l'énergie du système l'expression suivante :

$$E = K_F \sin^2 \phi + K_{AF} \sin^2 \alpha - K_u \cos (\phi - \alpha) - M_S H \cos (\phi - \theta)$$

Cette expression permet de déduire un certain nombre de propriétés caractéristiques du système.

a) - Cycle d'hystérésis.

Dans le cas général où le champ appliqué fait un angle θ quelconque avec l'axe d'anisotropie, les angles ϕ et α à l'équilibre sont donnés par les équations :

$$\frac{\partial E}{\partial \phi} = 0 \qquad \frac{\partial E}{\partial \alpha} = 0$$

$$\text{SOIT} \quad \left\{ \begin{array}{l} K_F \sin 2\phi + K_u \sin (\phi - \alpha) + M_S H \sin (\phi - \theta) = 0 \\ K_{AF} \sin 2\alpha - K_u \sin (\phi - \alpha) = 0 \end{array} \right.$$

D'autre part, l'aimantation mesurée selon le champ appliqué est donnée par :

$$M = M_S \cos (\theta - \phi)$$

En tenant compte des conditions de stabilité : $\frac{\partial^2 E}{\partial \phi^2} > 0$ $\frac{\partial E}{\partial x^2} > 0$
 on pourrait calculer le cycle d'hystérésis à partir de ces trois équations.

- Cas particulier

Dans le cas des grains fins, nous pouvons supposer qu'à basse température, les moments dans l'antiferromagnétique sont alignés avec l'axe d'anisotropie ; si l'anisotropie de l'antiferromagnétique est très grande, les champs appliqués ne pourront faire tourner ces moments ; par conséquent, l'angle α sera toujours nul.

Les équations précédentes se ramènent donc à :

$$E = K_F \sin^2 \phi - Ku \cos \phi - M_S H \cos (\phi - \theta)$$

$$\frac{\partial E}{\partial \phi} = K_F \sin 2\phi + Ku \sin \phi + M_S H \sin (\phi - \theta) = 0$$

Si le champ appliqué est parallèle à l'axe d'anisotropie, on obtient une expression très simple :

$$E = K_F \sin^2 \phi - (Ku + M_S H) \cos \phi$$

ou $E = K_F \sin^2 \phi - M_S \left(\frac{Ku}{M_S} + H \right) \cos \phi$

$$\frac{\partial E}{\partial \phi} = 2 K_F \sin \phi \cos \phi + M_S \left(\frac{Ku}{M_S} + H \right) \sin \phi = 0$$

Les solutions sont $\phi = 0$ ou π , stables respectivement pour

$$H + \frac{Ku}{M_S} > - \frac{2K_F}{M_S}$$

$$\text{et } H + \frac{Ku}{M_S} < + \frac{2K_F}{M_S}$$

Le cycle d'hystérésis (figure 6) est donc rectangulaire de même que dans le cas d'un grain fin ferromagnétique ; mais il est dissymétrique, les deux champs coercitifs étant :

$$H'_c = \frac{2K_F}{M_S} - \frac{Ku}{M_S}$$

$$H''_c = -\frac{2K_F}{M_S} - \frac{Ku}{M_S}$$

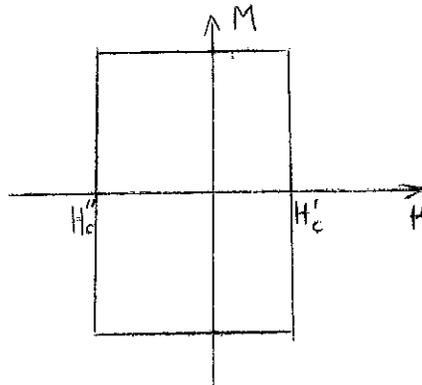


Figure 6.

Le déplacement du cycle est égal à $\frac{Ku}{M_S}$ qu'on peut définir comme le champ de couplage ferromagnétique-antiferromagnétique, H_e .

Cette propriété de dissymétrie du cycle d'hystérésis existe dans chaque grain. Grâce au champ appliqué pendant le refroidissement, le cycle d'hystérésis d'un ensemble de grains sera aussi déplacé.

b) - Couple magnétique.

La même expression générale de l'énergie permet de déduire la courbe du couple magnétique Γ'

On sait que $\Gamma' = - \frac{dE}{d\theta}$

$$E = K_F \sin^2\phi + K_{AF} \sin^2\alpha - Ku \cos(\phi - \alpha) - M_S H \cos(\phi - \theta)$$

$$\Gamma' = - \frac{dE}{d\theta} = - \frac{\partial E}{\partial \theta} - \frac{\partial E}{\partial \phi} \frac{\partial \phi}{\partial \theta} - \frac{\partial E}{\partial \alpha} \frac{\partial \alpha}{\partial \theta}$$

Or, à l'équilibre $\frac{\partial E}{\partial \phi} = 0$ $\frac{\partial E}{\partial \alpha} = 0$

$$\text{D'où} \quad \Gamma = - \frac{\partial E}{\partial \theta} = M_S H \sin (\phi - \theta)$$

$$\text{L'équation} \quad \frac{\partial E}{\partial \phi} = 0 \text{ nous donne :}$$

$$M_S H \sin (\phi - \theta) = - K_F \sin 2\phi - K_u \sin (\phi - \alpha)$$

$$\Gamma = - K_F \sin 2\phi - K_u \sin (\phi - \alpha)$$

Dans le cas particulier où l'anisotropie de l'antiferromagnétique est très grande, donc $\alpha = 0$, nous en déduisons :

$$\Gamma = - K_F \sin 2\phi - K_u \sin \phi$$

Supposons le champ de mesure très grand, si bien que ϕ tend vers θ . Il s'ensuit :

$$\Gamma = - K_F \sin 2\phi - K_u \sin \phi$$

Cette expression est valable pour un grain fin. Dans le cas du matériau de MEIKLEJOHN et BEAN⁽¹⁾, le couple mesuré est le couple moyen pour tous les grains. Si les axes d'anisotropie sont répartis au hasard, la moyenne du premier terme est nulle (ϕ variant entre 0 et π).

Le second terme est inexact ; si l'on tient compte des orientations cristallographiques oxyde-métal, on sait que les deux axes d'anisotropie ne sont généralement pas confondus. L'expression de Γ est donc plus compliquée ; il faudrait tenir compte dans le calcul de Γ du rôle du champ de refroidissement qui sélectionne certains angles possibles entre les axes d'anisotropie ; on peut admettre qu'on obtiendrait un terme en $\sin \phi$ non nul, dont l'amplitude dépendrait en particulier des angles possibles entre les axes.

Avec cet ensemble d'hypothèses, le déplacement du cycle d'hystérésis et la courbe du couple magnétique en $\sin \theta$ doivent apparaître simultanément, lorsque l'anisotropie de l'antiferromagnétique est très grande. De plus, ces résultats n'introduisent pas d'hystérésis de rotation.

Valeur de la constante d'échange

Les expressions données ci-dessus se rapportent à une unité de volume du ferromagnétique, en particulier la constante unidirectionnelle K_u . Il est beaucoup plus judicieux d'exprimer le couplage d'échange pour une unité de surface commune ; soit A le coefficient de couplage par unité de surface. Admettons que l'amplitude de la courbe expérimentale nous donne K_u . Dans le cas d'un grain, la relation entre K_u et A est donnée par :

$$K_u = \frac{3A}{r}$$

si la région ferromagnétique est sphérique de rayon r (1)

$$\begin{aligned} K_u &\simeq 4 \cdot 10^6 \text{ ergs/cm}^3 & A &\sim 1 \text{ erg/cm}^2 \\ r &\simeq 100 \text{ \AA} \end{aligned}$$

Cette valeur n'est qu'une approximation valable pour l'interaction d'échange Co - CoO à 77°K. En fait, si l'on suppose que certains grains ne sont pas oxydés ou que l'interaction d'échange n'a pas lieu sur toute l'interface, on en déduit que la constante d'échange A doit être supérieure à la valeur ci-dessus.

c) - Hystérésis de rotation

Une méthode générale consisterait à calculer les courbes du couple magnétique en se plaçant dans le cas où ψ tend vers θ , pour différentes valeurs des constantes, en particulier de la constante d'anisotropie antiferromagnétique K_{AF} .

Ce calcul fait intervenir les relations suivantes :

$$\Gamma = - \frac{\partial E}{\partial \theta} \quad \frac{\partial E}{\partial \phi} = 0 \quad \frac{\partial E}{\partial \alpha} = 0 \quad \frac{\partial^2 E}{\partial \phi^2} > 0 \quad \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha^2} > 0$$

On peut prévoir que pour certaines valeurs des constantes la courbe $\Gamma(\theta)$ présenterait des discontinuités.

MEIKLEJOHN⁽⁸⁾ a calculé les courbes de ϕ et α en fonction de θ , pour différentes valeurs du champ appliqué. Il a négligé l'énergie d'anisotropie du ferromagnétique et a donc pris les relations suivantes :

$$E = K_{AF} \sin^2 \alpha - Ku \cos(\phi - \alpha) - M_S H \cos(\phi - \theta)$$

$$\frac{\partial E}{\partial \phi} = Ku \sin(\phi - \alpha) + M_S H \sin(\phi - \theta) = 0$$

$$\frac{\partial E}{\partial \alpha} = K_{AF} \sin 2\alpha - Ku \sin(\phi - \alpha) = 0$$

$$\sin 2\alpha + \frac{Ku}{K_{AF}} \sin(\phi - \alpha) = 0$$

$$\sin(\phi - \theta) + \frac{Ku}{M_S H} \sin(\phi - \alpha) = 0$$

Les courbes de ϕ et α en fonction de θ ont été calculées pour différentes valeurs des rapports $\frac{Ku}{K_{AF}}$ et $\frac{Ku}{M_S H}$

Pour certaines valeurs, les courbes obtenues étaient des courbes en S, trois valeurs de ϕ ou α pouvant donc correspondre à une seule valeur de θ ; en tenant compte des conditions de stabilité $\left(\frac{\partial^2 E}{\partial \phi^2} > 0, \frac{\partial^2 E}{\partial \alpha^2} > 0 \right)$, les valeurs de ϕ et α correspondant à l'équilibre présentaient des discontinuités pour certaines valeurs de θ (ϕ ou α sautant par exemple brusquement de la branche inférieure du S à la branche supérieure). On conçoit fort bien que de telles discontinuités traduisent

des mouvements brusques et irréversibles des moments ferromagnétiques ou antiferromagnétiques, qui sont à l'origine de l'hystérésis de rotation.

MEIKLEJOHN obtient le résultat donné ci-dessus dans le cas où le champ appliqué est supérieur au champ de couplage $H > \frac{Ku}{M_S}$ et pour une série donnée de valeurs du rapport $\frac{Ku}{K_{AF}}$, si $\frac{Ku}{K_{AF}}$ est compris entre 1 et 4 (Fig. 7). Les calculs montrent donc qu'il n'y a pas d'hystérésis de rotation si la constante d'échange est plus faible que la constante d'anisotropie antiferromagnétique ($\frac{Ku}{K_{AF}} < 1$). L'hystérésis de rotation apparaît pour $\frac{Ku}{K_{AF}} = 1$, elle est alors considérable ; elle décroît si $\frac{Ku}{K_{AF}}$ augmente et tend vers 0 pour $\frac{Ku}{K_{AF}} = 4$.

On distingue donc plusieurs cas possibles :

- L'anisotropie de l'antiferromagnétique est grande ($K_{AF} > Ku$). Quel que soit le champ appliqué, les moments dans l'antiferromagnétique restent dans la direction d'anisotropie. Les moments dans le ferromagnétique subissent le couplage d'échange avec l'antiferromagnétique. En particulier, il est plus facile d'aimanter l'échantillon dans un sens que dans l'autre. Il y a anisotropie unidirectionnelle mais pas d'hystérésis de rotation.

- L'anisotropie de l'antiferromagnétique est telle que $\frac{Ku}{K_{AF}}$ soit compris entre 1 et 4. Les moments dans l'antiferromagnétique et dans le ferromagnétique se réorientent de façon discontinue, en présence d'un champ extérieur. Il n'y a plus d'anisotropie unidirectionnelle, mais il y a hystérésis de rotation.

- Si $\frac{Ku}{K_{AF}}$ est supérieur à 4, aucun des deux phénomènes n'apparaît.

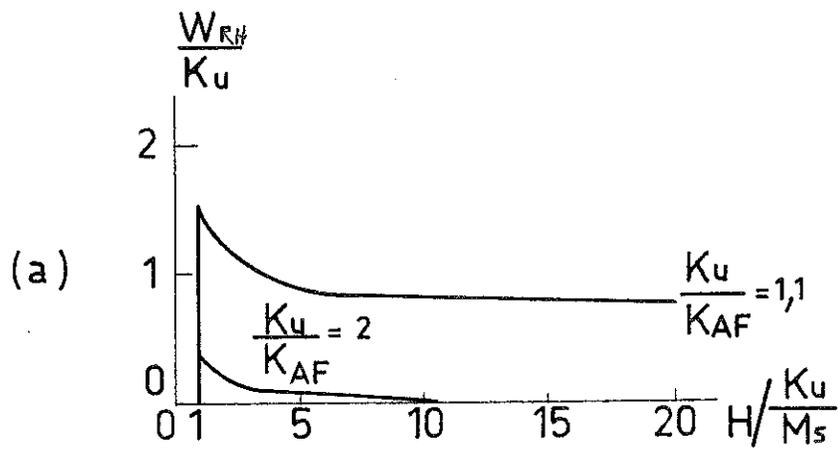
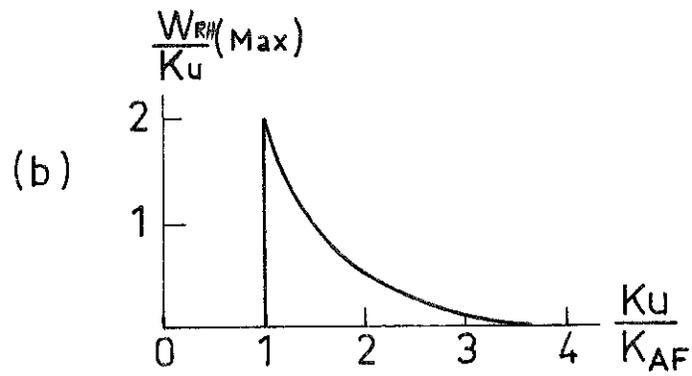


Fig7 Hystérésis de rotation W_{RH}
D'après W.H. Meiklejohn (8)

Cette théorie de l'hystérésis de rotation serait compatible avec le fait qu'on n'ait jamais pu mettre en évidence de dissymétrie du cycle d'hystérésis sur des grains fins de nickel oxydés. L'oxyde de nickel NiO a en effet une faible anisotropie magnétocristalline et le rapport $\frac{K_u}{K_{AF}}$ est toujours plus grand que 1. On ne sait cependant expliquer pourquoi la courbe du couple magnétique est unidirectionnelle.

En ce qui concerne les grains fins de cobalt oxydés, cette théorie n'éclaircit pas le problème ; en effet, il ne semble pas que l'anisotropie de CoO varie avec l'épaisseur de la couche d'oxyde. Les deux phénomènes, anisotropie unidirectionnelle et hystérésis de rotation existeraient donc simultanément dans les mêmes grains. L'origine de l'hystérésis de rotation serait plutôt dans la première interprétation (cf. A2°b)1)

Cependant, un certain nombre de travaux effectués sur des alliages désordonnés et divers autres matériaux confirment la théorie développée ci-dessus. Bien qu'elle contienne certaines approximations (par exemple les axes d'anisotropie des deux régions ferromagnétique et antiferromagnétique sont supposés parallèles), on peut la considérer comme une assez bonne approche du phénomène.

4° - Calcul du cycle d'hystérésis par les méthodes de micromagnétisme.

Signalons encore le calcul d'AHARONI, FREI et SHTRIKMANN (9) de la courbe d'aimantation d'une particule de cobalt en interaction d'échange avec l'oxyde antiferromagnétique. Le calcul suppose que les moments magnétiques dans l'oxyde ne sont pas affectés par le champ extérieur et que les spins du métal sont maintenus parallèles à ceux de l'oxyde au voisinage de l'interface ; l'échantillon est un cylindre de longueur infinie, l'interface métal-oxyde étant parallèle à l'axe du cylindre, ou une plaque infinie.

L'anisotropie cristalline du cobalt a été négligée dans les deux cas. Les courbes calculées correspondent assez mal aux courbes expérimentales.

Les résultats obtenus en tenant compte de l'anisotropie magnéto-cristalline du cobalt sont encore plus éloignés des résultats expérimentaux.

Les auteurs pensent cependant qu'un calcul adapté à des grains sphériques et moyenné sur un grand nombre de grains interpréterait beaucoup mieux les résultats expérimentaux.

B - ALLIAGES DESORDONNES - RESULTATS DIVERS

1° - Alliages désordonnés

Les alliages désordonnés à base de manganèse NiMn^(10,11,12), CoMn⁽¹³⁾, CuMn, AgMn^(14,15) ont été étudiés par J.S. KOUVEL et ses collaborateurs. Ils ont tous des propriétés magnétiques similaires "anormales" à basse température. Au voisinage d'une certaine concentration en manganèse, les courbes d'aimantation en fonction du champ magnétique et de la température montrent qu'il y a coexistence de ferromagnétisme et d'antiferromagnétisme. Les cycles d'hystérésis mesurés à la température de l'hélium liquide après refroidissement en présence d'un fort champ magnétique sont déplacés sur l'axe H (fig. 8). Les courbes du couple magnétique ont une forte composante en $\sin \theta$ (Fig.9). Ces alliages présentent donc à basse température une anisotropie unidirectionnelle. Les mesures en fonction de la température ont montré que l'anisotropie unidirectionnelle disparaissait pour des températures plus élevées et qu'apparaissait alors une hystérésis de rotation. (Fig. 10).

Signalons que l'aimantation à saturation de l'échantillon à basse température dépendait de la valeur du champ appliqué pendant le refroidissement, ce qui n'était pas le cas des grains fins.

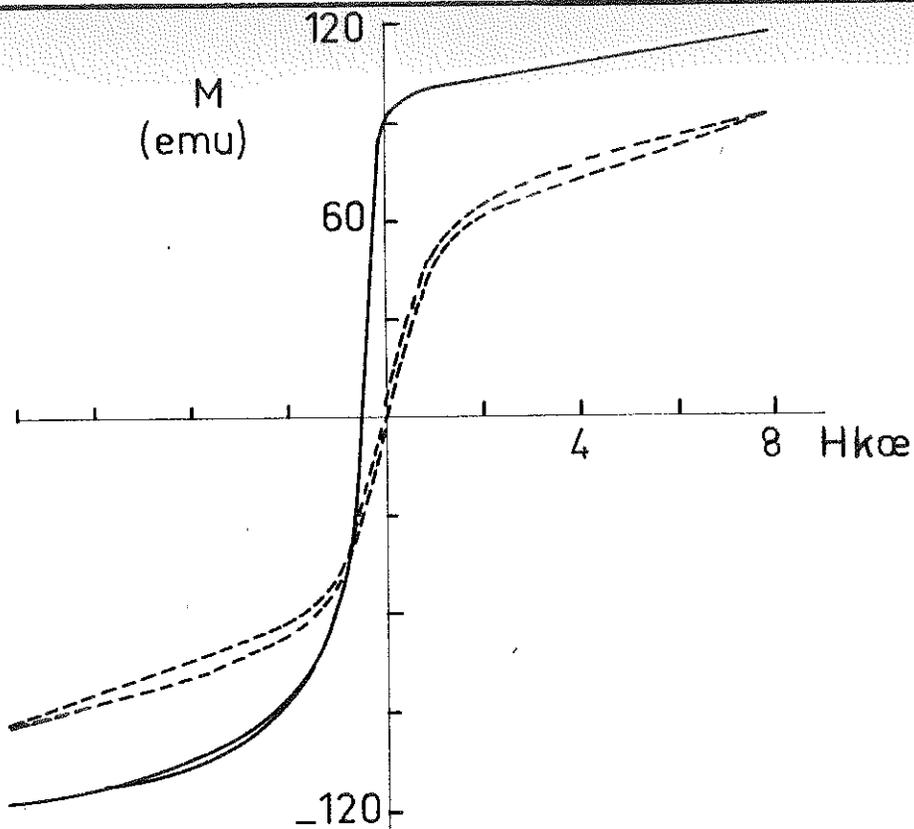


Fig 8 : Cycle d'hystérésis a 4,2° K
 — Champ de refroidissement 5000 Oe
 --- " " nul

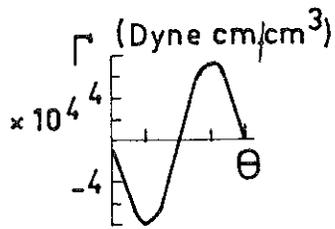


Fig 9 : Couple magnétique
 4,2°K

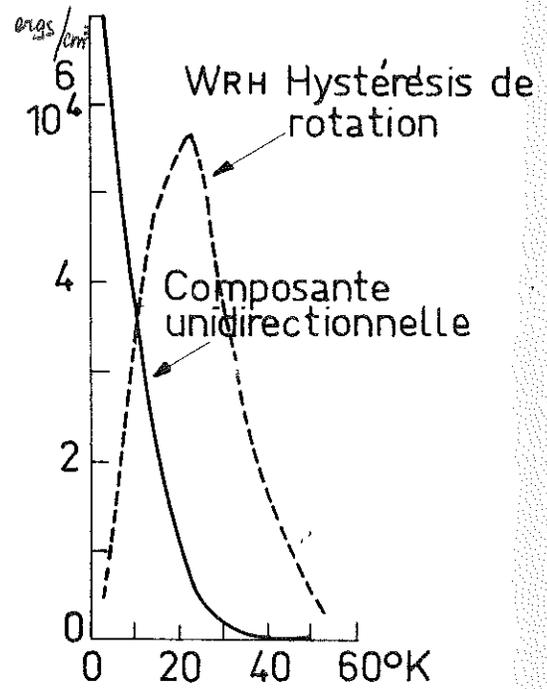


Fig 10

— Composante du couple en $\sin \theta$
 --- Hystérésis de rotation

D'après JS Kouvel (12) Ni Mn 26,5% at Mn

On peut interpréter l'ensemble des résultats obtenus sur les alliages à base de manganèse en supposant qu'il existe de petites régions ferromagnétiques en contact d'échange avec de petites régions antiferromagnétiques. Il peut exister des variations locales de concentrations des différents constituants ; or les interactions magnétiques dépendent en particulier de la nature des atomes en présence.

Dans le cas particulier des alliages Cu-Mn et Ag-Mn, par exemple, les interactions entre atomes de manganèse proche-voisins sont vraisemblablement antiferromagnétiques tandis que celles entre les atomes de manganèse voisins du second ordre ou plus seraient ferromagnétiques.

Des résultats analogues ont été obtenus sur les alliages désordonnés $\text{FeAl}^{(16)}$, $(\text{NiFe})_3\text{Mn}^{(17)}$. Les composés $(\text{MnSb} - \text{CrSb})$ de la forme $\text{Mn} (1 - x)\text{Cr}_x\text{Sb}^{(18)}$ donnent une forte hystérésis de rotation entre 80 et 300°K mais jamais d'anisotropie unidirectionnelle.

2° - Résultats divers - Généralisation.

Un certain nombre d'autres matériaux présente des propriétés magnétiques analogues. Citons $\text{FeO}^{(19)}$, LaMnO_3 non stoechiométrique (8) , $\text{Fe FeS}^{(20)}$, CrO_2 , $\text{Cr}_2\text{O}_3^{(8)}$.

Il est possible que des couplages entre antiferromagnétiques et ferrimagnétiques, entre ferrimagnétiques et ferromagnétiques puissent aussi être à l'origine de propriétés similaires.

Certains auteurs pensent pouvoir interpréter l'existence de cycles déplacés sur l'axe des aimantations par un couplage d'échange du même type.

Certaines particules ou régions ferromagnétiques (ou ferrimagnétiques) seraient couplées si fortement aux régions antiferromagnétiques (ou ferrimagnétiques) qu'on ne pourrait réorienter les spins avec les champs de mesure. Ce serait le cas du vanadate de cobalt (21) ,

de UMn_2 (22), αFe_2O_3 (23), $LaFeO_3$ (24).

L'aimantation thermorémanente inversée de certaines roches (solution solide d'illménite-hématite)⁽²⁵⁾ s'expliquerait par l'existence de divers couplages ferromagnétiques-antiferromagnétiques, ferrimagnétiques-antiferromagnétiques. Un couplage ferrimagnétique-antiferromagnétique serait à l'origine de l'effet de mémoire d'une ferrite chromite de nickel⁽²⁶⁾

Le rôle de l'anisotropie d'échange n'est pas encore bien établi dans les derniers exemples cités.

Mais les résultats obtenus sur les alliages à base de manganèse sont extrêmement intéressants. Ils semblent assez bien confirmer la théorie de MEIKLEJOHN, en particulier l'hypothèse de rotation discontinue des spins à l'origine de l'hystérésis de rotation. Il est en effet clair, dans ce cas, que l'hystérésis de rotation ne se manifeste pas en même temps que l'anisotropie unidirectionnelle. On peut supposer que les constantes d'échange et d'anisotropie unidirectionnelle varient avec la température de telle sorte que le rapport $\frac{K_u}{K_{AF}}$ soit d'abord inférieur à 1 aux basses températures, puis de l'ordre de 1 à la température pour laquelle disparaît l'anisotropie unidirectionnelle et apparaît l'hystérésis de rotation.

J.S. KOUVEL⁽²⁷⁾ a développé récemment un modèle théorique destiné à interpréter plus précisément les propriétés des alliages à base de manganèse. Il est intéressant d'examiner ce modèle ; on peut en effet le considérer en un certain sens comme une généralisation de la théorie valable pour les grains fins.

3° - Modèle de KOUVEL

a) - Modèle qualitatif

Des mécanismes analogues sont à l'origine de l'anisotropie d'échange dans les grains fins et dans les alliages. Cependant, le rôle du champ de refroidissement serait assez différent dans les deux cas.

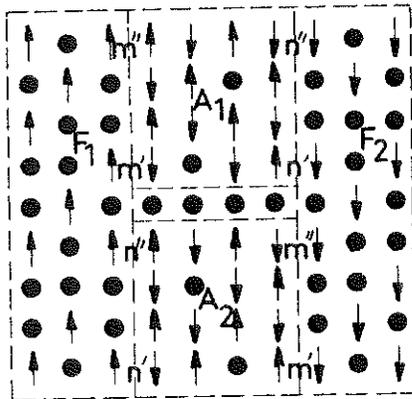
J.S. KOUVEL considère des couplages entre plusieurs domaines ferromagnétiques et antiferromagnétiques ; cette hypothèse est une extension du modèle de MEIKLEJOHN, indispensable pour interpréter les propriétés d'alliages.

Lors du refroidissement sous champ, les moments des domaines antiferromagnétiques se réarrangeraient en fonction de leurs interactions avec les moments des domaines ferromagnétiques tous alignés avec le champ. A basse température, l'antiferromagnétique aurait acquis une anisotropie telle que même en l'absence de champ, les moments de l'antiferromagnétique seraient maintenus dans la position acquise pendant le refroidissement en un état métastable. Les moments des domaines ferromagnétiques resteraient aussi dans la position acquise en présence du champ par suite de leur couplage d'échange avec les domaines antiferromagnétiques.

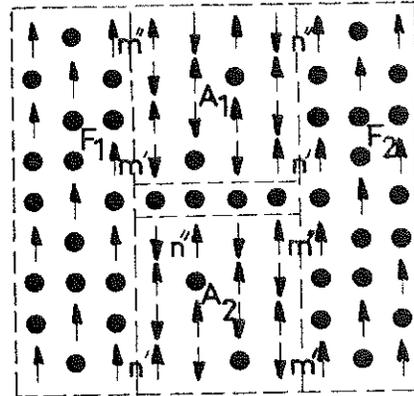
Il n'est donc pas nécessaire de refroidir l'échantillon à partir d'une température supérieure à la température de NEEL de l'oxyde. Il suffit que l'anisotropie de l'antiferromagnétique soit faible, à la température initiale et forte à la température de mesure.

b) - Modèle théorique

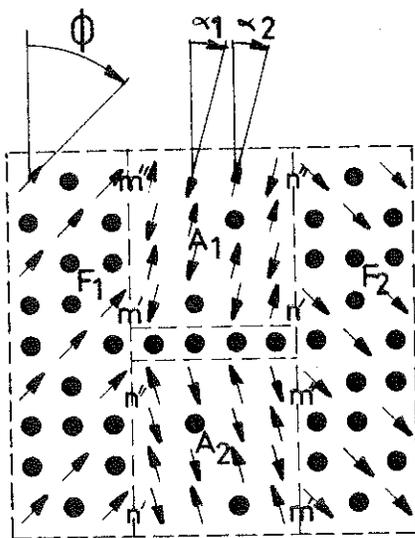
Considérons le système de domaines représenté par la figure 11a. Les moments magnétiques sont supposés parallèles à l'interface ; les couplages à l'interface peuvent être ferromagnétiques ou antiferromagnétiques ; m' , m'' , n' , n'' sont les nombres de paires respectant l'un ou



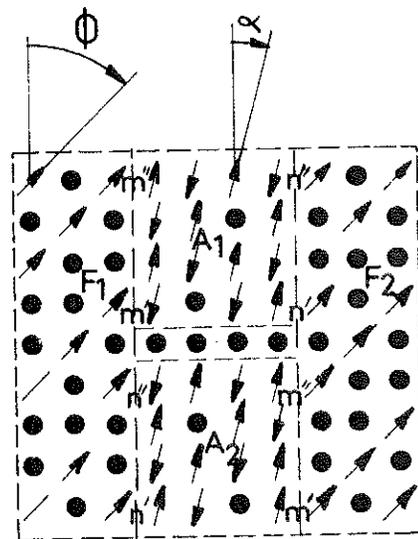
(a)



(c)



\vec{H}
(b)



\vec{H}
(d)

Fig.11

D'après J.S. Kouvel(27)

l'autre des deux types de couplages aux différentes interfaces. L'énergie du système est de la forme :

$$E = E_0 - 2\lambda_{FA} \mu_F \mu_A (\Delta m + \Delta n)$$

E_0 est l'énergie associée aux domaines, λ_{FA} est une constante de couplage relative à une paire de moments, μ_F et μ_A sont les moments magnétiques dans le ferromagnétique et dans l'antiferromagnétique,

$\Delta m = m' - m''$, $\Delta n = n' - n''$. Cette expression précise le couplage à l'échelle microscopique.

Si l'on applique un champ extérieur, les moments magnétiques tourneront (fig. 11 b). Pour un champ assez fort, l'état du système sera représenté par la figure 11 c. La nouvelle énergie sera alors :

$$E = E_0 - 2\lambda_{FA} \mu_F \mu_A (\Delta m - \Delta n) - H_{\text{eff}} M_F$$

H_{eff} étant le champ interne appliqué au ferromagnétique.

Si l'on refroidit l'échantillon à une température où l'anisotropie de l'antiferromagnétique est grande, le système restera dans l'état représenté par la figure 11 c, même en l'absence de champ extérieur. L'énergie du système sera de la forme

$$E = E_0 - a H_{FA} M_F \quad \text{avec} \quad a = \frac{\Delta m - \Delta n}{\Delta m + \Delta n}$$

H_{FA} étant une constante caractéristique du système. a caractérise l'intensité du couplage ferromagnétique-antiferromagnétique ; on conçoit qu'il varie selon les régions de l'échantillon. Il sera toujours compris entre 0 et 1 si l'on suppose Δm supérieur à Δn .

Supposons que l'on applique à basse température un champ extérieur assez fort pour faire tourner les moments ferromagnétiques et antiferromagnétiques. Le nouvel état du système est représenté par la figure 11 d.

L'énergie est donnée par :

$$E = E_0 - a H_{FA} M_S \cos(\phi - \alpha) - N_A K_{AF} \sin^2 \alpha - M_S H \cos(\theta - \phi) - \lambda_{MS}^2 M_S^2.$$

L'anisotropie du ferromagnétique a été négligée. K_{AF} est la constante d'anisotropie associée à un moment antiferromagnétique. N_A est le nombre de moments antiferromagnétiques. Le terme $\lambda_{MS}^2 M_S^2$ traduit une énergie de champ moléculaire ou de couplage entre domaines ferromagnétiques.

Cette expression est l'analogie de celle donnée pour un grain fin. Cependant, l'anisotropie du ferromagnétique a dû être négligée pour interpréter les propriétés caractéristiques des alliages.

J.S. KOUVEL a calculé à partir de cette expression les cycles d'hystérésis dans la direction du champ de refroidissement et les courbes du couple magnétique pour différentes valeurs des paramètres. Les résultats dépendent de la valeur du rapport $R = \frac{a H_{FA} M_S}{N_A K_{AF}}$ analogue au rapport $\frac{Ku}{K_{AF}}$ dans le cas d'un grain fin. Si ce rapport est inférieur à 1, les moments dans l'antiferromagnétique sont fixés dans la direction du champ de refroidissement, α est toujours nul. Le cycle d'hystérésis est à une seule branche et dissymétrique par rapport à l'axe des aimantations (figure 12 a). La courbe du couple magnétique est unidirectionnelle. Il y a anisotropie unidirectionnelle (figure 12 b).

Si ce rapport est supérieur ou égal à 1, les moments antiferromagnétiques peuvent prendre deux positions d'équilibre stables, $\alpha = 0$ et $\alpha = 180^\circ$. Le cycle d'hystérésis est alors symétrique (figures 12 b et 12 c). La courbe du couple magnétique présente des discontinuités et il y a des pertes d'énergie par hystérésis de rotation (figure 13 b). Pour $R = 2$, l'hystérésis de rotation disparaît et la courbe du couple magnétique est uniaxiale (figure 13 c).

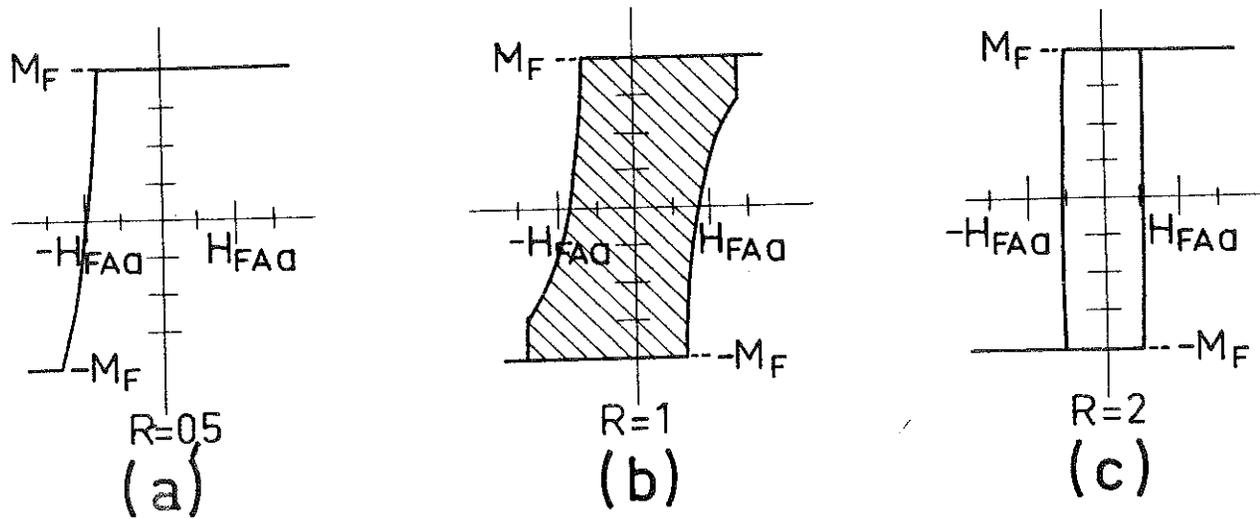


Fig12
Cycles d'hystérésis

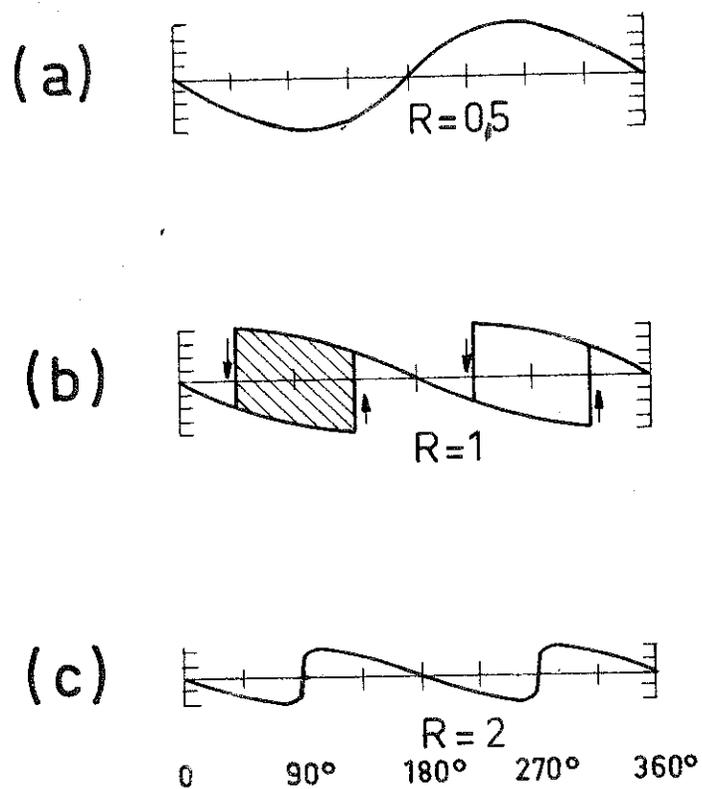


Fig 13
Couple magnétique

D'après J.S. Kouvel (27)

Ces résultats sont tout à fait semblables à ceux obtenus par MEIKLEJOHN pour un grain fin ; les calculs de MEIKLEJOHN correspondent au cas particulier $a = 1$.

Ajoutons que J.S. KOUVEL a introduit une fonction de distribution de a et a ainsi généralisé les résultats ci-dessus. Il a montré, en particulier que, quelle que soit la forme de la fonction de distribution, l'aimantation rémanente augmente avec le champ appliqué pendant le refroidissement, ce qui est en bon accord avec les résultats expérimentaux obtenus avec les alliages.

On peut donc considérer le modèle de KOUVEL comme un prolongement du modèle développé pour les grains fins. Le rôle du champ de refroidissement est cependant interprété de façon assez différente. Il est vraisemblable que cette interprétation soit valable toutes les fois qu'il existe pour la constante d'anisotropie antiferromagnétique une température de transition inférieure à la température de NEEL.

C - FILMS MINCES

1° - Divers résultats expérimentaux

Les connaissances actuelles concernant les couplages ferromagnétiques-antiferromagnétiques s'appuient essentiellement sur les études faites sur les grains fins et les alliages. Il est bien établi qu'il s'agit d'un phénomène d'interface, soit entre deux matériaux différents comme dans le cas des grains fins, soit entre domaines de natures différentes comme dans les alliages. Il serait donc intéressant de pouvoir étudier ces propriétés dans un milieu où les phénomènes d'interface auraient une importance relative plus grande ; c'est le cas des films minces ; si la surface de couplage était la face du film, le rapport surface-volume en particulier serait

très grand ; d'autre part les conditions de couplage seraient beaucoup mieux définies que dans d'autres milieux.

On a déjà essayé d'interpréter un certain nombre de propriétés magnétiques des couches minces en faisant appel à une anisotropie d'échange ; quelques travaux ont été entrepris à ce sujet.

a) - Résonance d'ondes de spins sur des films minces de permalloy.

On peut mettre en évidence les ondes de spins dans le cas de films minces de permalloy, le champ statique étant appliqué perpendiculairement au plan de la couche. On observe des ondes de spins stationnaires.

Les modes impairs apparaissent avec de fortes résonances tandis que les modes pairs sont presque complètement absents.

Une première interprétation attribuait ce phénomène à l'existence d'une anisotropie de surface ⁽²⁸⁾.

Des expériences ultérieures ont montré que par réduction des films, on peut faire réapparaître les modes pairs. On pouvait donc en conclure que l'oxyde était à l'origine du phénomène. Une deuxième interprétation suppose les spins fixés d'une part sur le support, d'autre part à la surface ; une couche d'oxyde antiferromagnétique en couplage d'échange avec le ferromagnétique maintiendrait les spins fixés à la surface ⁽²⁹⁾. Il pourrait aussi exister sur le support une couche d'oxyde provenant de l'oxygène adsorbé par le support. Les spins seraient fixés sur les deux faces d'une manière statique.

D'autres expériences ont montré que si le champ statique fait un angle θ quelconque avec le plan du film, pour une certaine valeur de θ , on observe la résonance du mode de precession uniforme dans toute la couche.

Les auteurs en déduisent que le phénomène ne provient pas d'un couplage d'échange, mais de l'existence d'une couche superficielle d'aimantation différente de celle du film. La fréquence de résonance du mode de précession uniforme dans le film serait différente de celle de la couche superficielle et on ne pourrait observer ce mode sauf pour un angle donné du champ statique avec le plan du film.

Cette couche superficielle réaliserait donc une fixation dynamique des spins permettant d'observer les ondes stationnaires. La variation du champ interne entre le film de permalloy et la couche superficielle serait seule à l'origine du phénomène. Des expériences analogues ont été faites sur des films de cobalt et de nickel.

On obtient les mêmes résultats pour les films de cobalt, on peut supposer que dans ce cas la couche superficielle provient d'un changement de structure du cobalt.

On observe des résonances d'ondes de spins sur des films de nickel à condition d'ajouter des impuretés (cuivre ou palladium).

L'origine de la résonance d'ondes de spins sur les films minces n'est donc pas très bien établie. L'existence de couplages ferromagnétiques-antiferromagnétiques est une interprétation possible.

b) - Influence de l'oxygène sur les propriétés magnétiques des films minces - Anisotropie réorientable.

Plusieurs chercheurs ont étudié les propriétés magnétiques dites "anormales" des films minces. Il semble bien que l'oxygène soit souvent à l'origine de ces propriétés.

b)1 - Anisotropie réorientable

Dans certains films, on peut faire tourner l'axe d'anisotropie à la température ambiante, en appliquant dans le plan de la couche un fort champ magnétique ; le nouvel axe a la direction du champ appliqué.

Cette propriété a été observée sur des films de permalloy évaporés sur des supports de verre ayant vraisemblablement adsorbé de fortes quantités d'oxygène ⁽³¹⁾ et sur des films de nickel évaporés sur supports de molybdène dans des conditions analogues ⁽³²⁾. L'anisotropie réorientable disparaîtrait à la température de NEEL de NiO (523° K). On peut donner deux interprétations possibles :

- Il y aurait une anisotropie d'échange entre le film et une couche superficielle de NiO antiferromagnétique. Le champ appliqué ferait tourner la direction des moments dans l'antiferromagnétique. Celle-ci déterminerait l'axe facile de la lame et sa rotation entraînerait une rotation de l'axe facile.

- Les régions contenant de l'oxyde de nickel créeraient des contraintes dans le film qui par magnétostriction seraient à l'origine d'une anisotropie uniaxiale. Les résultats obtenus sur des films de FeNi à magnétostriction négative semblent confirmer cette hypothèse ⁽³³⁾.

b)2 - Propriétés diverses.

Certains auteurs pensent que l'anisotropie uniaxiale des films de permalloy peut être créée par l'existence de régions riches en nickel et en oxyde de fer ⁽³⁴⁾. La couche de permalloy aurait une structure en colonnes ; l'oxygène adsorbé par le support diffuserait entre

les colonnes pour former de l'oxyde de fer et des régions riches en nickel. L'aimantation aurait tendance à être perpendiculaire aux couches d'oxyde donc aux colonnes et à s'orienter dans la direction du champ appliqué pendant l'évaporation. Ce mécanisme ferait plutôt intervenir des contraintes et non pas une anisotropie d'échange.

D'autre part, quelques études⁽³⁵⁾ ont été faites sur des films dont les caractéristiques magnétiques sont mauvaises (films à fort champ coercitif, films isotropes...). Il semble que l'origine de ces phénomènes soit dans l'existence de centres d'anisotropie créés par des régions riches en nickel ou des tensions locales dans le film. Il n'est pas établi que des couplages ferromagnétiques-antiferromagnétiques soient à l'origine des diverses propriétés décrites ci-dessus. Par contre, nous devons considérer les résultats obtenus sur des films de cobalt oxydés.

2° - Couplages ferromagnétiques - antiferromagnétiques

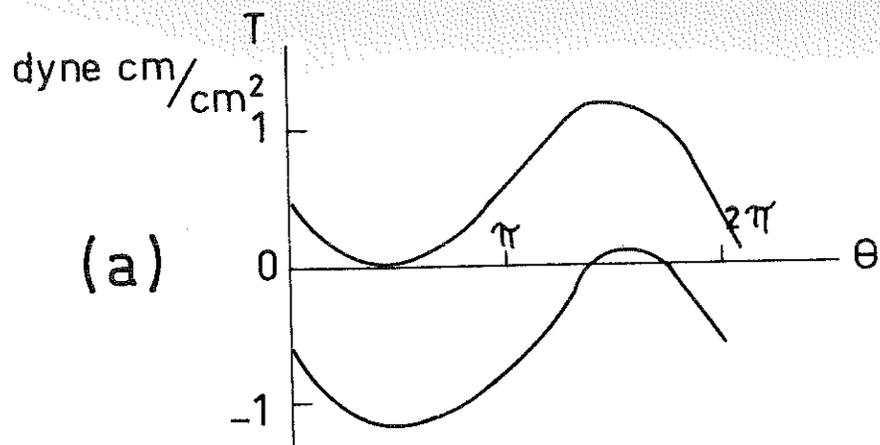
a) - Films de cobalt oxydés.

a)1 - Films polycristallins⁽⁶⁾

Les films de cobalt de 300 Å d'épaisseur ont été déposés sur support de quartz non chauffé, sans champ magnétique appliqué. Ils n'avaient pas d'anisotropie uniaxiale ou unidirectionnelle.

Ils ont été oxydés de façon à avoir une couche d'oxyde de l'ordre de quelques dizaines d'Ångströms.

Ils ont été étudiés après refroidissement sous un champ de 1 000 Oe à 77°K. La courbe du couple magnétique était unidirectionnelle, l'hystérésis de rotation était considérable (figure 14 a).



Couple magnétique

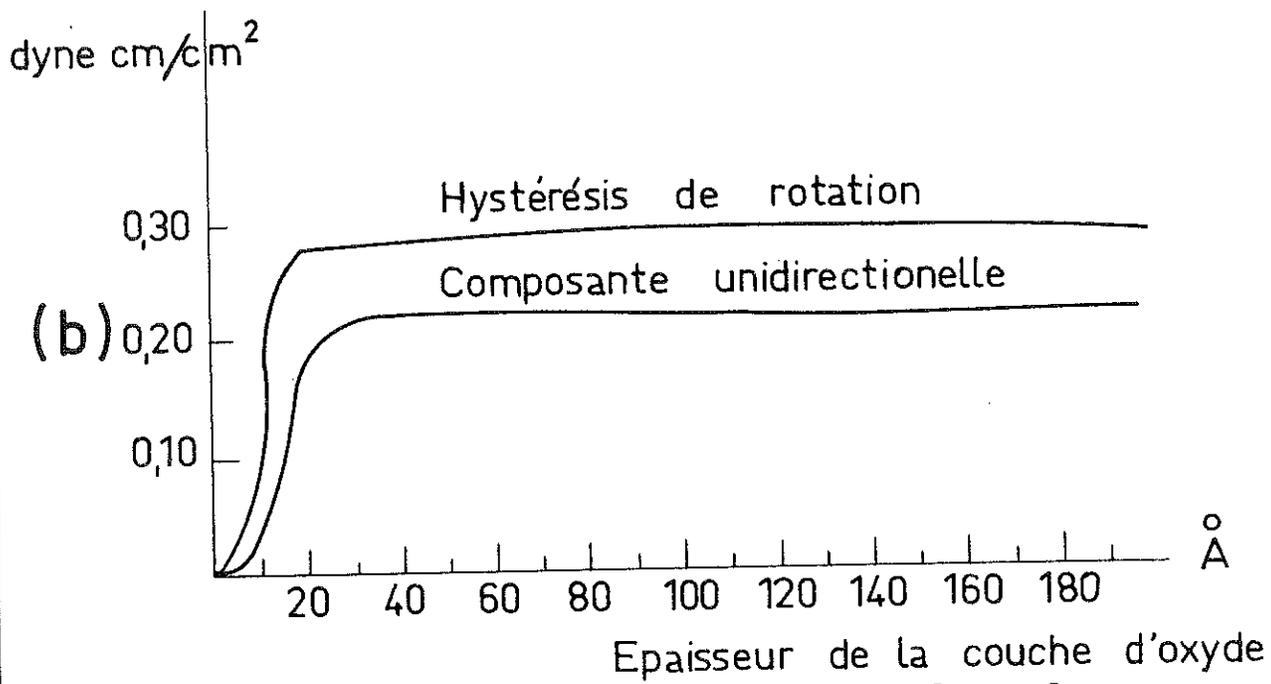


Fig 14 : Film mince (6) Co 300 Å CoO 20 Å ± 15 Å

Champ de refroidissement 1000 Oe

" " mesure 2000 Oe

77°K

D'autre part, la composante en $\sin \theta$ du couple et l'hystérésis de rotation atteignaient des valeurs limites dès que l'épaisseur de la couche d'oxyde dépassait environ 30 \AA (figure 14 b).

Ces résultats tendent à prouver que l'anisotropie de l'oxyde CoO est très grande, même si l'épaisseur est très faible et que par conséquent dans le cas des systèmes Co-CoO , l'hystérésis de rotation est liée à l'anisotropie unidirectionnelle.

D'autre part, ils confirment que le couplage ferromagnétique-antiferromagnétique est un phénomène de surface, puisque pratiquement indépendant de l'épaisseur du composé antiferromagnétique.

La valeur de la constante d'échange A obtenue dans ce cas est de $0,3 \text{ erg/cm}^2$ donc du même ordre de grandeur que celle prévue à partir des grains fins (1 erg/cm^2).

a)2 - Films monocristallins (8, p. 1333)

Des films épitaxiaux ont été déposés sur différentes faces d'un cristal chauffé de MgO , afin d'étudier l'influence de l'orientation du ferromagnétique sur les couplages.

Dans le cas où le plan du film était un plan (111) et où celui de l'oxyde était aussi un plan (111), on observait une anisotropie unidirectionnelle et une hystérésis de rotation après refroidissement sous champ.

Dans le cas où les plans des couches étaient des plans (100), on n'observait aucun des phénomènes. On peut supposer que le couplage n'apparaissait pas parce que le plan (100) est un plan de compensation parfaite des moments dans l'antiferromagnétique.

b) - Couplages ferromagnétiques-antiferromagnétiques sur des films minces uniaxiaux.

Il est possible de prévoir les effets de couplages ferromagnétiques - antiferromagnétiques sur des films minces uniaxiaux. Un film mince est un système tout à fait analogue à un grain fin, du point de vue magnétique.

b)1 - Processus de création de l'anisotropie unidirectionnelle.

Considérons un film mince ferromagnétique à anisotropie uniaxiale. Supposons qu'on réalise une couche superficielle antiferromagnétique sur le film initial. D'après ce qui précède, on pourra obtenir un film à anisotropie unidirectionnelle de plusieurs manières possibles.

- Si on sait former la couche antiferromagnétique à une température inférieure à la température de NEEL et à laquelle elle a une forte anisotropie, il est possible que l'antiferromagnétique s'oriente lors de sa formation.

Cette orientation sera réalisée par un champ magnétique appliqué pendant la formation de l'antiferromagnétique.

L'anisotropie unidirectionnelle apparaîtra alors sans traitement ultérieur.

- On peut aussi envisager d'obtenir cette orientation en refroidissant le système à partir d'une température supérieure à la température de NEEL, en présence d'un champ magnétique.

- Si l'antiferromagnétique est du type rencontré dans les alliages à base de manganèse, on peut avoir à le refroidir à partir d'une température où son anisotropie est faible (par exemple la température ordinaire) en présence d'un champ magnétique.

En ce qui concerne la valeur du champ à appliquer pendant la formation de l'antiferromagnétique ou au cours d'un traitement ultérieur, on peut envisager deux cas :

- Ce champ devra agir directement sur l'antiferromagnétique, par conséquent, il devra être fort.

- Si le couplage d'échange est très fort, il est possible qu'il suffise d'appliquer un champ susceptible de saturer le film ferromagnétique, donc assez faible. Celui-ci agira par interaction d'échange sur l'antiferromagnétique qui s'orientera alors suivant le champ appliqué.

b)2 - Conséquences

Considérons alors un système de deux couches, ferromagnétique, antiferromagnétique, à axes d'anisotropie confondus, en interaction d'échange. Supposons chacun des deux films monodomaine. L'énergie totale du système sera alors exprimée par la même expression que pour un grain fin oxydé. On pourra alors calculer les cycles d'hystérésis et courbes du couple magnétique de la même manière.

En particulier, on montrera l'existence d'une anisotropie unidirectionnelle si l'anisotropie de l'antiferromagnétique est grande. Le cycle d'hystérésis dans la direction facile sera déplacé d'une quantité

$H_e = \frac{K'u}{M_S}$ avec $K'u = \frac{A}{e}$, si A est la constante d'échange par unité de surface et e l'épaisseur du film ferromagnétique. Le couple magnétique sera donné par :

$$\Gamma = -K_F \sin 2\phi - K'u \sin\phi$$

Selon les ordres de grandeur des constantes K_F et $K'u$ on peut donc s'attendre à trouver soit un couple uniaxial, soit un couple unidirectionnel, soit un couple plus complexe si K_F et $K'u$ sont du même ordre de grandeur.

Dans le cas général où l'anisotropie de l'antiferromagnétique n'est pas très grande, on pourrait calculer ces mêmes courbes et montrer qu'il apparaît une hystérésis de rotation pour un certain rapport entre les constantes K_u , K_{AF} et K_F .

CONCLUSION

L'ensemble des résultats concernant les couplages ferromagnétiques-antiferromagnétiques est actuellement déjà assez considérable. Un certain nombre de points demandent cependant à être éclaircis. Il semble qu'une telle étude sur des films minces doit être assez fructueuse ; elle pourrait :

- 1) Eventuellement expliquer certains phénomènes spécifiquement liés aux films minces ferromagnétiques.
- 2) Et surtout donner des renseignements supplémentaires concernant l'anisotropie d'échange.

Les résultats obtenus sur des grains fins oxydés ont montré que des recherches faites sur les échanges entre des métaux ferromagnétiques et leurs oxydes antiferromagnétiques pouvaient être intéressantes. Nous avons donc décidé d'étudier essentiellement des films uniaxiaux de cobalt et de nickel oxydés.

Dans le cadre de ce programme de travail, nous avons dû entreprendre la construction de trois appareils :

- 1) Un groupe d'évaporation permettant de préparer les lames.
- 2) Un dispositif d'oxydation des films. Nous avons été amenés à oxyder les lames à haute température (150° à 350°C), sous basse pression d'oxygène (10^{-3} mm Hg). D'autre part, il semblait intéressant par exemple dans le cas de films de nickel de pouvoir appliquer un champ magnétique pendant la formation de l'oxyde. Nous avons donc réalisé un "four sous champ", qui doit nous permettre aussi de faire des recuits magnétiques.

3) Un appareil de mesure, soit un hystérésiscope permettant d'obtenir directement sur l'écran d'un oscillographe les cycles d'hystérésis des lames étudiées.

Des études sur les lames de cobalt exigent des mesures à basse température. Notre appareil doit donc nous permettre de refroidir les lames à la température de l'air liquide.

D'autre part, les travaux cités montrent l'importance du champ magnétique appliqué pendant le refroidissement. Bien que dans le cas de films uniaxiaux, nous ne sachions pas si cette condition est indispensable, nous avons réalisé le moyen d'appliquer pendant le refroidissement des échantillons un champ maximum d'environ 1 000 Oe.

Ces appareils sont décrits dans la partie qui suit.

C H A P I T R E II

GROUPE D'EVAPORATION

Les films minces sont préparés dans ce laboratoire par évaporation sous vide, sur support de verre chauffé, en présence d'un champ magnétique. Le métal est évaporé à partir d'un creuset réfractaire porté à haute température par induction haute fréquence dans un porte creuset en molybdène. Les épaisseurs déposées sont mesurées par la méthode du quartz piézoélectrique.

Nous devons donc distinguer au cours de la description de cet appareil les points suivants :

- le groupe de pompage
- l'enceinte à vide comprenant :
 - un inducteur
 - un creuset
 - un four et le porte-lame associé
 - des aimants destinés à créer le champ magnétique
 - un quartz piézoélectrique
- l'appareillage associé au groupe d'évaporation :
 - le mesureur d'épaisseur
 - l'alimentation et la mesure de température du four.

Nous avons entrepris la construction d'un appareil présentant les qualités suivantes :

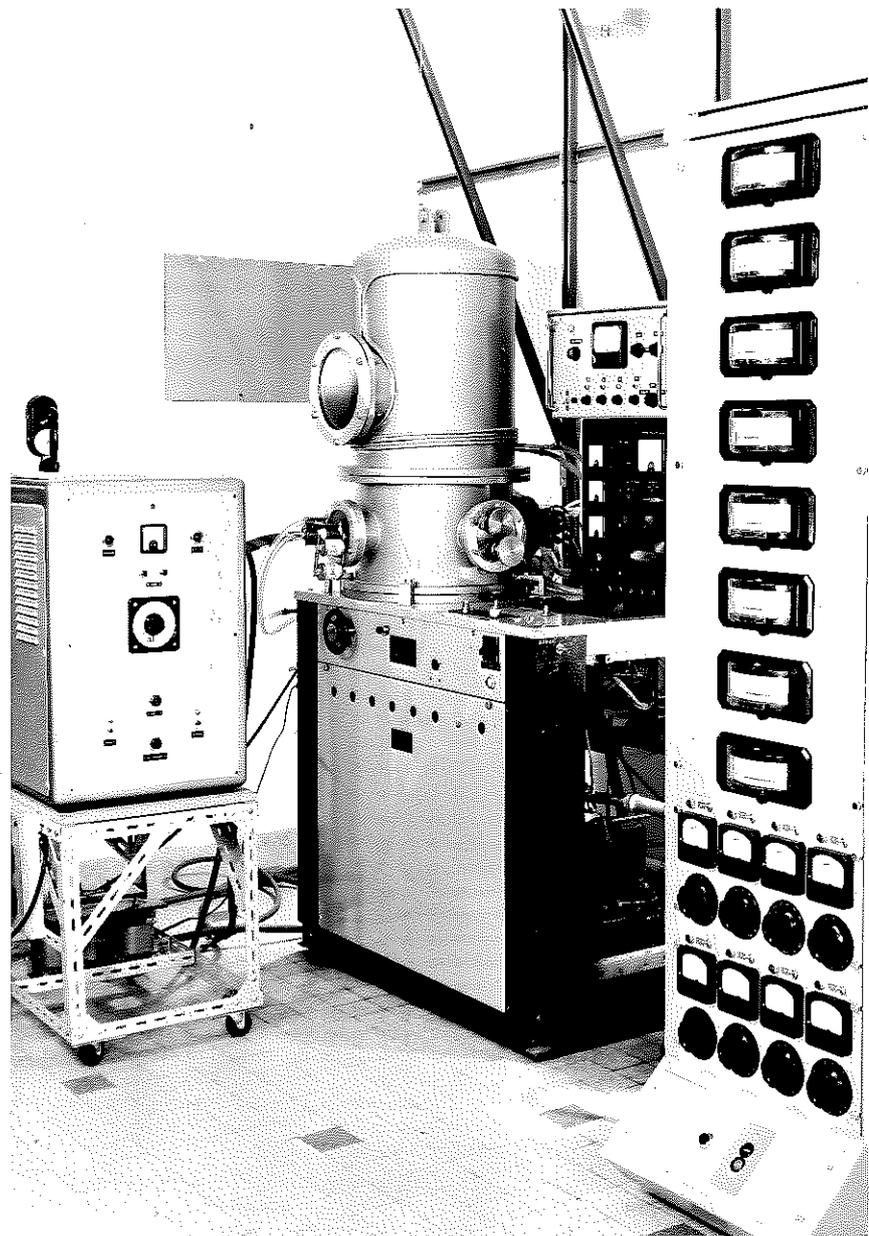


Fig 15

- Amélioration de la qualité du vide grâce à un système de piégeage perfectionné
- Possibilité de préparer un assez grand nombre de lames au cours de la même manipulation, tout en faisant varier certains paramètres
 - matériau déposé
 - température du support
 - épaisseur de la lame
 - vitesse d'évaporation
 - pression résiduelle

Nous pourrions donc étudier l'influence des différents paramètres d'évaporation sur les propriétés des films minces.

Les caractéristiques originales de ce groupe sont donc de contenir :

- huit fours à alimentation indépendante
- huit creusets
- quatre quartz piézoélectriques

Le nombre de quartz a été fixé à quatre, d'une part parce que l'on peut considérer que le quartz ne peut recevoir qu'un nombre d'évaporations limité à deux ou trois, d'autre part pour pouvoir éventuellement disposer de plusieurs sensibilités.

Nous décrirons successivement les différentes parties de l'appareil (Fig. 15)

A - Groupe de pompage :

Le groupe de pompage comprend :

- une pompe à palette antiretour à deux étages, à injection d'air de $30 \text{ m}^3/\text{h}$
- une pompe à diffusion à vapeur d'huile, à trois étages, à fractionnement de vapeur d'huile (vide limite $5 \cdot 10^{-7} \text{ mm Hg}$, vitesse de pompage 900 l/s)
- un piège "chevron" associé à un compresseur permettant un refroidissement au fréon

- une vanne écran surmontant le piège
- un piège à air liquide du type Meissner, constitué d'un serpentín de 7 spires de cuivre, placé dans l'enceinte à vide.

Le piègeage au fréon est assez efficace dans la mesure où l'huile utilisée pour la pompe à diffusion (Si 704) est une huile stable. Le piège Meissner améliore la qualité du vide et diminue notablement la pression résiduelle (de l'ordre d'une puissance de 10) en condensant tous les hydrocarbures.

La pression est contrôlée par :

- une jauge primaire thermique, du type Pirani, placée dans la canalisation à la sortie de la pompe à palettes, permettant de mesurer des pressions comprises entre la pression atmosphérique et 10^{-3} mm Hg.
- une jauge secondaire à ionisation, branchée dans la partie inférieure de l'enceinte à vide, mesurant des pressions comprises entre 10^{-3} et 10^{-7} mm Hg.

B. Enceinte :

L'enceinte est constituée d'un manchon fixe en acier inoxydable surmonté d'une cloche en même matériau, mobile verticalement grâce à un système de poulie et contre-poids. La cloche est munie d'un hublot de verre permettant de surveiller les évaporations ; le manchon comprend quatre hublots à 90° destinés aux passages des courants et des commandes mécaniques.

L'étanchéité est assurée par des joints toriques.

Pour des raisons de commodité, l'inducteur est fixe, tandis que les creusets, les fours, le cache des quartz sont mobiles. Toutes les pièces métalliques contenues dans la cloche sont en acier inoxydable.

Un ensemble de cinq colonnes, associées à des barres transversales, supporte les fours, les quartz, leur cache et les aimants. L'une

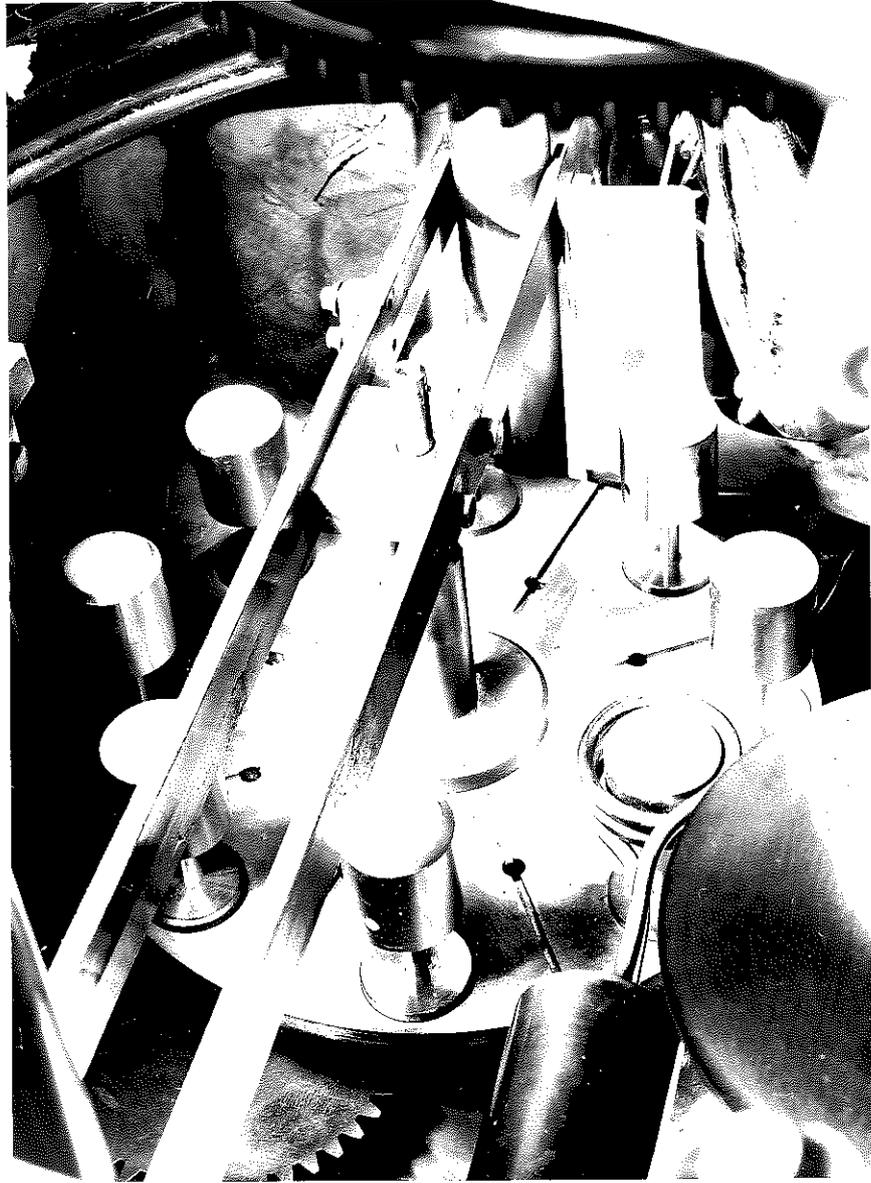


Fig 16

d'elles porte les différents engrenages du système.

1°) Inducteur :

L'inducteur est constitué d'un tube de **cui**vre formant trois spires autour du porte-creuset. Le diamètre des spires a été choisi aussi **faible que possible** de façon à avoir un couplage maximum entre l'inducteur et le porte-creuset, tout en permettant un centrage convenable de l'un dans l'autre.

2°) Creusets : (Fig. 16)

Les creusets sont en bérylline, de forme conique. Ils sont préférables aux creusets cylindriques car, d'une part pour une même surface d'évaporation, la surface en contact avec le creuset est plus faible, d'autre part les gouttelettes métalliques condensées dans la partie supérieure du creuset débordent moins fréquemment de celui-ci.

Ces creusets sont contenus dans des porte-creusets en molybdène de forme également conique, à angle d'ouverture légèrement plus faible, de manière à obtenir un chauffage plus homogène du métal. (Fig. 17)

Les huit porte-creusets sont fixés sur une pièce circulaire horizontale mobile autour de son axe, permettant d'amener chaque creuset sous l'inducteur. Un système de came permet de donner deux positions verticales à cette pièce, la position basse permettant la rotation, la position haute étant la position d'évaporation. On peut commander les deux mouvements des creusets de l'extérieur grâce à un système d'engrenages.

Un cache, constitué d'un plateau circulaire, peut être amené au-dessus du creuset. Il est commandé mécaniquement de l'extérieur de la cloche.

3°) Fours et porte-lames : (Fig. 18)

Une pièce octogonale verticale mobile autour de son axe supporte les fours. On commande le mouvement de cette pièce de l'extérieur par un système d'engrenages. Par suite de l'impossibilité de graisser les

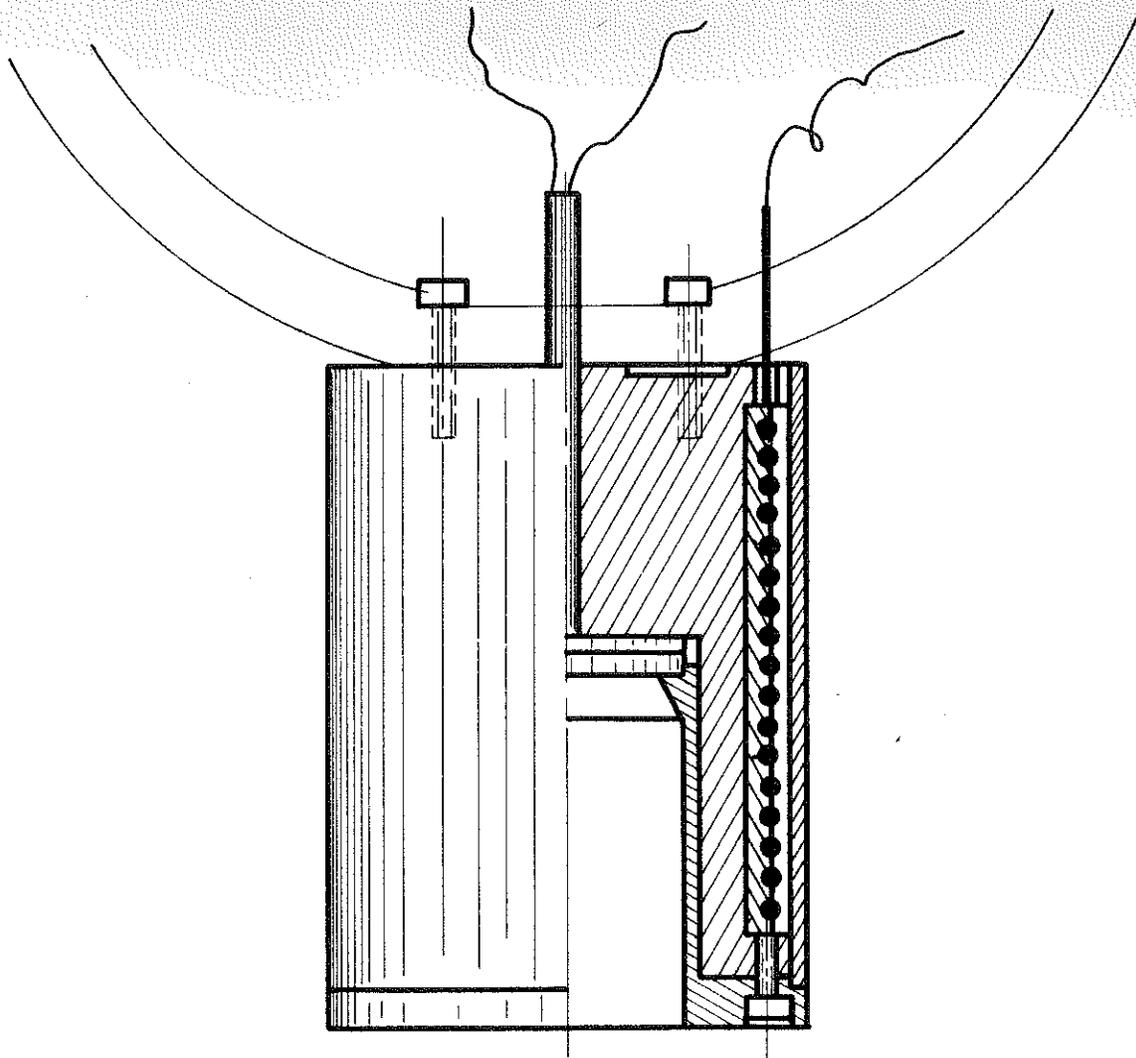


Fig 19 : Four

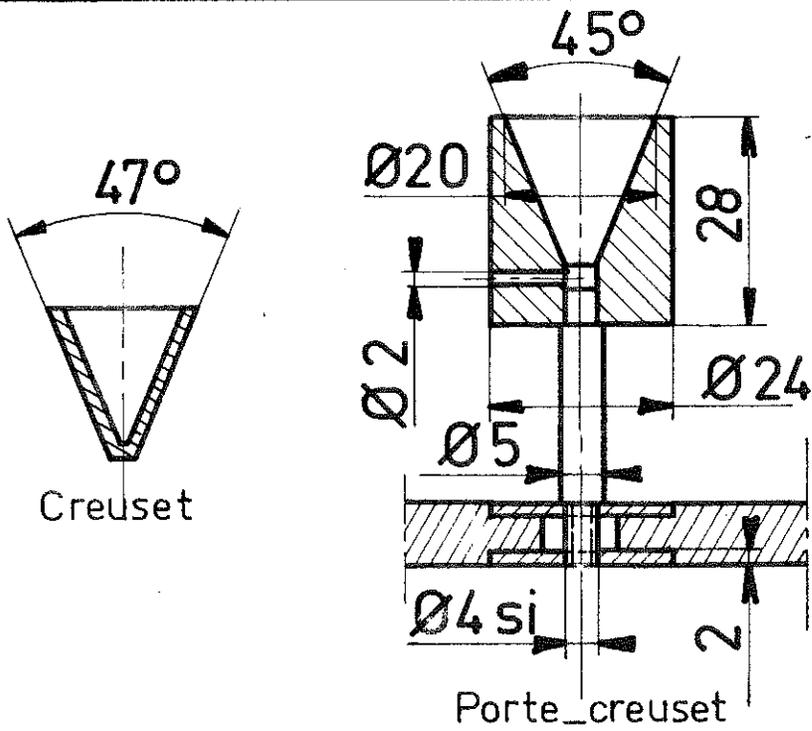


Fig 17

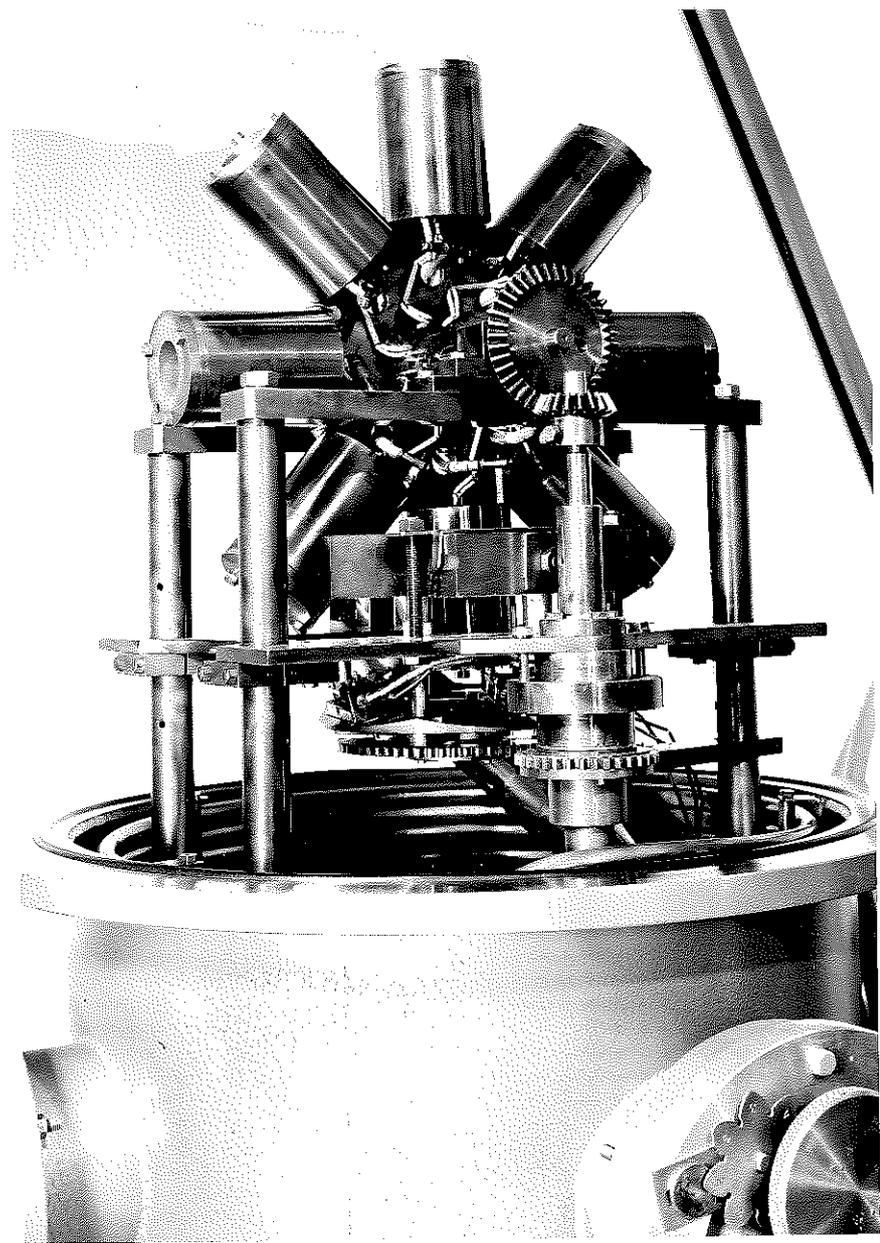


Fig 18

engrenages et les paliers, la rotation des fours à chaud a nécessité une mise au point délicate.

En position d'évaporation le four utilisé est placé verticalement au-dessus de l'inducteur. Le repérage du four se fait grâce à un numéro visible par le hublot. Chaque four doit nous permettre d'obtenir une température maximum de 400°C. L'élément chauffant est constitué de vingt spires de molybdène isolées par des barrettes en stéatite, bobinées sur un corps cylindrique, le tout étant dans une enveloppe de même forme. (Fig. 19)

Le support de lame repose sur un porte-lame qui s'emboîte dans le corps du four, de façon à ce que la lame soit placée dans sa partie centrale. (Fig. 20)

Les supports de lame sont des lamelles de verre circulaires (couvre-objets de microscope) de 18 mm de diamètre ; les lames évaporées ayant 16 mm de diamètre.

On a réalisé sur le support de lame trois échancrures auxquelles correspondent trois repères sur le dépôt, deux d'entre eux indiquant la direction du champ appliqué pendant l'évaporation, le troisième permettant de déceler sans ambiguïté le côté du dépôt. Les fours étant amenés à prendre des positions non verticales, on a dû prévoir un presse-lame, maintenu à l'aide d'un ressort en tungstène.

La température est mesurée au moyen d'un thermocouple Chromel-Alumel dont la soudure est placée le plus près possible du porte-lame.

4°) Aimants :

Les aimants sont placés au voisinage du four utilisé. Ils produisent un champ de 150 Oersted environ. Ils sont montés sur des colonnes s'appuyant sur le plateau des quartz, isolées thermiquement de celui-ci par des perles d'alumine.



Fig 20

Fig 21

5°) Quartz piézoélectriques : (Fig. 21)

Les quatre quartz fixes sont disposés symétriquement autour de l'axe d'évaporation ; on a dû prévoir un cache mobile percé d'une ouverture susceptible d'être amenée en face de l'un quelconque des quartz.

Les quartz sont fixés sur un plateau horizontal ayant la forme d'une couronne circulaire centrée sur l'axe d'évaporation, autour du four utilisé. Sa forme a été étudiée de façon à ce que chaque quartz devant recevoir un dépôt homogène, soit tangent à la sphère centrée sur le creuset.

Le cache est un plateau mobile autour de l'axe commun ; on peut le manoeuvrer par une poignée extérieure à la cloche grâce à un troisième système d'engrenages ; la poignée porte un compteur indiquant le numéro du quartz utilisé.

Chaque quartz de forme carrée est maintenu par un montage mécanique qui repose lui-même sur une plaquette métallique, le porte-quartz. Ces pièces ont été étudiées de façon à ce que le quartz soit aisément démontable.

Le montage mécanique comprend :

a) un support rectangulaire percé d'une ouverture circulaire devant laisser passer le jet métallique pendant l'évaporation. Sur l'un des bords de ce support est fixée une barrette en stéatite, à travers laquelle passent les connexions électriques du montage.

b) le quartz lui-même est placé entre deux plaquettes, les quatre coins de ces plaquettes sont relevés de façon à ce que le quartz, maintenu seulement dans ses angles, puisse osciller librement. La plaquette inférieure est à la masse et repose sur le support du montage. Elle comporte une ouverture circulaire pour le passage de la vapeur métallique. Une lamelle métallique est posée sur la plaquette supérieure. Elle est reliée électriquement à l'une des bornes de sortie du support, la deuxième borne étant à la masse. Un feuillet de mica sur cette lamelle l'isole électriquement du reste du montage.

c) L'ensemble décrit ci-dessus est maintenu sur son support au moyen d'un ressort sur lequel s'appuie une plaque métallique reliée au support par trois vis ; ce système permet ainsi un démontage aisé du quartz.

Les premiers essais de fonctionnement des quartz nous ont montré que les quartz oscillaient bien à froid, mais étaient très mal "accrochés" à chaud, c'est-à-dire lorsque les huit fours étaient portés à 300°. Nous avons donc dû isoler thermiquement les porte-quartz du reste du montage par des perles d'alumine, les transferts thermiques se faisant essentiellement par conduction.

6°) Connexions électriques :

Les fils de thermocouples, d'alimentation des fours et des quartz sont réunis dans une gaine en verre, entre la sortie des fours et quartz et la sortie de la cloche. Ils sont isolés par des perles d'alumine. Pour des raisons d'accessibilité ils sont reliés, à travers des perles d'alumine, à un premier plateau placé à l'entrée du hublot. De là, ils sont connectés aux passages de sortie constitués de perles de céramique montées sur un deuxième plateau assurant l'étanchéité. Un troisième plateau externe, muni de bornes, reçoit tous les passages et assure la rigidité de l'ensemble.

7°) Refroidissement :

En fonctionnement normal, soit quand les huit fours sont portés à 300°, il s'est avéré indispensable de refroidir l'appareil pour protéger, d'une part les joints toriques et le hublot en verre, d'autre part les soudures à l'étain des perles de céramique.

On a donc disposé sur la cloche un circuit de refroidissement à eau constitué par quelques spires de tube de cuivre.

D'autre part, on a interposé un écran en acier inoxydable poli entre les creusets et le premier plateau des connections électriques, de façon à les protéger du rayonnement du creuset.

Ces précautions s'étant révélées insuffisantes pour protéger les soudures à l'étain des perles, nous avons modifié le plateau portant les perles et l'avons muni d'un circuit annulaire de refroidissement par eau.

C Alimentations :

1°) Inducteur :

L'inducteur est alimenté par un générateur HF fonctionnant à 3 Mc susceptible de fournir une puissance maximum de 2 KW. Les connexions sont réalisées par deux bandes de cuivre de 8 cm de large. L'adaptation de la charge au générateur est obtenue par des condensateurs (6900 pF) ; la valeur choisie est légèrement différente de celle donnant l'accord parfait, de façon à avoir un chauffage moins rapide.

2°) Mesureur d'épaisseur : (Fig. 22))

Au quartz de mesure est associé un quartz de référence placé à l'extérieur de l'enceinte, la fréquence de battement des deux quartz variant proportionnellement à la masse de dépôt reçue par le quartz intérieur.

La fréquence des quartz est de l'ordre de 5 Mc ; la fréquence de battement de l'ordre de quelques Kc.

La mesure d'épaisseur se fait par lecture directe de la fréquence de battement sur le cadran 0.10 000 Hz d'un mesureur d'épaisseur à transistors construit au laboratoire. Cet appareil comprend :

- un oscillateur mélangeur donnant des impulsions à la fréquence de battement à partir des deux fréquences initiales,
- un système convertissant les variations de fréquence en variations de tension,
- un amplificateur différentiel,
- une alimentation stabilisée 10 V pour les transistors,
- un oscillateur 10 000 Hz destiné au calibrage de la pleine échelle.

Les réglages du zéro et de la pleine échelle se font à l'aide de deux potentiomètres. Un commutateur à quatre positions permet de passer d'un quartz à l'autre.

3°) Alimentation des fours :

Chaque four est alimenté séparément par l'intermédiaire d'un autotransformateur et d'un transformateur (220 V/9 V). L'élément chauffant a une résistance de l'ordre de $0,1 \Omega$ à chaud et est traversé en fonctionnement normal par un courant de l'ordre de 25 A.

Des ampèremètres sont disposés sur les circuits primaires.

4°) Mesure des températures :

Chacun des thermocouples Chromel-Alumel est relié directement à un pyromètre sans régulation de température.

En effet les thermocouples ne sont en équilibre thermique avec les fours qu'au bout d'un temps assez long. Il est donc préférable de ne pas détruire cet équilibre par une régulation. Lorsque l'équilibre thermique est réalisé, nous avons donc une assez bonne précision et une assez bonne stabilité en température.

Les huit pyromètres permettent de connaître simultanément les températures des huit fours.

CONCLUSION :

Pression :

- On obtient facilement une pression de 2.10^{-6} mm Hg sans piégeage à l'air liquide.

- Le piège Meissner permet d'obtenir une pression résiduelle de 3.10^{-7} mm Hg en quelques minutes.

- En maintenant le piégeage pendant les évaporations, nous pouvons préparer les lames sous une pression inférieure à 1.10^{-6} mm Hg.

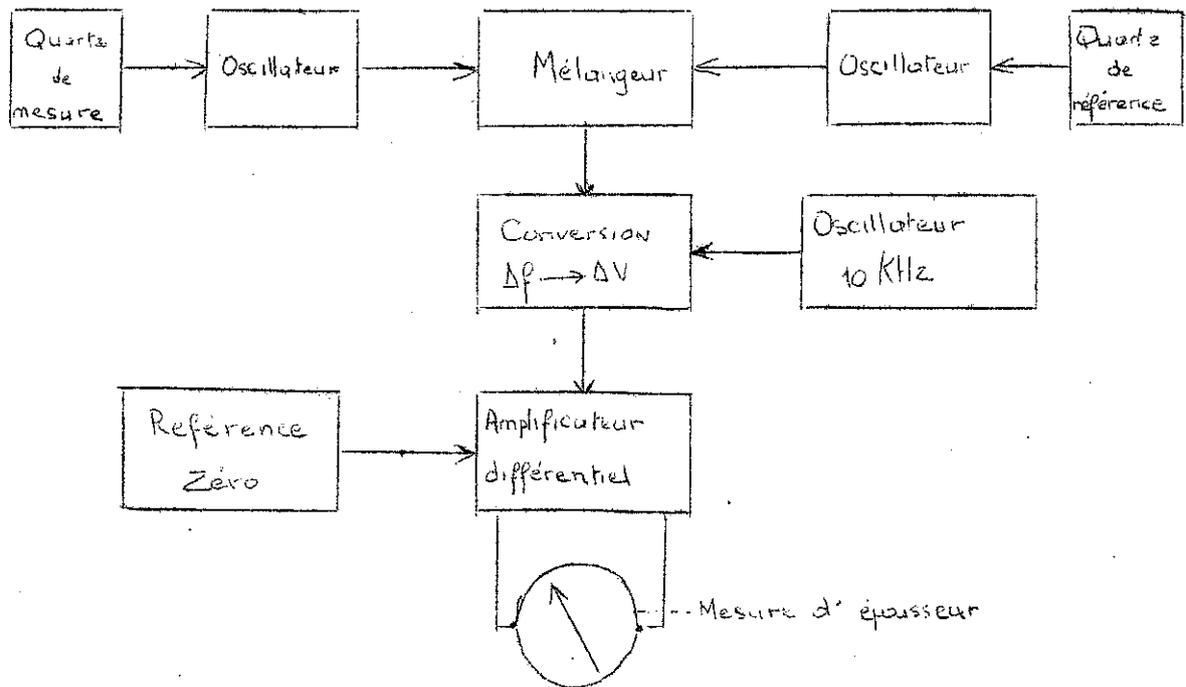


Fig. 22 Mesureur d'épaisseur Schéma synoptique

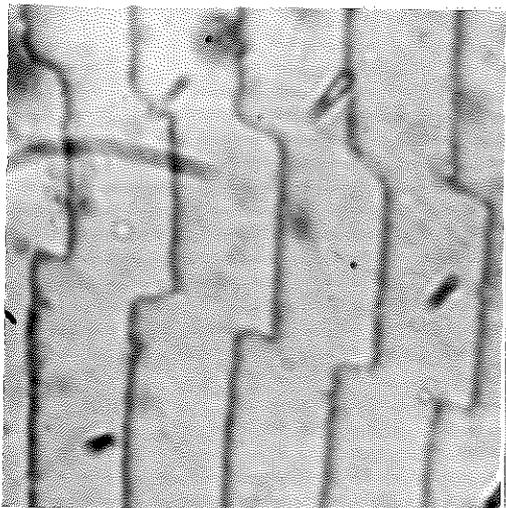


Fig. 24
Franges d'interférence obtenues par la méthode du coin d'air.

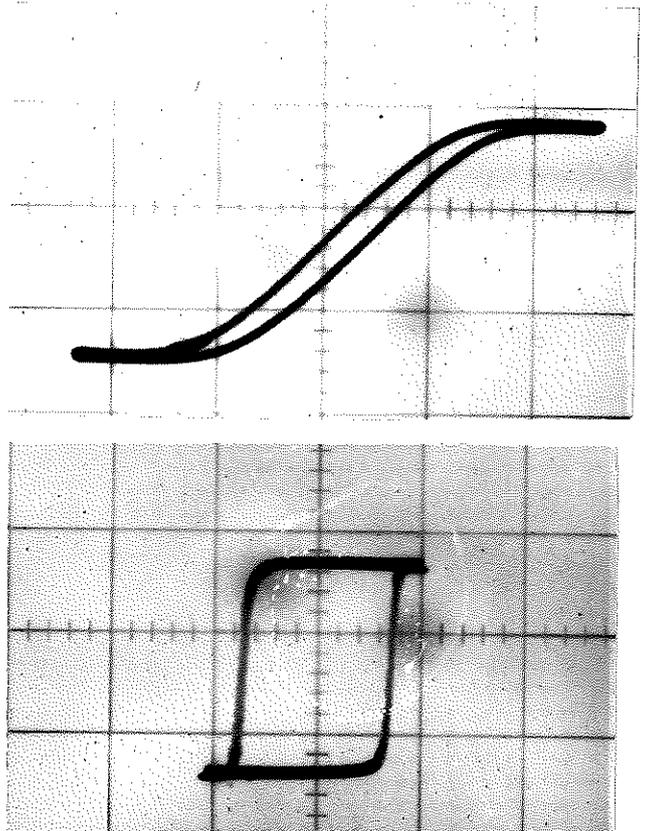


Fig. 25 Fe Ni $\lambda = 0,708 \text{ \AA}$
1 carreau = 2,5 \AA

Fours :

Les lames préparées couramment sont déposées sur support chauffé à 300°C.

Nous pouvons considérer que l'équilibre thermique à 300°C est obtenu en 3 h. pour un four chauffant seul et en 4 h. pour les huit fours simultanément. Ces temps ne sont pas gênants pour la commodité des manipulations. (Fig. 23)

Étalonnage des quartz :

Les quartz ont été étalonnés par mesure optique d'épaisseur par la méthode interférométrique des franges de Fizeau.

On réalise un dépôt d'argent semi-transparent sur une plaque de verre optiquement plane, un dépôt d'argent opaque sur la lame à mesurer (Fig.24a); les franges du coin d'air obtenues par réflexions multiples sur les deux surfaces en regard présentent un escalier correspondant à la marche provoquée par le dépôt à mesurer (Fig.24).

L'épaisseur du film est donnée par

$$e = \frac{\lambda}{2} \frac{D}{i}$$

i étant l'interfrange et
D le décalage des franges.

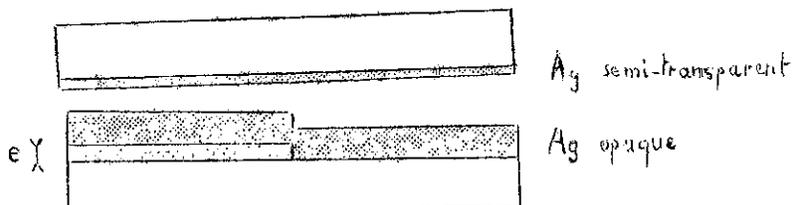


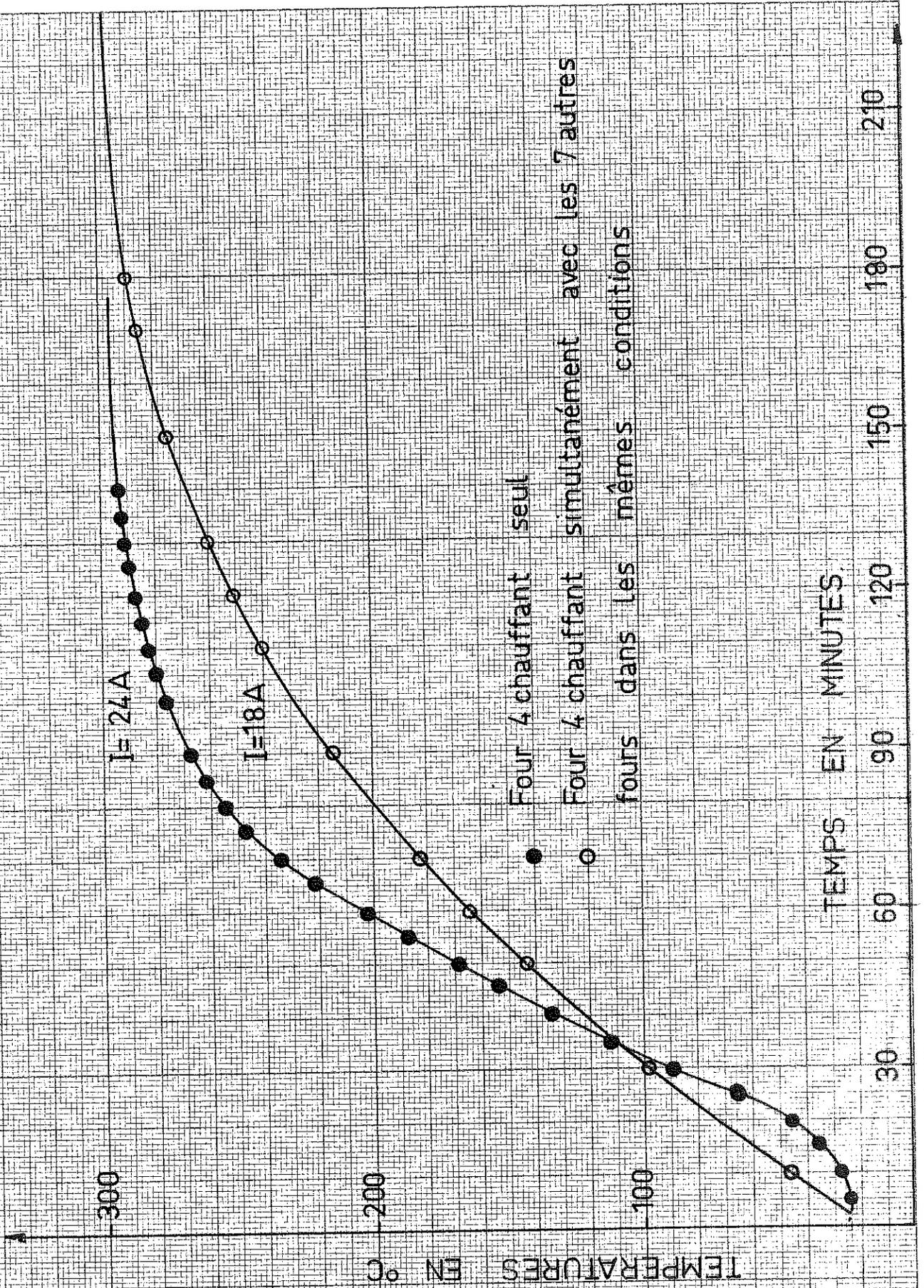
Figure 24a

Vitesse d'évaporation :

Par suite de la complexité du montage et du volume des pièces métalliques, il est nécessaire de fournir à l'inducteur une puissance considérable. Un générateur plus puissant que celui dont nous disposons actuellement ou une autre méthode de chauffage (bombardement électronique par exemple) nous permettrait d'augmenter la vitesse d'évaporation.

La mise au point de ce groupe a été faite en préparant des films de permalloy. Nous donnons les cycles d'hystérésis obtenus à l'hystérésiscope. Les propriétés magnétiques de ces lames sont satisfaisantes. (Fig.25).

Fig 23: Courbe de chauffage des fours



C H A P I T R E III

GROUPE D'OXYDATION ET DE RECUIT MAGNETIQUE

L'oxydation des lames imposait la construction d'un appareillage spécial. Nous avons envisagé deux procédés d'oxydation :

- oxydation à la température ambiante par un mélange d'oxygène et d'ozone.

- oxydation à chaud sous basse pression d'oxygène. L'oxydation à chaud présente l'inconvénient de modifier assez profondément la structure du film obtenu initialement ; or, nous comparons les propriétés magnétiques de la lame avant et après oxydation ; il serait donc préférable de ne pas modifier les paramètres liés à l'état de structure du film. Nous avons donc fait des essais d'oxydation par oxygène ozonisé.

Nous avons réalisé successivement deux montages d'oxydation par un mélange d'oxygène et d'ozone, le premier avec un ozoniseur à faible débit (1 à 3L/heure) et faible puissance (1 W), le deuxième avec un appareil à débit maximum de 15 L/mn et permettant d'obtenir des concentrations en ozone allant jusqu'à 8 %. Des lames de nickel uniaxiales ont été étudiées avec ces montages. Les résultats ont toujours été négatifs : les propriétés magnétiques des lames étaient inchangées et l'observation visuelle des lames ne nous a jamais permis de déceler un changement dans leur état de surface.

Précisons que certaines lames ont séjourné dans l'appareil en présence d'un champ magnétique continu (environ 700 Oe) orienté selon l'axe facile des lames.

Des essais ont été faits avec des lames de Cobalt et ont donné des résultats tout aussi négatifs quant à l'état de surface des films.

Nous avons alors décidé d'oxyder les lames à chaud sous basse-pression d'oxygène. D'autre part, il semblait intéressant de pouvoir appliquer pendant l'oxydation et le refroidissement des films, un champ continu assez fort. Le même appareillage pourrait d'ailleurs permettre de réaliser des recuits magnétiques.

A - Description Générale : (Fig.26)

L'appareil comprend :

- Un tube de quartz dans lequel on fait le vide et où l'on peut envoyer un faible courant d'oxygène. Ce tube contient le porte-lames.
- Un four cylindrique disposé autour du tube.
- Un solénoïde, lui-même disposé autour du four, destiné à produire un champ maximum d'environ 1000 Oe, tout en respectant la symétrie cylindrique du montage. L'ensemble est en position verticale.
- Le groupe de pompage.
- Un pyromètre régulateur.
- Les rhéostats permettant de régler le champ continu.

B - Enceinte : (Fig.27)

Elle est constituée d'un tube de quartz muni d'un rodage conique en son extrémité inférieure (vers le groupe de pompage) et d'un rodage plat en son extrémité supérieure ; ce dernier permet d'enfourner les lames ; le porte-lames est fixé à sa face supérieure. Une bride métallique le maintient serré.

Le porte-lames est une pièce en acier inoxydable prévue pour placer six lames (trois dos à dos) en position verticale ; quatre traits fins à 90° sur chaque support permettent d'aligner le champ continu avec la direction facile ou la direction difficile du film.

Une fuite calibrée que l'on peut relier à une bouteille d'oxygène permet de mettre l'enceinte sous basse-pression d'oxygène.

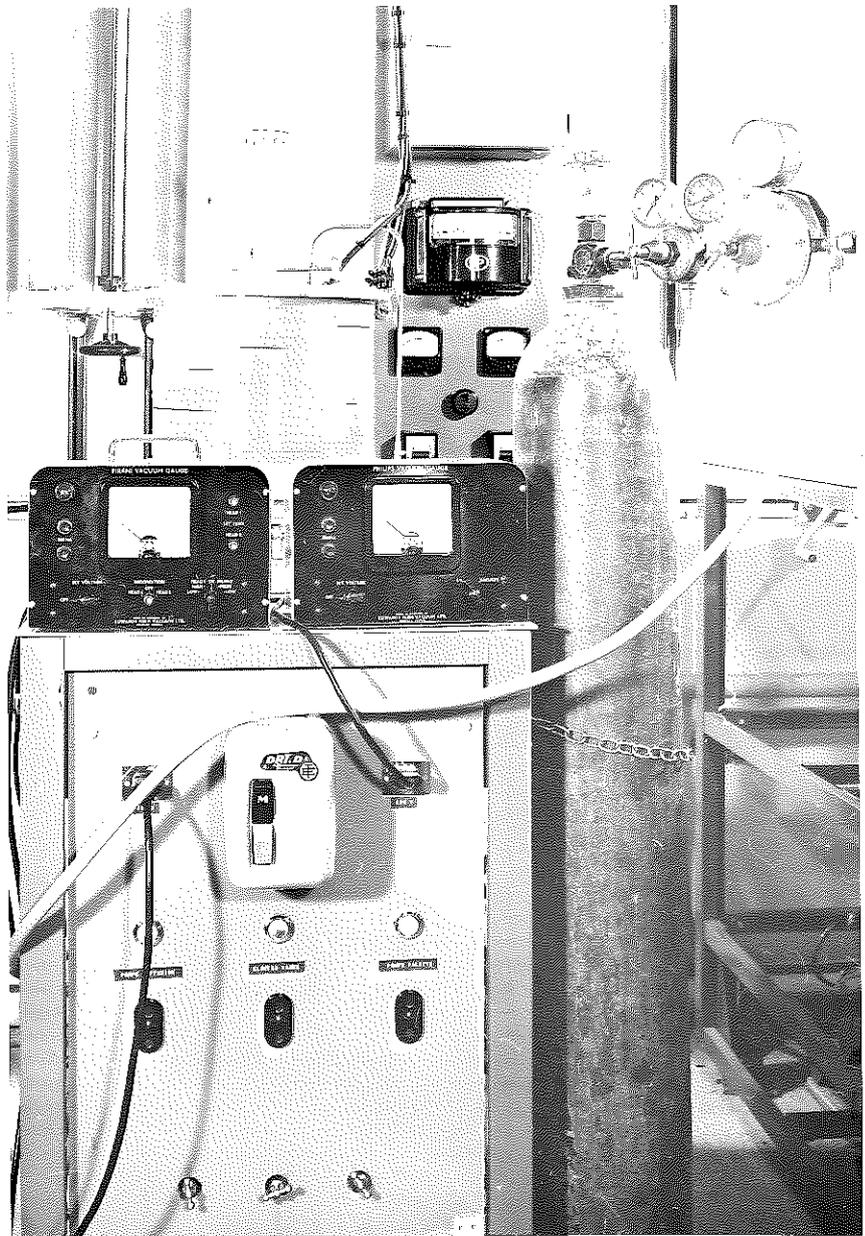


Fig 26

C- Groupe de pompage :

- 47 -

Il comprend :

- Une pompe à palettes à deux étages, d'un débit de 144 l/mn.
- Une vanne électromagnétique évitant les remontées d'huile dans la canalisation en cas de coupure de courant.
- Une pompe à diffusion à trois étages, (vide limite : $5 \cdot 10^{-7}$ mm Hg, vitesse de pompage : 30 à 40 l/s).
- Un piège à air liquide condensant les vapeurs d'huile avant l'enceinte.
- Une vanne papillon entre le piège et l'enceinte.

La pression est mesurée à l'aide :

- d'une jauge primaire thermique, du type Pirani.
- d'une jauge secondaire à ionisation à cathode froide, du type Philips, permettant de mesurer des pressions comprises entre 10^{-2} et 10^{-5} mm Hg.

D - Four et régulateur :

C'est un four commercial, d'une puissance de 975 W, prévu pour fonctionner sous 115 V ; on doit pouvoir obtenir une température maximum de 1000°C. Les lames que nous préparons actuellement étant déposées sur supports de verre, les oxydations ou recuits ne peuvent se faire qu'à des températures inférieures à 400°C.

Le four est alimenté en courant continu, de manière à éviter tout champ alternatif parasite ; le champ de 20 Oe créé par le bobinage du four est parallèle à celui du solénoïde, de même sens.

La régulation de température est réalisée à l'aide d'un thermocouple chromel-alumel relié à un pyromètre régulateur commercial à un index. Le thermocouple est placé hors de l'enceinte, au voisinage de la résistance du four. Le pyromètre commande un relais.

En remplaçant le porte-lames par un deuxième thermocouple chromel-alumel, nous avons comparé la température affichée sur le

pyromètre à la température réelle au centre du tube de quartz. Nous avons constaté que le chauffage était très rapide (10 minutes au plus). La température indiquée est à $\pm 10^\circ\text{C}$ la température réelle. Cette précision est actuellement suffisante pour nos mesures.

E - Solénoïde : (Fig.28)

Il a été en partie réalisé au laboratoire. L'âme de la bobine a été faite à partir d'un manchon de bronze ; les flasques sont en duralumin. L'ensemble est refroidi par un circuit d'eau annulaire passant dans les flasques.

Le bobinage a été effectué avec du fil de cuivre de 20/10 mm de diamètre en deux sections de même résistance (environ $6,8 \Omega$). Chaque section (d'environ 1800 spires) en série avec un rhéostat ($57,5 \Omega$, 12 A) est alimentée sous une tension continue de 120 V. La puissance dissipable est de 1,4 Kw. Le nombre de spires par unité de longueur (cm) est d'environ 100. Nous pouvons obtenir un champ maximum d'environ 1000 Oe. (Fig.29)

Ce groupe nous permet d'oxyder les lames sous des pressions d'oxygène comprises entre 10^{-5} et 10^{-3} mm Hg, à des températures allant jusqu'à 400°C , en présence d'un champ magnétique continu de 1000 Oe maximum.

Nous avons oxydé des lames de nickel, cobalt et permalloy. L'existence de l'oxyde était décelable à l'oeil, sous forme d'une couche généralement brunâtre. Après une oxydation même ménagée, les lames de nickel n'étaient plus mesurables à l'hystérésiscope dont nous disposions, par suite de leur champ coercitif trop grand ; on ne décelait pas de modification pour les lames de cobalt mesurées à la température ambiante. Sur les lames de permalloy, on a constaté un fort élargissement du cycle d'hystérésis, le champ coercitif d'environ 3 Oe étant de l'ordre de 15 à 20 Oe après oxydation. Rien ne nous permet d'affirmer que l'élargissement du cycle est dû à l'existence de couplage ferromagnétique-antiferromagnétique.

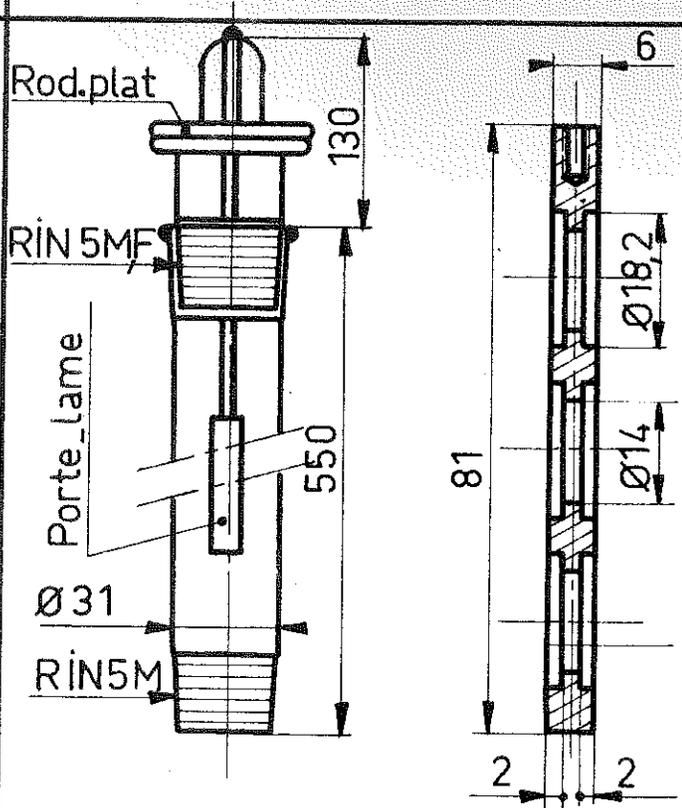


Fig 27: Tube quartz _ Porte_lame

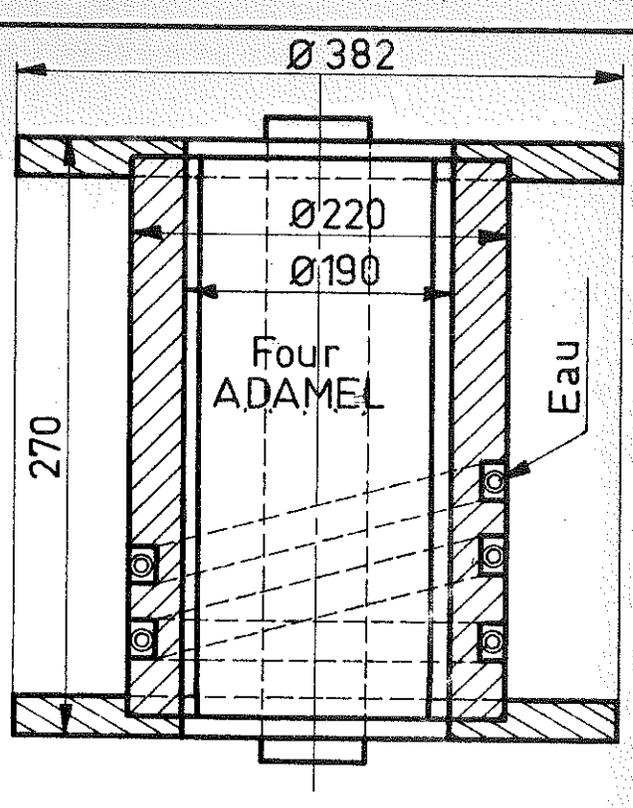
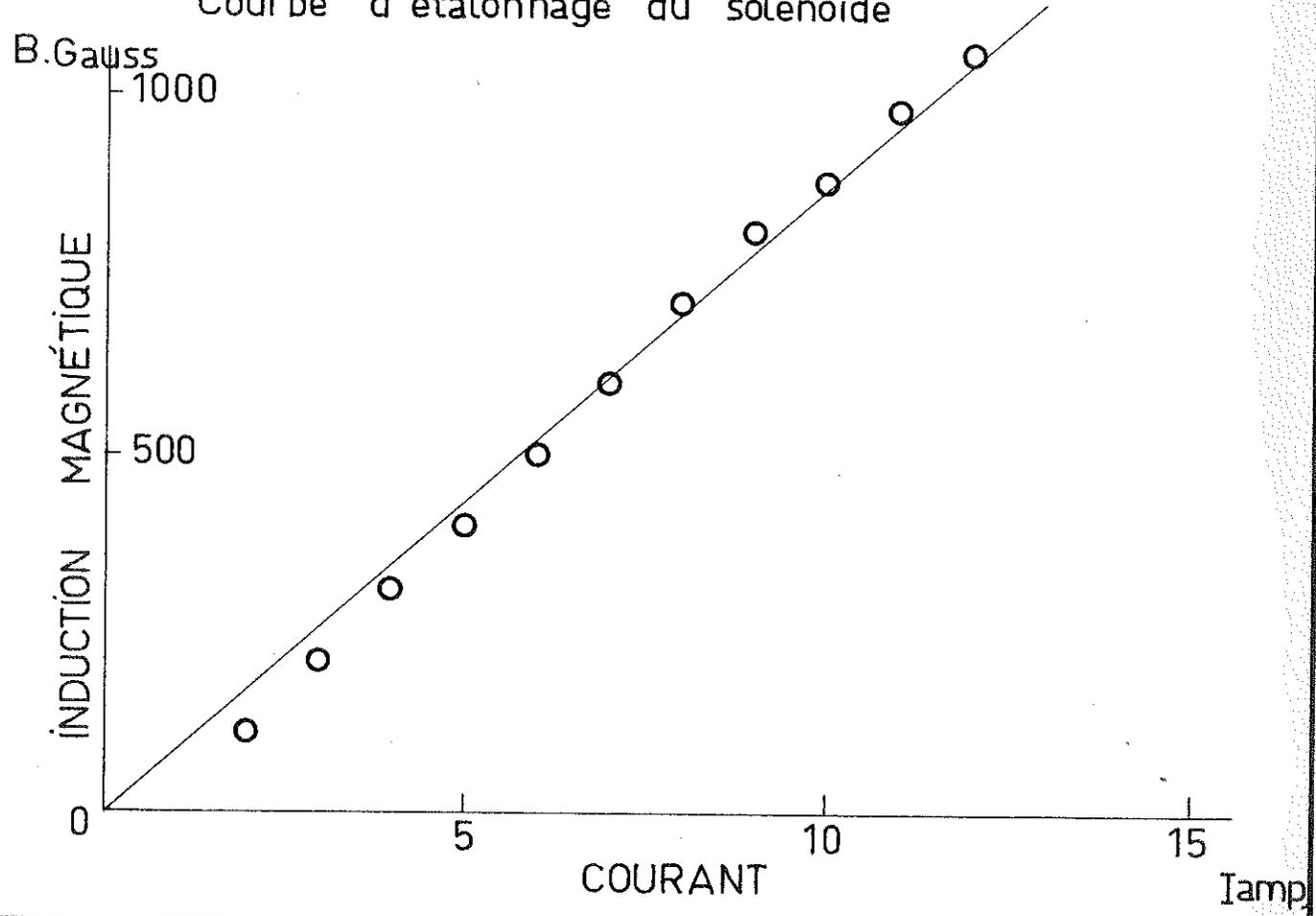


Fig 28: Solénoïde

Fig 29: Groupe d'oxydation et de recuit
 Courbe d'étalonnage du solénoïde



CHAPITRE IV

HYSTERESISCOPE BASSE-TEMPERATURE

Cet appareil doit nous permettre :

- De refroidir les films,
 - à partir de la température ambiante jusqu'à celle de l'air liquide,
 - en présence d'un champ magnétique continu de 200 à 1000 Oe environ.

- D'obtenir sur l'écran de l'oscilloscope le cycle d'hystérésis des lames, en particulier à 77° K ; l'appareil doit pouvoir mesurer des champs coercitifs compris entre quelques Oersteds et une centaine d'Oersteds.

A - Description générale : (Fig.30)

On distingue trois ensembles :

1°) La partie devant recevoir la lame comprend un vase Dewar, une pompe à palettes devant faire le vide dans la double paroi du vase, un tube à décharge pour contrôler la pression. Cet ensemble est fixe. La lame est placée horizontalement.

2°) Le champ continu est fourni par des bobines d'Helmholtz. Ces bobines nous permettent :

- d'obtenir une très bonne homogénéité de champ au voisinage de la lame,
- de pouvoir régler l'intensité du champ magnétique de façon continue,
- d'éviter les rémanences qu'introduirait un électro-aimant.

Elles sont placées verticalement. Elles doivent pouvoir prendre un mouvement de rotation autour de l'axe vertical de l'appareil, de façon à pouvoir faire coïncider le champ continu avec une direction ca-

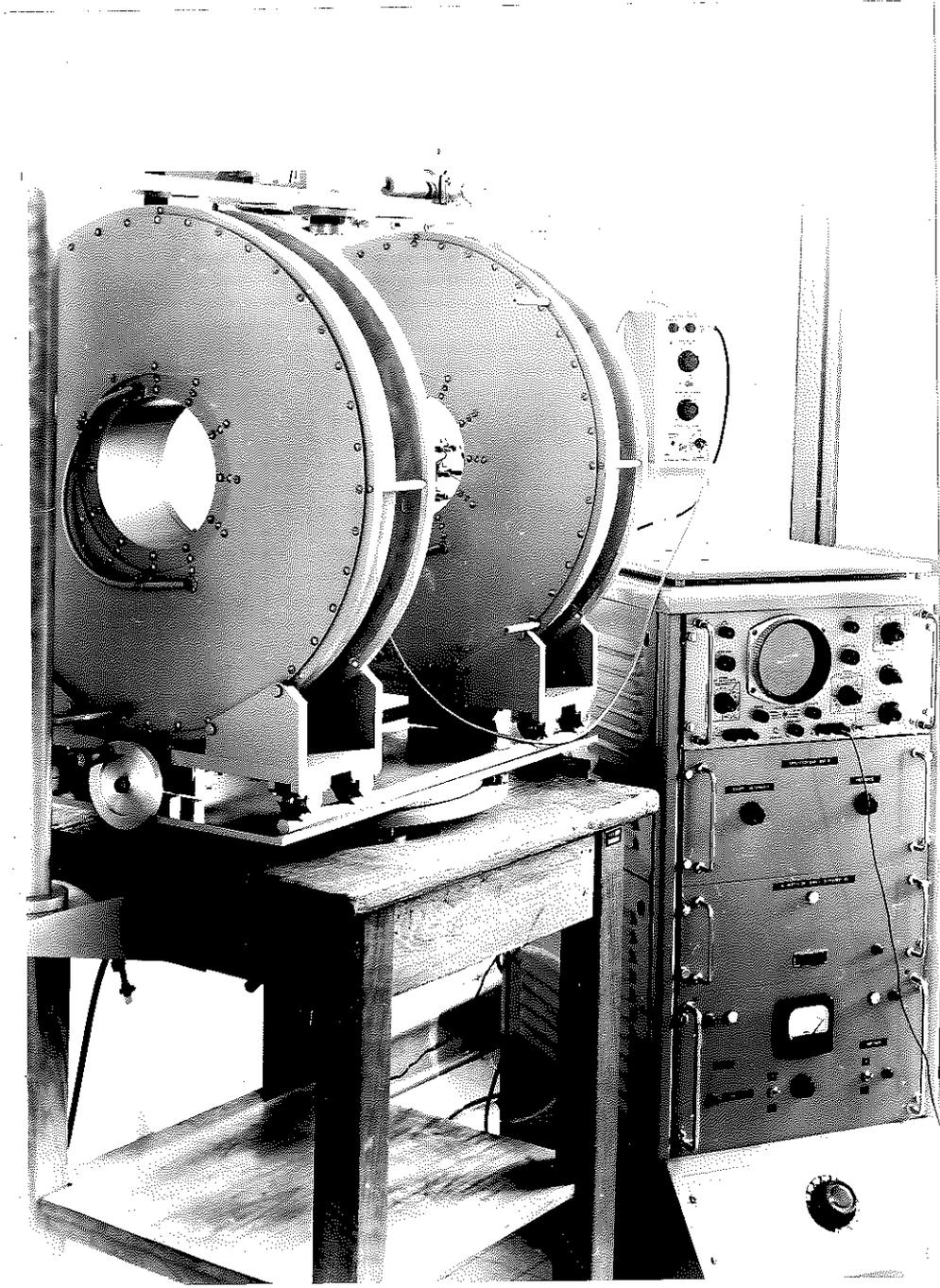


Fig 30

ractéristique de la lame à mesurer .

De plus, on peut les écarter de la position d'Helmholtz, de façon à pouvoir fixer l'échantillon. Elles sont alimentées par l'intermédiaire de rhéostats.

3°) Le cycle d'hystérésis M-H est relevé par un hystérésiscope. L'aimantation de la lame est modifiée périodiquement par un champ alternatif produit par des bobines d'Helmholtz. La variation de flux correspondante est relevée par une bobine pick-up associée à une bobine de compensation du "flux d'air". Le signal recueilli aux bornes de ces deux bobines montées en opposition est amplifié et intégré avant d'être envoyé sur l'échelle verticale de l'écran d'un oscilloscope. Un signal proportionnel au champ alternatif d'excitation balaye l'échelle horizontale.

Toutes les bobines de l'hystérésiscope sont supportées par un plateau que l'on peut déplacer verticalement de façon à l'amener sous la lame pendant la mesure. Ce plateau doit, d'autre part, pouvoir tourner dans son plan autour de l'axe vertical de l'ensemble, afin que l'on puisse étudier le cycle d'hystérésis suivant une direction quelconque du plan de la lame.

L'appareillage électronique est rassemblé dans une baie.

B - Porte-échantillon et système de refroidissement :

Le vase Dewar est renflé dans sa partie supérieure et tubulaire dans sa partie inférieure (Fig.81) ; il peut ainsi être placé entre les bobines (champ continu ou alternatif) en position d'Helmholtz. La paroi extérieure du tube comprend un rodage qui nous permet d'introduire la lame ; celle-ci est collée sur le fond du tube intérieur. Ce mode de fixation permet d'avoir un assez bon contact thermique ; il était imposé par les positions relatives du vase Dewar et de l'hystérésiscope. Les fonds des deux tubes sont des verres optiquement plans ; la position de la lame par rapport à la bobine pick-up est ainsi bien déterminée.

Le vide dans la double paroi du vase est réalisé par une pompe à palettes antiretour à deux étages, à injection d'air, d'un débit de $6 \text{ m}^3/\text{h}$. Un tube à décharge fonctionne sous une tension alternative de 1500 V, obtenue à partir du secteur par un transformateur. Il s'éteint pour des pressions inférieures à 10^{-3} mm Hg .

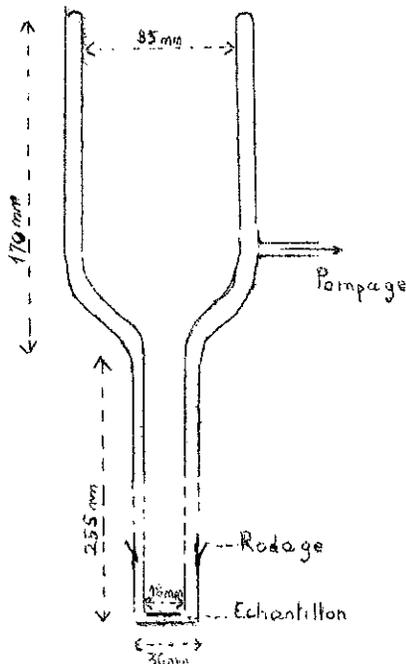


Figure 31
Vase Dewar

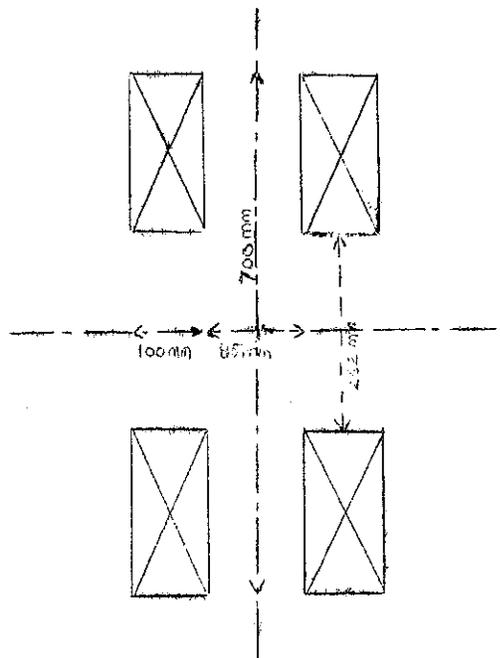


Figure 33
Bobines de champ continu

C - Bobines de champ continu :

Elles doivent fournir un champ de 200 à 1000 Oe (Fig.32) sur une distance de 85 mm (Fig.33). Chaque bobine comprend 1456 spires de méplat (5mm x 2mm) d'aluminium oxydé anodiquement, résistant à 300°C, bobinées en deux galettes isolées à l'aralverre. La résistance est de $5,48 \Omega$ pour l'une, $5,47 \Omega$ pour l'autre. Les bobines sont alimentées sous 120 V, 40 A maximum, en parallèle ou en série. Chacune d'elles est en série avec un rhéostat ($10,2 \Omega$, 26 A).

L'homogénéité du champ entre les flasques a été contrôlée à la sonde à effet Hall ; elle est très bonne ; on peut la considérer comme parfaite sur la surface de la lame.

Les flasques et le noyau sont en duralumin. On a dû prévoir un refroidissement par eau, soit un circuit annulaire et un circuit latéral sur chaque flasque.

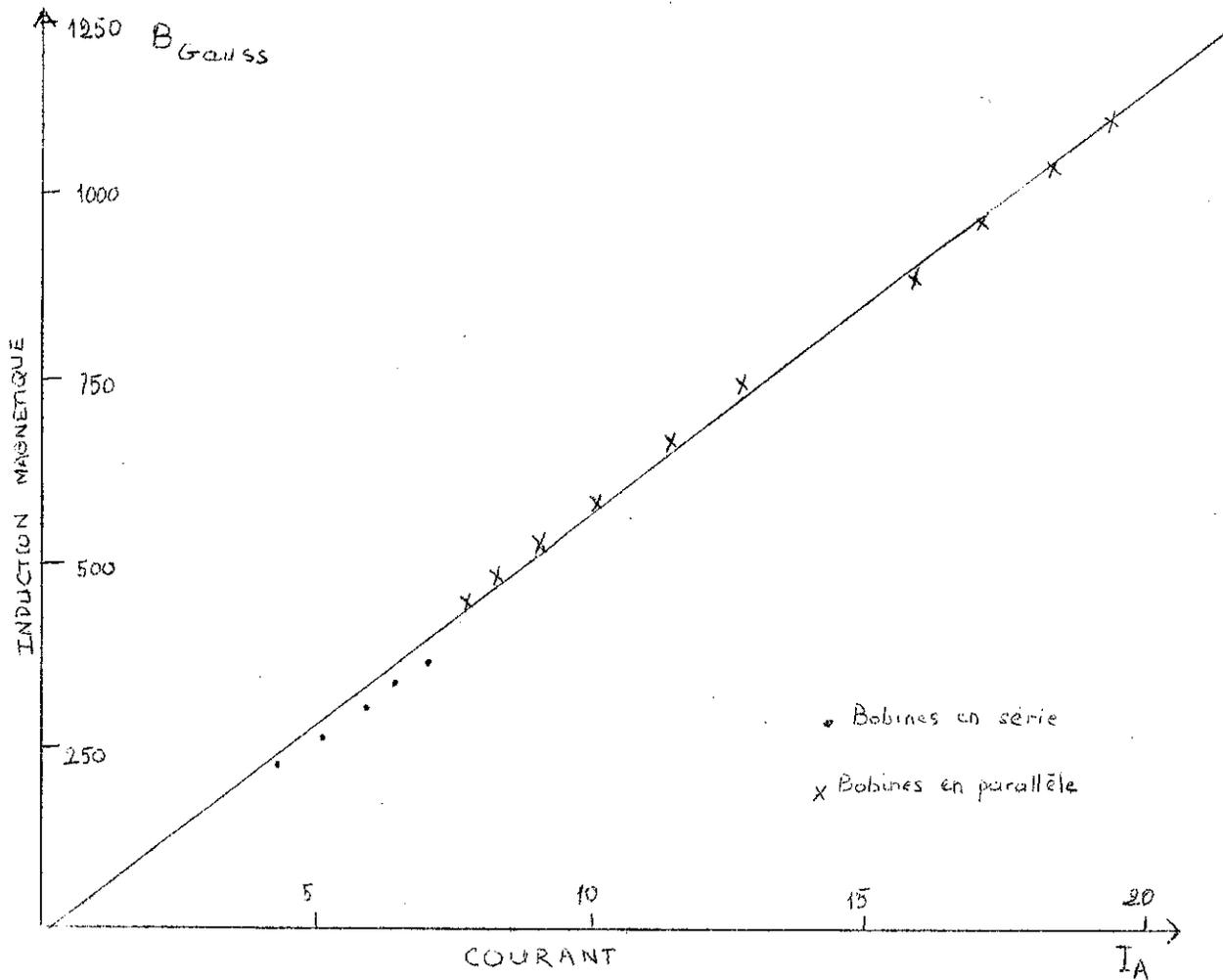
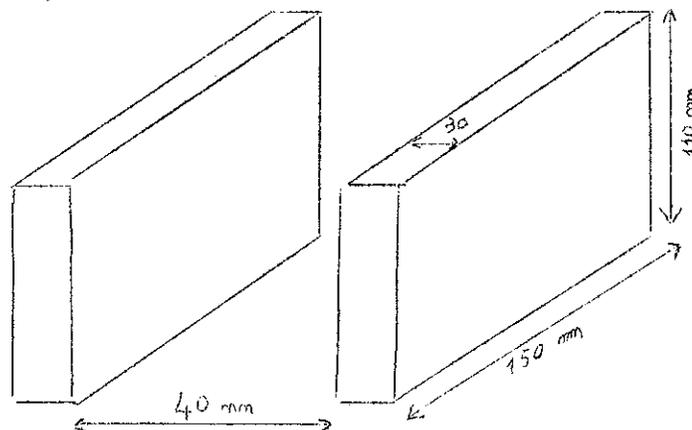


Fig. 32 Courbe d'étalonnage des bobines d'Helmholtz de champ continu.

Fig. 35
Bobines d'Helmholtz de champ alternatif



Chaque bobine est fixée sur un chariot, mobile sur un plateau horizontal, de façon à assurer le mouvement de translation parallèle à l'axe des bobines. Le plateau peut tourner autour de l'axe vertical de l'appareil grâce à un système de billes.

D - Hystérésiscope : (Fig.34)

Toutes les parties mécaniques de cet appareil sont en lucoflex. Le plateau supportant les bobines tourne grâce à un système de billes. Il repose sur un tube de lucoflex fixé en sa partie inférieure à une tige filetée creuse, destinée à assurer le mouvement de translation verticale du système. Les amenées de courant passent à l'intérieur de la tige et du tube.

Les bobines d'Helmholtz (Fig.35) sont approximativement rectangulaires. Chacune comporte 230 spires de fil de cuivre de 15/10 mm de diamètre. Elles sont branchées en série ; la résistance totale est de $3\ \Omega$. Elles sont traversées par un courant maximum de 5 A et fonctionnent sous une puissance maximum de 250 W. Le champ produit a une amplitude maximum d'environ 150 Oe.

La bobine pick-up, de forme approximativement rectangulaire, a 1500 spires de fil de cuivre de 3/100 mm. Elle est placée entre les bobines d'Helmholtz, légèrement au-dessous de leur axe horizontal. La lame étudiée est à 5 mm au-dessus de la bobine. Cette distance imposée par l'épaisseur du fond de verre a été réduite au maximum.

La bobine de compensation du "flux d'air" de même forme que la bobine pick-up a 3000 spires de même fil ; elle est placée symétriquement de la bobine pick-up par rapport à l'une des bobines d'Helmholtz et est donc dans un champ alternatif approximativement moitié de celui existant au voisinage de la bobine pick-up. Afin de pouvoir parfaire le réglage de la compensation, on l'a rendue mobile autour de son axe vertical.

De plus, afin de compenser le déphasage existant entre les signaux provenant de la bobine pick-up et de la bobine de compensation, on a placé au voisinage de cette dernière deux spires de cuivre, l'une fixe, l'autre mobile.

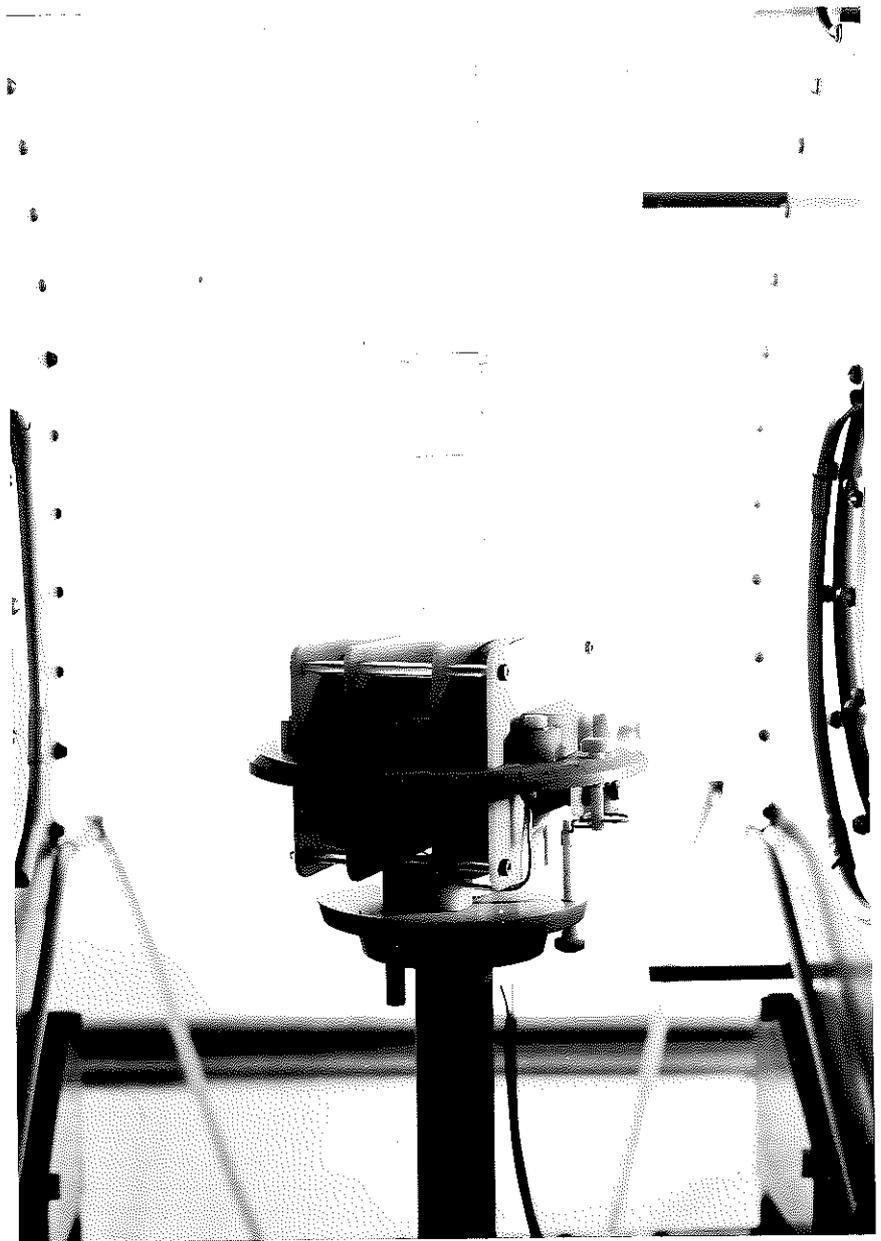


Fig 34a

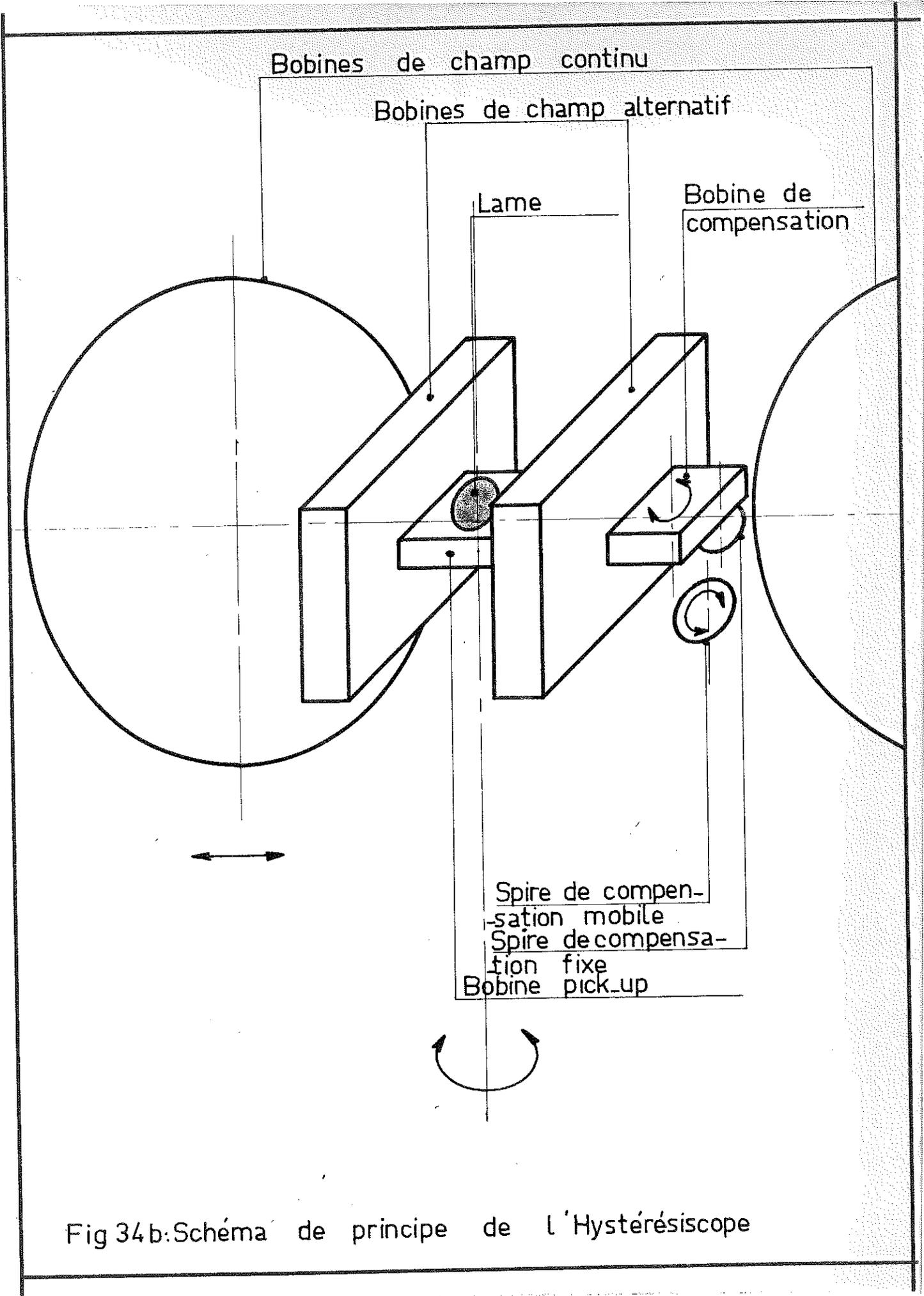


Fig 34b. Schéma de principe de l'Hystérésiscope

Les montages électroniques (Fig.36) ont été réalisés par Monsieur R. BILLAT.

La fréquence de fonctionnement a été choisie à 1000 Hz.

La baie rassemblant l'appareillage électronique contient :

- Un oscillateur 1000 Hz, l'amplificateur 250 W associé et son alimentation, qui doivent alimenter les bobines d'Helmholtz.

- Un amplificateur différentiel qui amplifie et intègre le signal obtenu à la sortie des bobines pick-up et de compensation.

- Un oscilloscope cathodique et le système de suppression 50 Hz associé.

- Les alimentations stabilisées 250 V et - 24 V.

CONCLUSION :

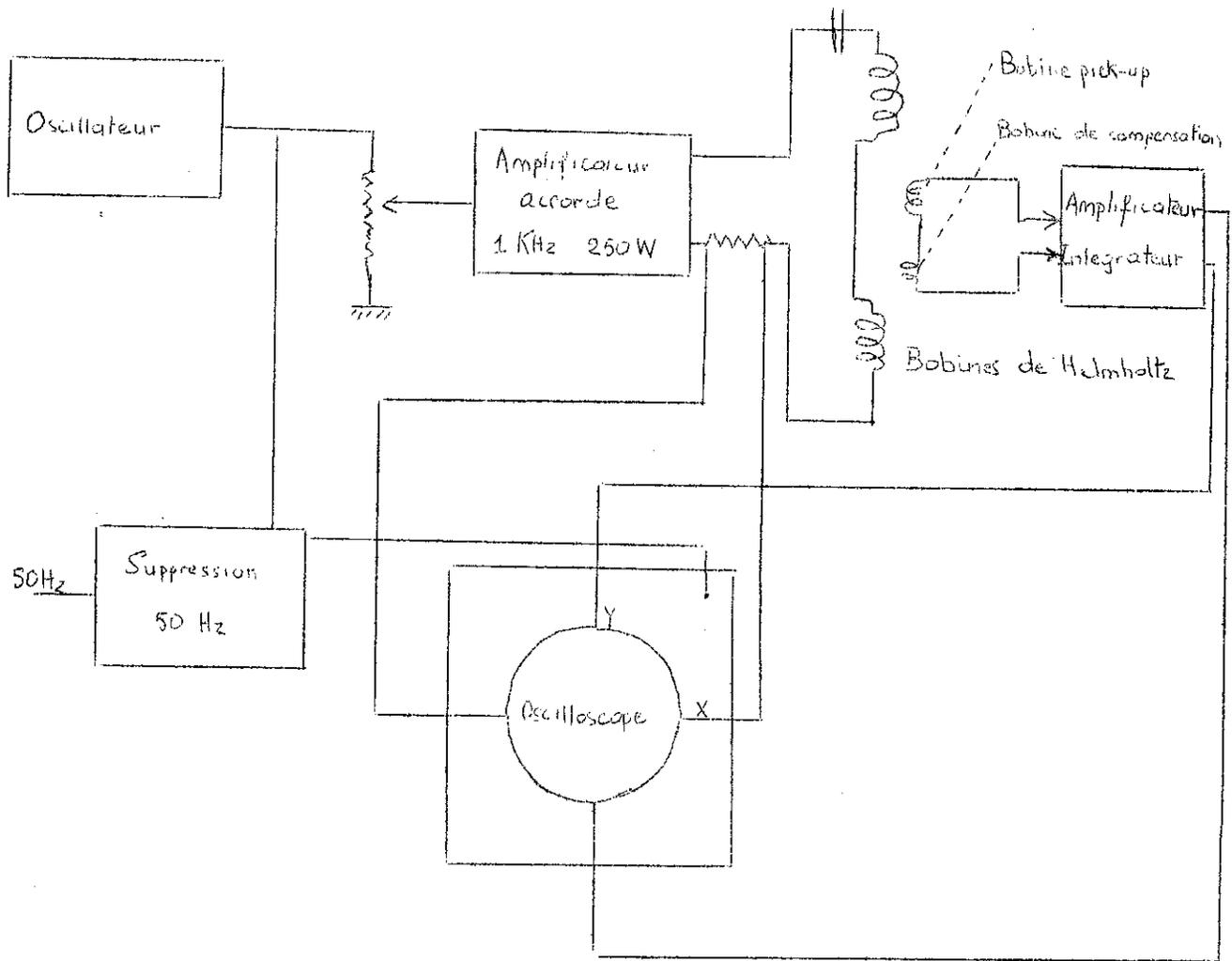
Les essais faits avec cet hystérésiscope basse-température ont montré que :

- l'échantillon est très rapidement, (en moins d'une minute) en équilibre thermique, à une température que l'on peut considérer comme très voisine de celle de l'air liquide.

- Les cycles d'hystérésis sont actuellement obtenus sans déformation jusqu'à des champs alternatifs de l'ordre de 100 Oe.

Il n'est pas impossible que l'on puisse encore améliorer, en particulier les compensations, pour utiliser dans de bonnes conditions toute la puissance disponible dans les bobines d'Helmholtz (correspondant à 150 Oe environ).

La figure 37 rassemble les photographies de cycles d'hystérésis de plusieurs lames, relevés à l'aide de cet appareil, à la température ambiante et à la température de l'air liquide.



Alimentation
Oscillateur
et
Suppression 50Hz

Alimentation
Amplificateur
250W

Alimentation
Amplificateur
Intégrateur

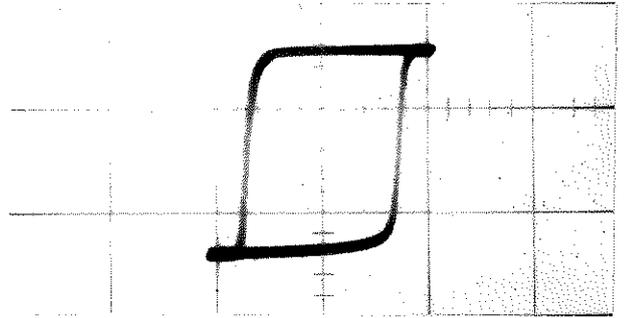
Fig. 36

HYSTERESISCOPE

SCHEMA SYNOPTIQUE

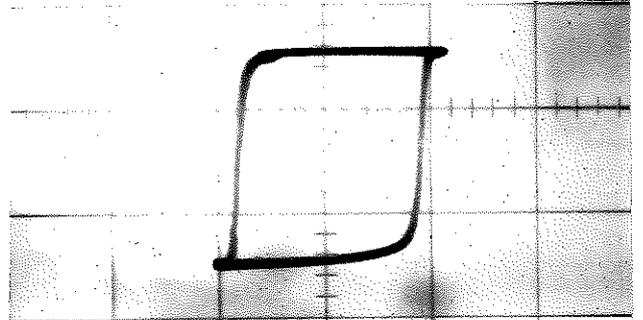
Température

ambiante



Fe Ni

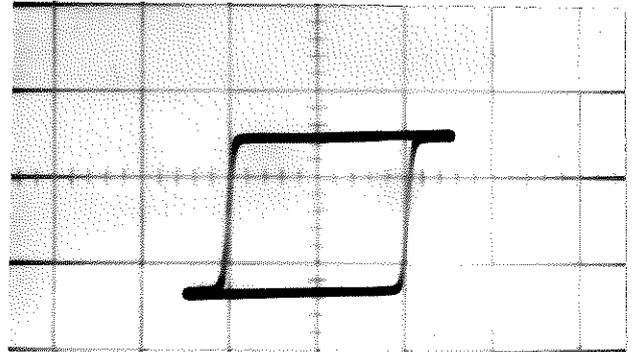
77°K



1 carreau = 2,5 0e

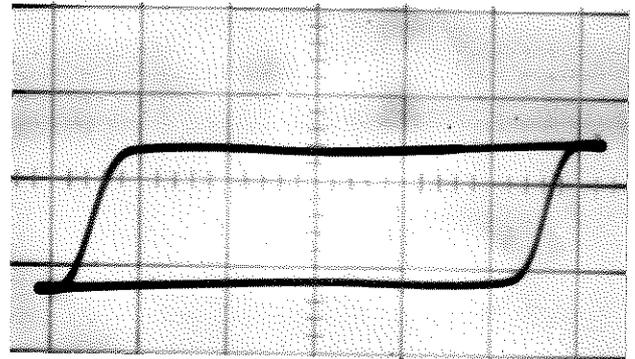
Température

ambiante



Co

77°K



1 carreau = 25 0e

Fig. 37

C O N C L U S I O N

Nous avons donc réalisé un ensemble d'appareils qui nous permettent :

1°) De préparer rapidement des films minces, en particulier de cobalt, nickel et d'autres métaux, dans de bonnes conditions expérimentales.

2°) D'oxyder ces films, éventuellement en présence d'un champ magnétique et de réaliser des recuits magnétiques.

3°) D'étudier les cycles d'hystérésis à la température ordinaire ou à la température de l'air liquide, éventuellement après avoir refroidi les lames en présence d'un champ magnétique.

Nous devons donc pouvoir étudier l'effet sur le cycle d'hystérésis de couplages ferromagnétiques-antiferromagnétiques sur des films oxydés de cobalt et de nickel.

Nous pourrions aussi étudier des films à faible anisotropie, par exemple de permalloy ou d'autres alliages à magnétostriction approximativement nulle ; nous envisageons aussi d'étudier des films monocristallins.

B I B L I O G R A P H I E

- (1) W.H. Meiklejohn, C.P.Bean, Phys. Rev. 102, 1413 (1956)
105, 904 (1957)
- (2) C.P.Bean, W.H.Meiklejohn, Bull.Am. Phys. Soc. Ser.II, 1, 148,(1956)
- (3) W.H.. Meiklejohn, J. Appl. Phys. 29 , 454, (1958)
- (4) H.Schmid, Cobalt 6, 8 (1960)
- (5) F.J.Darnell, J. Appl. Phys. 32 , 186S, (1961)
- (6) C.P.Bean, Structure and properties of thin films
(John Wiley & Sons, Inc, New-York 1959) p.331
- (7) J.B.Newkirk, W.G.Martin, Trans. Met. Soc. Amer. Inst. Min.
Met. Eng. 212 ; 398 (1958)
- (8) W.H. Meiklejohn, J. Appl. Phys. 33 , 1328 S (1962)
- (9) A.Aharoni, E.H.Frei, S.Shtrikman, J. Appl. Phys. 30 1956 (1959)
- (10) J.S. Kouvel, C.D.Graham, Jr., J.J.BEcker, J. Appl. Phys.
29 518 (1958)
- (11) J.S.Kouvel, C.D.Graham, Jr., I.S.Jacobs, J.Phys. Rad.
20 198 (1959)
- (12) J.S.Kouvel, C.D.Graham,Jr, J. Appl. Phys. 30 3125 (1959)
- (13) J.S. Kouvel, J. Phys. Chem. Sc1. 16 , 107 (1960)
- (14) J.S.Kouvel, J. Appl. Phys. 31 , 142S (1960)
- (15) J.S. Kouvel, J. Phys. Chem. Sc1. 21 57 (1961)

- (16) J.S. Kouvel, J. Appl. Phys. 30 313S (1959)
- (17) J.S. Kouvel, J. Phys. Chem. Sol 16 152 (1960)
- (18) R.H. Pry, J.S. Kouvel, E.S. Miksch
J. Appl. Phys. 31 162S (1960)
- (19) W. Roth, J. Appl. Phys. 30 303S (1959)
- (20) J.H. Greiner, I.M. Croll, M. Sulich
J. Appl. Phys. 32 188S (1961)
- (21) N. Menyuk, K. Dwight, D.G. Wickham
Phys. Rev. Letters 4 119 (1960)
- (22) S.T. Lin, A.R. Kaufmann,
Phys. Rev. 108 1171 (1957)
- (23) T. Iwata, M. Iwata, M. Yamamoto
J. Phys. Soc. Japan 14 855 (1959)
- (24) H. Watanabe, J. Phys. Soc. Japan 14 511 (1959)
- (25) W.H. Meiklejohn, R.E. Carter
J. Appl. Phys. 31 164S (1960)
- (26) I.S. Jacobs, P.E. Laurence
J. Appl. Phys. 31 1388 (1960)
- (27) J.S. Kouvel, J. Phys. Chem. Solids 24 795 (1963)
- (28) L. Neel, Compt. Rendus 237 1468 (1953)
J. Phys. Rad. 15 225 (1954)
- (29) C.F. Koci, W.R. Holmquist, P.E. Wigen
J. Phys. Soc. Japan 17 599 (1962) (Supp.B.I.)
- (30) P.E. Wigen, C.F. Koci, M.R. Shanaberger, Thomas D. Rossing
Phys. Rev. Letters 9 T.512 1-3 (1962)

- (31) E.J. Prosen, J.O. Holmen, B.E. Gran
J. APPL. Phys. 32 915 (1961)
- (32) J.M. Lommel, C.D. Graham,
G.E. Res. Lab. Rept. N° 61 RL -2881 -M
- (33) Sherwin S Lehrer, Linc. Lab. Rept. MS 660
- (34) R.J. Prosen, Minneapolis Honeywell Res. Center
Paper for presentation at A I E I Great Lakes
District Meeting
- (35) Mitchell S. Cohen, J. Appl. Phys. 33 2968 (1962)
-