

28/05/1990

A Rafik  
Avec mes amitiés.  
"Jemea"  
Jean-Marie

# THESE

présentée par

**Jean-Marie Bienvenu NDJAKA**

pour obtenir le titre de DOCTEUR  
de l'UNIVERSITE JOSEPH FOURIER - GRENOBLE I  
(arrêté ministériel du 5 juillet 1984)

(Spécialité : Sciences des Matériaux)

---

**PROPRIETES MAGNETIQUES ET MAGNETO-OPTIQUES  
DE COUCHES MINCES ET MULTICOUCHES  
D'ALLIAGES AMORPHES TERRE RARE-COBALT**

---

Soutenue le 30 Mars 1990 devant la Commission d'Examen :

Monsieur  
Messieurs

A. FERT  
B. DIENY  
D. GIVORD  
J. LAJZEROWICZ  
J.L. VICENT

Président  
Examineurs

Thèse préparée au Laboratoire Louis Néel

- C.N.R.S. Grenoble -



**A mes parents, Angèle et Joseph Ndjaka.  
A mes frères, amis et connaissances.  
Je vous dédie ce mémoire ."Le seul fait  
que vous y promènerez votre regard suffit  
à mon bonheur". Ensemble, disons :  
A Yama di nsoma.**



## PREFACE

Ce mémoire résume près de 3 années de recherches entièrement effectuées au sein du Laboratoire Louis Néel de Grenoble, sous la responsabilité scientifique de Dominique Givord. Ses grandes qualités humaines, son amitié et sa constante disponibilité ont été une réelle source de motivation et un support psychologique important. En guise de reconnaissance, je lui rend un vibrant hommage et lui renouvelle mes amitiés.

J'ai bénéficié du dynamisme intellectuel de B. Diény ainsi que de la compétence technique de P. Lethuillier, A. Liénard, J.P. Rebouillat, Y. Souche et l'ensemble des techniciens du Laboratoire. Qu'ils trouvent ici l'expression de ma gratitude.

Je tiens également à remercier MM. M. Cyrot et R. Lemaire, directeurs, qui ont bien voulu m'accueillir au sein du Laboratoire Louis Néel.

Les professeurs A. Fert, J. Lajzerowicz et J.L. Vicent ont accepté de participer au jury et de juger ce travail. Je leur exprime ma gratitude.

Mes pensées vont également vers B. Sérafini qui a dactylographié ce mémoire, ainsi qu'à P. Blérald, I. Cros, O. Cugat, D. Marlin, Y. Ranc et I. Zanoni pour leur gentillesse.

Bref, que tous ceux qui, de près ou de loin, d'une manière ou d'une autre, ont participé à mon instruction ou à la rédaction de ce mémoire se sentent personnellement nommés et trouvent ici l'expression de ma profonde gratitude.



*INTRODUCTION*



Les systèmes en couches minces constituent des systèmes modèles pour l'étude fondamentale des interactions en jeu dans les matériaux magnétiques. En effet, la nature des interactions mises en évidence dépend de l'épaisseur des couches considérées. En dessous de 100 Å, les propriétés des moments magnétiques atomiques, les interactions d'échange et l'anisotropie magnétocristalline se manifestent. A partir de 500 Å, la compétition entre l'échange et l'anisotropie peut conduire à la formation de parois soumises aux effets du champ magnétique appliqué et de l'énergie dipolaire. Aux épaisseurs de l'ordre du micron, les matériaux se comportent pratiquement comme des systèmes massifs dans lesquels l'énergie dipolaire est équivalente à une anisotropie de forme. La géométrie simple de ces systèmes permet d'analyser des structures en domaines particulières, déterminées tant par la topologie que par les interactions dipolaires.

Les propriétés de ce type de matériaux ont été étudiées de façon approfondie depuis de nombreuses années. Entre autres, le phénomène d'anisotropie d'échange d'une couche ferromagnétique couplée à une couche antiferromagnétique (NiFe/FeMn), ou la stabilité de parois de différents types (parois de Bloch, parois de Néel) selon l'épaisseur des couches ont été établis. Mais ce domaine d'étude connaît aujourd'hui un nouveau développement lié au progrès de la technologie. En particulier, les travaux sur les matériaux semi-conducteurs ont conduit au développement de dispositifs élaborés permettant la préparation sous ultra-vide de couches minces présentant des propriétés parfaitement contrôlées. Les super-réseaux de type GaAs-AlAs constituent l'aboutissement le plus spectaculaire dans ce domaine. Plus récemment, différents groupes de recherches ont utilisé ces techniques pour la préparation de couches métalliques magnétiques. Une autre technique s'est développée durant la même période, la pulvérisation cathodique, utilisée en particulier pour la préparation d'alliages métalliques amorphes. Sa simplicité et sa souplesse en font un outil de choix pour la préparation de matériaux amorphes ou microcristallisés aux épaisseurs de l'ordre de 1000 Å à quelques microns. Du point de vue de la caractérisation des matériaux, le développement des magnétomètres utilisant des SQUID a permis un gain de 2 à 3 ordres de grandeur sur la sensibilité de détection. Avec les appareils les plus élaborés, il est possible de mesurer l'aimantation d'une monocouche de 1 cm<sup>2</sup> d'un matériau comme le fer.

Les travaux récents sur les couches minces magnétiques ont été orientés vers l'étude des propriétés magnétiques de systèmes ultra-minces. La variation des propriétés magnétiques en fonction de l'épaisseur des couches dans le fer, le cobalt et le nickel ainsi que la contribution de la surface à l'anisotropie ont en particulier été abordées. Les études sur les systèmes en multicouches tels que Gd/Y, Co/Cu, Fe/Cr, Fe/Ru ont permis d'analyser les phénomènes de couplage entre couches magnétiques à travers une couche non ou peu magnétique.

Un groupe de recherche s'est constitué au Laboratoire Louis Néel en 1987, avec pour objectif la préparation et la caractérisation de matériaux magnétiques en couches minces. Pour la préparation de couches d'épaisseur inférieure à 100 Å, un système original utilisant l'ablation laser est en cours de développement. Aux épaisseurs supérieures, une installation de pulvérisation cathodique triode déjà existante a été adaptée aux nécessités de la préparation de multicouches. Le laboratoire est équipé de deux magnétomètres à SQUID, mais il s'avère que le temps nécessaire aux mesures est très long si l'on veut atteindre la pleine précision de ce type de dispositifs. Par ailleurs, dans les couches très minces qu'il n'est pas possible de décoller de leur substrat, une importante correction due au signal magnétique de ce dernier est nécessaire. Il a été décidé pour ces raisons de construire un magnétomètre permettant une caractérisation complémentaire simple du magnétisme des couches à travers la mesure des effets magnéto-optiques.

Notre travail a été consacré pour l'essentiel, au développement d'une méthode de caractérisation magnéto-optique des couches mettant en jeu l'effet Kerr transverse et à l'analyse des processus d'aimantation originaux qui apparaissent dans les systèmes sandwichs formés par la juxtaposition de couches de différents alliages amorphes terre rare-cobalt.

Le chapitre I de ce mémoire décrit les diverses méthodes expérimentales utilisées.

Les propriétés magnétiques des alliages terre rare-métal de transition sont décrites dans le chapitre II. Les propriétés d'alliages Y-Co, La-Co et Y-Ni sont déterminées puis discutées dans un modèle simple. Les propriétés des alliages R-Co (R = Nd, Gd et Er) sont également déterminées à fin de comparaisons avec celles observées dans les systèmes sandwichs étudiés plus loin.

Les propriétés magnéto-optiques des métaux sont décrites dans le chapitre III. Le montage original de mesure de l'effet Kerr transverse développé au Laboratoire Louis

Néel est présenté ; l'effet Kerr transverse mesuré dans les alliages Y-Co, La-Co et Y-Ni est comparé aux valeurs de l'aimantation dans ces systèmes.

Les chapitres IV et V sont consacrés à l'étude des propriétés magnétiques de systèmes sandwichs formés par la superposition de couches Y-Co et R-Co. Des processus d'aimantation originaux sont observés, associés au retournement de l'aimantation des couches constituantes dans des champs magnétiques de valeurs différentes, du fait de l'alternance de la direction d'aimantation ou de la différence de coercitivité entre couches. Les comportements observés sont discutés en considérant qu'en raison du couplage entre couches, des parois sont créées ou anihilées aux interfaces.



CHAPITRE I

*TECHNIQUES EXPERIMENTALES*



## **I-1- PREPARATION DES COUCHES**

### **I-1-1 - Les différentes techniques de préparation d'alliages terre rare-métal de transition en couches minces amorphes**

En raison de la différence d'électronégativité entre les éléments constituants, les alliages terre rare-métal de transition ont tendance à former de nombreux composés intermétalliques aux structures cristallographiques variées. Ils peuvent également être obtenus sous la forme d'alliages amorphes. L'arrangement structural correspondant est métastable. Des méthodes de préparation particulières sont alors requises.

#### ***La trempe ultra-rapide***

Une première méthode consiste à refroidir très rapidement, à des vitesses typiquement comprises entre  $10^5$  et  $10^8$  degrés/seconde, un alliage en fusion. Le désordre caractéristique de l'état liquide est approximativement figé à l'état solide. Dans la technique de base développée vers 1960 [I.1-4] (figure I-1(a)), une goutte de liquide est écrasée entre un marteau et une enclume. Ce procédé permet de préparer des échantillons de 20 à 60  $\mu\text{m}$  d'épaisseur et 1 à 3 cm de diamètre. D'autres procédés ont été développés, permettant d'obtenir une quantité plus grande d'échantillon. Dans une méthode classique (Figure I-1(b)), un jet de métal fondu formé à la sortie d'une buse est projeté sur un rouleau tournant à grande vitesse (environ 3.000 tours par minute). On obtient ainsi des rubans continus de quelques millimètres de largeur, à une vitesse de l'ordre de 40 m/s [I.4-6]. Si la buse est rapprochée du substrat (Figure I.1(c)), la flaque liquide se trouve confiné entre la buse et le substrat par les forces capillaires. La largeur du ruban est alors identique à la largeur de l'orifice de la buse qui a une forme de fente, elle peut sans peine dépasser le centimètre. Ce procédé est dit de trempe de coulées planes sur rouleau [I.7]. Il permet d'obtenir des rubans dont la régularité dimensionnelle est excellente.

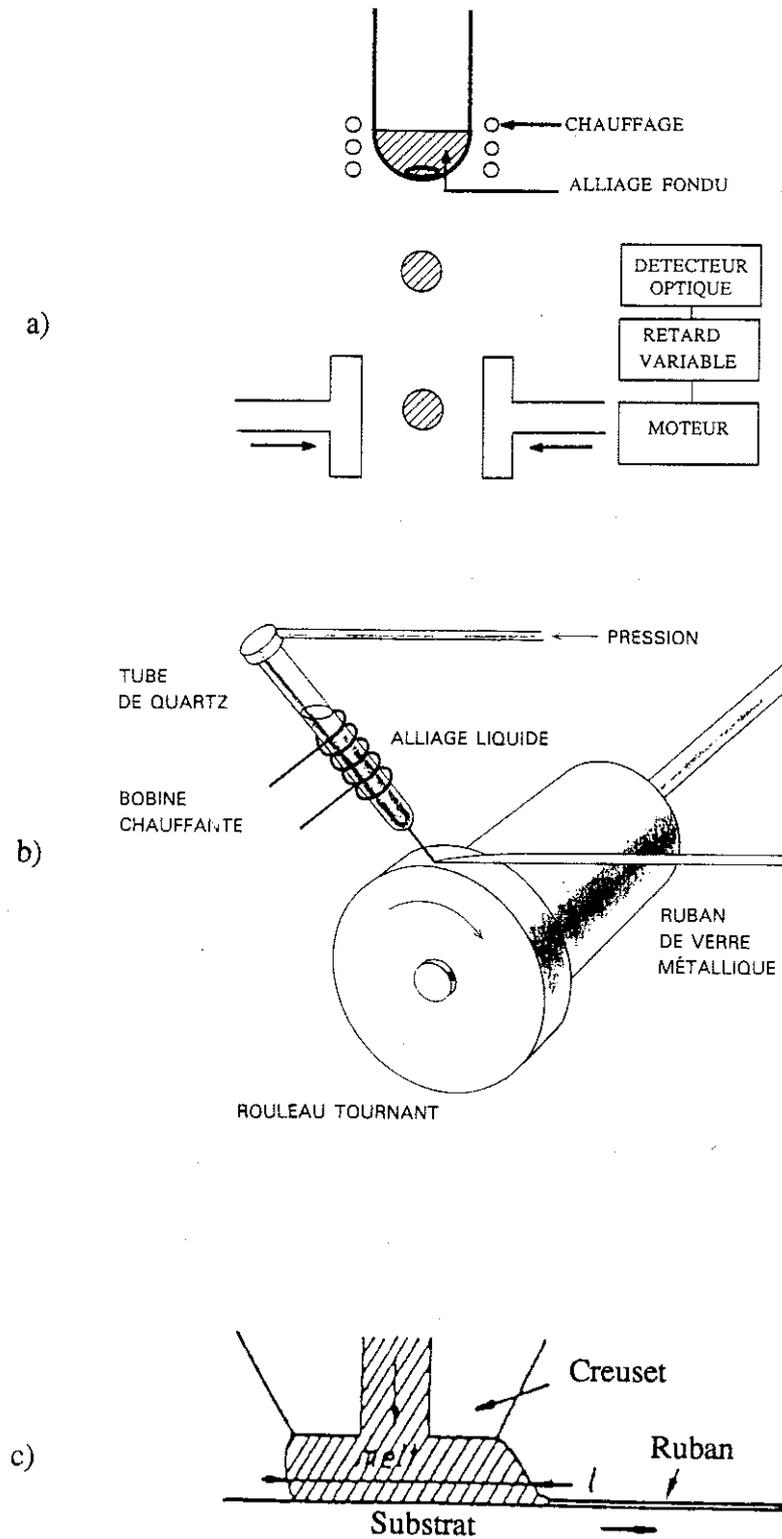


Figure I.1 : Préparation d'alliages amorphes par trempe ultra-rapide

a) Procédé du marteau et de l'enclume

b) Trempe de jet libre sur rouleau tournant

c) Trempe de coulées planes sur rouleau

### *L'évaporation thermique*

D'autres méthodes de préparation mettent en jeu la condensation d'atomes sur un substrat froid. Elles permettent d'obtenir des alliages amorphes dans des gammes de composition beaucoup plus larges que la trempe ultra-rapide. Dans les méthodes d'évaporation [I.8-10], un lingot du matériau désiré est chauffé sous un vide poussé ( $<10^{-8}$  torr) jusqu'à une température voisine de sa température de fusion. La vapeur formée se condense sur le substrat placé en regard. Différentes techniques de chauffage sont utilisées, soit par effet Joule, soit par induction, soit par bombardement électronique, soit enfin à l'aide d'un faisceau laser. La fabrication d'alliages qui met en jeu plusieurs éléments dont les tensions de vapeur diffèrent, impose en général la mise en oeuvre d'une méthode de co-évaporation (Figure I.2) à partir de plusieurs sources, chacune composée d'un élément pur.

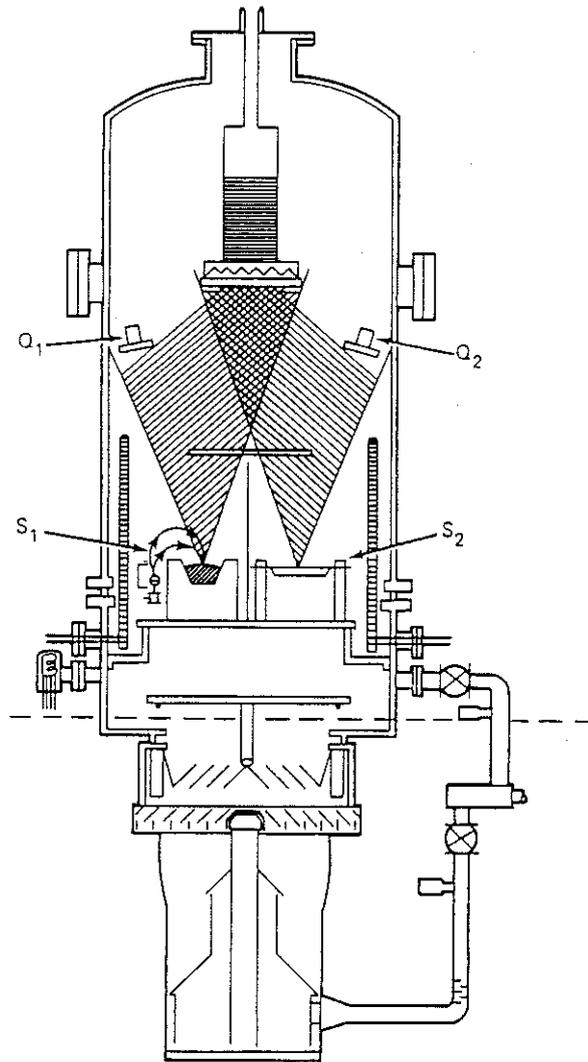


Figure I.2 : Préparation d'alliages par co-évaporation thermique [I.10]

### *La pulvérisation cathodique*

Une autre méthode de dépôt, dite de pulvérisation cathodique [I.11], consiste à bombarder une cible avec des ions d'un gaz inerte tel l'argon. Les atomes sont éjectés de la cible par transfert d'énergie cinétique. La proportion des différentes espèces arrachées respecte approximativement la composition chimique de la cible et il en est de même de la couche obtenue par condensation. Il est ainsi possible d'obtenir des couches minces d'alliages amorphes à partir d'une cible unique. Cette technique permet également d'obtenir une très bonne adhérence des dépôts sur des substrats de toute nature.

Les techniques de pulvérisation varient selon la méthode utilisée pour ioniser le gaz rare. Dans le procédé diode continu, la cible et le substrat font respectivement office de cathode et d'anode. Ils sont situés à quelques centimètres (généralement de 1 à 5 cm) l'un de l'autre (Figure I.3(a)). Ils sont séparés par un milieu gazeux sous pression réduite (entre  $10^{-3}$  et  $10^{-1}$  torr). La cathode refroidie à l'eau est polarisée négativement à une tension de quelques milliers de volts. Sous l'action de la différence de potentiel, le milieu est partiellement ionisé et se transforme en un plasma. C'est de ce plasma que sont issues les particules qui bombardent la cible et provoquent sa pulvérisation. Dans le procédé triode (Figure I.3(b)), le plasma est créé au moyen d'électrons émis à partir d'une cathode chaude et accélérés dans un champ électrique créé par l'anode. Le plasma est indépendant de la cible et du substrat, ce qui permet d'augmenter la distance cible-substrat. Par rapport au procédé diode, le procédé triode présente les avantages suivants :

- la pression dans l'enceinte d'évaporation peut être inférieure à  $10^{-3}$  torr, ce qui augmente le libre parcours moyen des ions, donc la vitesse de dépôt.
- le piégeage du gaz d'argon dans le dépôt est considérablement réduit, ce qui favorise l'obtention de couches de haute pureté.
- le potentiel de la cible ne participe pas au maintien du plasma ; il peut être réduit à des valeurs de l'ordre de 1kV ce qui diminue considérablement les risques de claquages.
- de grandes vitesses de dépôt sont possibles en raison de l'intensité du plasma.

C'est en raison des avantages ci-dessus qu'un appareillage de pulvérisation cathodique du type triode a été installé au Laboratoire Louis Néel dès 1974 sous la responsabilité de J.P. Rebouillat [I.12].

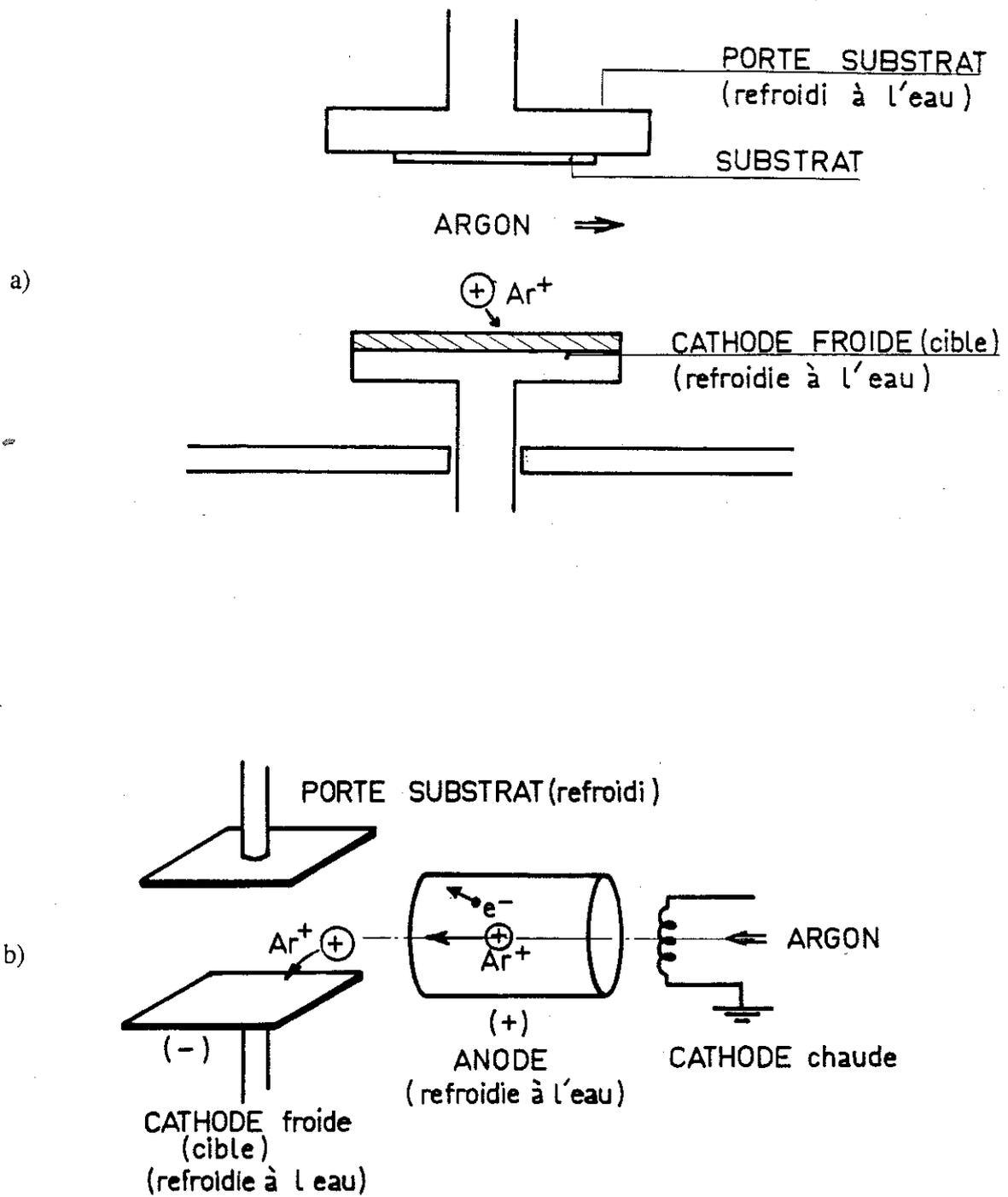


Figure I.3 : Préparation d'alliages amorphes par pulvérisation cathodique

a) Principe de pulvérisation diode

b) Principe de pulvérisation triode

## I-1-2 - Préparation des couches au Laboratoire Louis Néel

### *Description de l'appareillage utilisé*

Dans le dispositif du laboratoire, un flux d'argon est injecté de façon permanente dans la zone de passage des électrons à l'aide d'une microvanne. Une pression constante de  $10^{-3}$  torr est ainsi établie dans l'enceinte de pulvérisation. Les électrons sont émis par un filament de tungstène porté à une température d'environ  $2500^{\circ}\text{C}$  par chauffage direct. Le système comporte un deuxième filament qui peut être utilisé en cas de rupture du premier pendant la manipulation. Les électrons émis sont accélérés par une anode cylindrique de 15 cm de long et 8 cm de diamètre portée à une tension de + 50 volts. L'anode est entourée par une bobine extérieure permettant de spiraler la trajectoire des électrons autour des lignes de champ magnétique et donc, d'augmenter leur probabilité de collision avec les atomes d'argon. Le plasma ainsi créé diverge à la sortie de l'anode. Pour le concentrer, on canalise les lignes de champ magnétique sur la cible à l'aide d'une bobine à noyau de fer doux (Figure I.4).

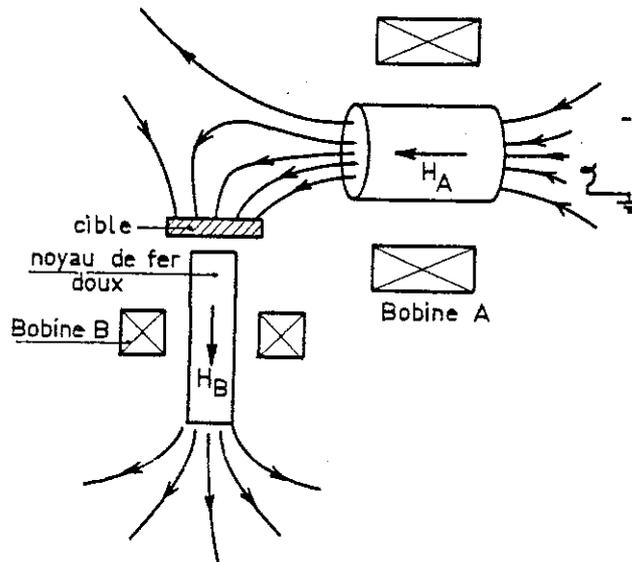


Figure I.4 : Principe de concentration du plasma dans le dispositif utilisé au Laboratoire Louis Néel

Pour bombarder la cible, on la porte à un potentiel négatif pouvant atteindre - 1500 volts, ce qui accélère les ions  $\text{Ar}^+$  dans sa direction. Les atomes qui sont alors éjectés se condensent sur un substrat placé en regard, à une distance de l'ordre de 15 cm. La cible est montée sur un carrousel tournant qui peut comporter jusqu'à 4 cibles différentes. La cible à pulvériser est mise en position par simple rotation du plateau porte-cibles. En interchangeant les cibles durant la préparation des couches, on peut obtenir des

multicouches. Le porte-substrats est un disque dont le diamètre est de 10 cm environ. Il est vissé sur un réservoir rotatif dont l'axe est décentré par rapport à la cible, ce qui permet d'obtenir une meilleure homogénéisation des dépôts. La température du substrat peut être ajustée à une valeur quelconque entre 300 K et 600 K par l'intermédiaire d'un doigt chauffant, ou à 77 K par circulation d'azote liquide à travers le réservoir. Le contact thermique s'effectue dans ce cas au moyen d'une couche de graisse à vide déposée sur le dos du disque porte-substrats. Deux boîtes de rangement pouvant contenir jusqu'à 6 porte-substrats sont adjointes ; ceci permet de préparer plusieurs dépôts sans ouvrir l'enceinte de pulvérisation. Vu de la cible, le porte-substrats offre un angle solide permettant de capter 1/3 de la masse pulvérisée. Le taux de pulvérisation peut être modifié en agissant sur les paramètres suivants : tension cible, tension de l'anode, courant de chauffage du filament, pression d'argon. Pendant la manipulation, l'ensemble du dispositif est refroidi par une circulation d'eau. Un cristal de quartz permet de contrôler l'épaisseur de couche déposée. Le pilotage de la manipulation peut s'effectuer soit manuellement, soit par micro-ordinateur.

### *Préparation des cibles*

Les cibles sont coulées dans un four à induction dit à "creuset froid". Les constituants de la cible sont introduits dans un creuset cylindrique en cuivre, divisé en secteurs refroidis à l'eau. Le creuset cylindrique est placé dans une enceinte en pyrex, sous atmosphère d'argon, de telle sorte que les constituants de la cible soient au centre de l'inducteur entourant l'enceinte. L'inducteur est un enroulement de 4 spires tubulaires en cuivre. Une circulation d'eau à l'intérieur du tube assure son refroidissement. Un générateur autocontrôlé fournit le courant alternatif haute fréquence. L'inducteur crée alors un champ magnétique alternatif. Les constituants de la cible, placés dans ce champ variable, sont soumis à des courants induits qui tendent à annuler les variations du flux du champ inducteur. Ils s'échauffent par effet Joule jusqu'à leur température de fusion. Le fond du creuset a une forme légèrement hémisphérique qui donne lieu à un gradient de champ électromagnétique produisant une force ascensionnelle opposée à la pesanteur. Cet effet de lévitation minimise le contact avec le creuset et élimine pratiquement les risques de contamination par le creuset que le caractère électropositif des terres rares peut favoriser. Les forces électromagnétiques créées par la présence simultanée des courants induits et du champ inducteur ont la particularité d'être toujours dirigées vers l'intérieur du matériau en fusion. Elles conduisent à un brassage des constituants et assurent une bonne homogénéité de l'alliage. Lorsque l'alliage apparaît homogène, on ouvre le fond du creuset à l'aide d'un doigt escamotable et l'alliage en fusion tombe sur une sole refroidie. Celle-ci a la forme et les dimensions de la cible à préparer, elle est constituée par un tube cylindrique reposant sur un disque épais. Selon la vitesse de refroidissement désirée, le tube et le disque sont en cuivre ou en acier inoxydable.

## I-2 - CARACTERISATION DES ECHANTILLONS

### I-2-1 Caractérisation structurale et chimique

La caractérisation structurale de nos échantillons a été faite par diffraction de RX à l'aide d'un diffractomètre de poudre Philips. Le principe consiste à mesurer les intensités des raies de diffraction pour les différentes valeurs de l'angle entre le faisceau incident et le faisceau diffracté. Dans l'arrangement expérimental utilisé, le vecteur de diffusion est perpendiculaire au plan de la couche. Nous avons utilisé la plupart du temps la radiation  $K_{\alpha}$  du cobalt, de longueur d'onde 1.7903 Å. Les données obtenues sont enregistrées puis transférées sur un micro-ordinateur équipé d'une table traçante. Le diffractogramme obtenu permet de vérifier la nature amorphe de l'échantillon.

La composition chimique des couches préparées a été déterminée par microanalyse X par dispersion d'énergie en utilisant un microscope électronique à balayage (modèle JEOL 840A) et le microanalyseur de type KEVEX QUANTUM fonctionnant au Laboratoire de cristallographie sous la responsabilité de T. Fournier. Ce type d'analyse nous a permis d'obtenir la composition chimique des couches avec une précision de l'ordre du pour cent ainsi que la teneur en impuretés présentes. Les éléments plus légers que le bore ne peuvent cependant pas être détectés car leurs longueurs d'onde caractéristiques sont absorbées par la fenêtre.

### I-2-2 Mesures d'aimantation

Dans les magnétomètres que nous avons utilisés, le champ magnétique est produit par une bobine supraconductrice. Pour la mesure de son aimantation, l'échantillon est déplacé dans un couple de bobines montées en série-opposition. Le déplacement de l'échantillon entraîne une variation de flux qui induit une f.e.m  $e = - d\phi/dt$  aux bornes du couple de bobines. Dans la méthode d'extraction classique, la f.e.m induite est intégrée sur tout le déplacement de l'échantillon. La variation de flux  $\Delta\phi$  obtenue est proportionnelle, si on assimile l'échantillon à un dipôle magnétique, à son moment magnétique. Cette méthode permet de mesurer des moments magnétiques variant environ entre  $10^{-2}$  et 1000 uem. Pour des échantillons de couches minces ou multicouches magnétiques, l'aimantation à mesurer est faible. Nous avons alors utilisé un magnétomètre à SQUID dont la sensibilité est plus grande. Le magnétomètre de notre laboratoire, mis au point par P. Lethuillier et J.C. Genna, utilise un SQUID radiofréquence de la compagnie SHE, fonctionnant en mode de flux asservi.

**Description du magnétomètre à SQUID du Laboratoire Louis Néel**  
**(SQUID : Superconducting Quantum Interference Device)**

**- Principe de mesure**

Un SQUID RF est constitué d'un anneau en matériau supraconducteur (Niobium) fermé par une jonction Josephson. Il est couplé par mutuelle d'une part à une self reliée à un couple de bobines montées en série-opposition et d'autre part, à un circuit oscillant haute fréquence (figure I.5).

Le déplacement d'un échantillon d'aimantation  $M$  induit une variation de flux  $\Delta\phi = kM$  dans le bobinage de mesure. Un courant  $i = \Delta\phi / (2L_1 + L_2)$  circule alors dans le bobinage réalisé en fil supraconducteur. Il en résulte une variation de flux  $\Delta\phi_J = \mathfrak{M}_1 i$  dans l'anneau supraconducteur. Par l'action de la mutuelle  $\mathfrak{M}_2$ , la tension de crête  $V_T$  aux bornes du circuit oscillant varie d'une quantité  $\Delta V_T = L_T \omega \Delta\phi_J / \mathfrak{M}_2$ . Cette tension est modulée, amplifiée et détectée de façon synchrone. Un circuit de contre-réaction réinjecte un courant  $i_{cr}$  qui maintient la tension de pic constante. Ceci revient à maintenir constant le flux que voit l'anneau supraconducteur :  $\Delta\phi_J = 0$ , or  $\Delta\phi_J = \mathfrak{M}_1 i + \mathfrak{M}_2 i_{cr}$ , le courant de contre-réaction est donc directement proportionnel au flux envoyé par l'échantillon c'est-à-dire à son aimantation :  $M = \alpha i_{cr}$ . La mesure de la variation de flux se ramène alors à celle du courant de contre-réaction nécessaire pour maintenir constant le flux dans l'anneau supraconducteur. L'échantillon, de dimensions maximales  $6 \times 6 \text{ mm}^2$ , est collé sur un porte-échantillon en plexiglass. Le porte-échantillon est vissé sur une tige reliée à un verin électrique.

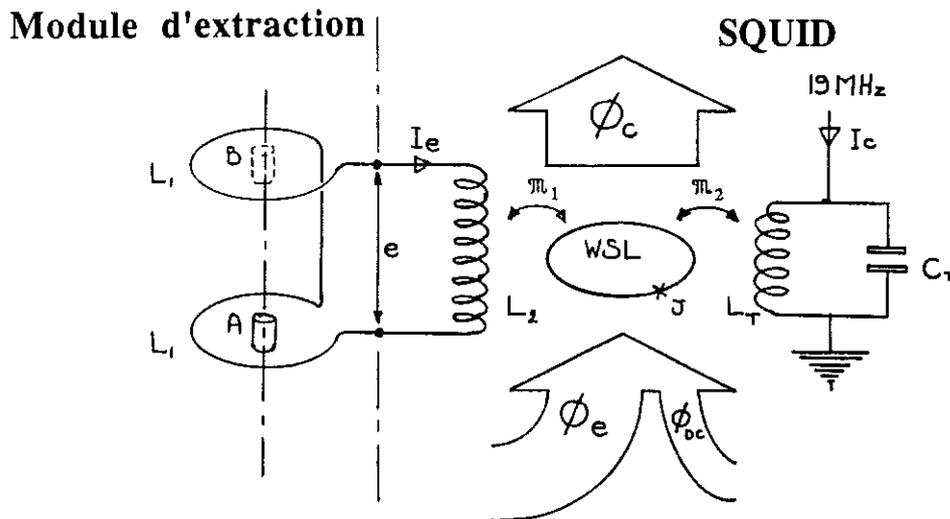


Figure I.5 : Principe du magnétomètre à SQUID  
 utilisé au laboratoire Louis Néel

Le champ magnétique est produit par une bobine supraconductrice en fil de Niobium-Titane permettant d'obtenir des champs compris entre quelques Oe et 70 kOe. Cette bobine est refroidie dans un bain d'hélium liquide contenu dans un cryostat constitué de deux enveloppes. Pour isoler thermiquement le bain d'hélium, un très bon vide est effectué entre les deux enveloppes. Les pertes par rayonnement sont très fortement réduites par un grand nombre de couches de super isolant entourant l'enveloppe intérieure.

Le système de régulation de température de l'échantillon utilise un anti-cryostat à flux gazeux. L'enceinte où est situé l'échantillon est fermée par un échangeur relié au bain principal d'hélium par une fuite calibrée. Un pompage primaire maintient une pression d'hélium de 2 torrs et par suite, une température de base d'environ 1.4 K. Le chauffage s'effectue au niveau de l'échangeur sur lequel sont bobinés un enroulement chauffant et des thermomètres destinés à la régulation de la température. L'apport calorifique du flux gazeux permet d'obtenir sur l'échantillon la température désirée. Celle-ci est mesurée au niveau de l'échantillon par une résistance de carbone ou de B - Ru pour  $T \leq 50$  K et au delà de 50 K par un thermomètre constitué par du fil de platine bobiné sur le tube entourant l'échantillon.

**C H A P I T R E   I I**

***MAGNETISME   DANS   LES   ALLIAGES  
AMORPHES   TERRE   RARE-METAL  
DE   TRANSITION***



## II-1 - ARRANGEMENT ATOMIQUE

La représentation schématique la plus simple d'un arrangement atomique amorphe est celle d'un assemblage aléatoire de sphères dures. Une analyse plus détaillée révèle en fait l'existence d'un certain ordre à courte distance déterminé par la liaison chimique à l'origine de la formation de l'état solide. Cet ordre présente en général certaines similitudes avec celui observé à longue distance à l'état cristallin. Mais des différences essentielles sont à noter. L'arrangement atomique n'est pas périodique. Il en résulte qu'il est moins compact que celui d'un matériau cristallin. L'environnement local des atomes est en général de très basse symétrie, il diffère d'un atome à l'autre. Les propriétés physiques observées à l'échelle macroscopique sont moyennées sur l'ensemble des atomes et présentent un caractère pratiquement isotrope.

Depuis 15 ans environ, de nombreux alliages amorphes terre rare-métal de transition ont été obtenus pour des compositions variant entre  $R_{0.02}M_{0.98}$  et  $R_{0.98}M_{0.02}$  [II.1-3]. Dans le présent travail, nous avons préparé des alliages  $R_{1-x}Co_x$  pour  $0.6 \leq x \leq 1$ . Nous avons étudié plus particulièrement des alliages de composition  $R_{0.33}Co_{0.67}$ . Givord et al [II.4] ont analysé, en utilisant la diffraction des RX et des neutrons, l'arrangement atomique dans un alliage de même composition chimique mais, dans lequel le métal de transition est le nickel et non le cobalt. En raison de la grande similitude entre les propriétés chimiques de ces métaux, on peut supposer que les arrangements atomiques dans les alliages  $R_{0.33}Co_{0.67}$  sont très semblables à ceux qu'ils ont décrits. Les fonctions d'interférence caractérisant l'alliage amorphe  $Y_{0.33}Ni_{0.67}$  et les fonctions de distribution radiale  $W(r)$  déduites par transformation de Fourier sont présentées sur les figures II.1 et II.2 respectivement. Les positions des trois premiers maxima sur la figure II.2 correspondent aux distances interatomiques Ni-Ni, Ni-Y et Y-Y qui sont reportées dans le tableau II.1 et comparées à celles caractérisant le composé phase de Laves  $YNi_2$ . Les distances Y-Y sont supérieures dans l'alliage amorphe, conséquence directe de la plus faible densité. Les distances Y-Ni et Ni-Ni sont au contraire inférieures. En effet, dans le composé cristallisé  $YNi_2$ , les atomes de Ni occupent un site en position particulière ; les distances Ni-Ni sont liées au paramètre cristallographique  $a$  et dépendent donc indirectement des distances interatomiques Y-Y.

Tableau II.1

	Premières distances			nombres de coordination		
	crystallisé	amorphe	diamètre de Goldsmidt	crystallisé	modèle amorphe	statistique
Y-Y	3,11	3,40	3,60	4	4	5,6
Y-Ni	2,98	2,80	3,04	12	12	10,4
Ni-Y				6	6	4,2
Ni-Ni	2,54	2,45	2,48	6	5,5	7,8

Le modèle de structure déduit des résultats expérimentaux permet de calculer les fonctions  $F(k)$  théoriques jusqu'à des valeurs très grandes du vecteur de diffusion  $\vec{k}$ . Celles-ci sont comparées aux fonctions expérimentales sur la figure II.1. Les nombres de coordination obtenus sont présentés dans le tableau II.1. Leurs valeurs sont beaucoup plus proches de celles caractérisant le composé cristallisé que de celles qui correspondraient à un arrangement totalement désordonné. Ils montrent qu'un atome de nickel tend à s'entourer d'atomes d'yttrium et réciproquement. Ce phénomène peut être simplement attribué à la différence d'électronégativité entre les éléments de terres rares et de transition.

## II-2 - MAGNETISME d DANS LES ALLIAGES INTERMETALLIQUES

### II-2-1 - Moment magnétique

Le magnétisme des alliages cristallisés terre rare-métal de transition a été étudié de façon approfondie depuis de nombreuses années. La bande d est formée de l'association d'une bande 3d étroite et d'une bande 5d (4d pour l'yttrium) plus large. Lors de la formation d'un alliage, les électrons 5d ont tendance à remplir les orbitales 3d d'énergie plus basse. Un calcul de bande dans les composés  $YM_2$  a montré que le transfert électronique est d'environ 2/3 d'électron 4d par atome d'yttrium [II.5]. Ce transfert modifie l'écrantage des potentiels nucléaires et provoque le rapprochement des deux bandes. Il en résulte une hybridation des états 3d et 5d d'énergies voisines (figure II-3). Ces effets conduisent à une diminution du moment 3d lorsque la teneur en élément allié R augmente (figure II.4). Dans le cas du nickel, le moment s'annule au voisinage de la composition  $YNi_5$ . Dans les composés du cobalt, le même phénomène se produit pour la composition  $YCo_2$ . Du fer pur au composé  $YFe_2$ , le moment des atomes de fer décroît de  $2.2 \mu_B$  à  $1.5 \mu_B$ .

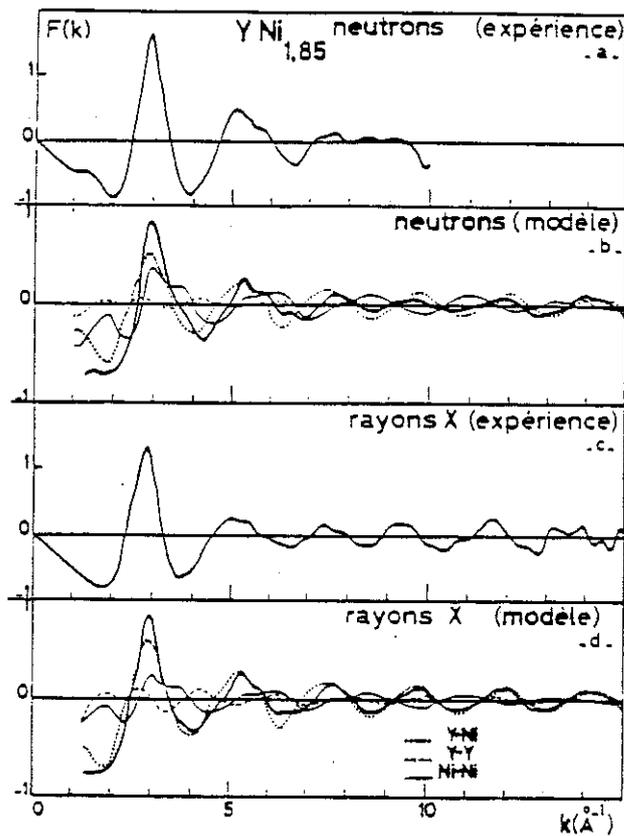


Figure II.1 : Fonctions d'interférence  $F(k)$  expérimentales et calculées de l'alliage  $YNi_{1.85}$  [II.4].

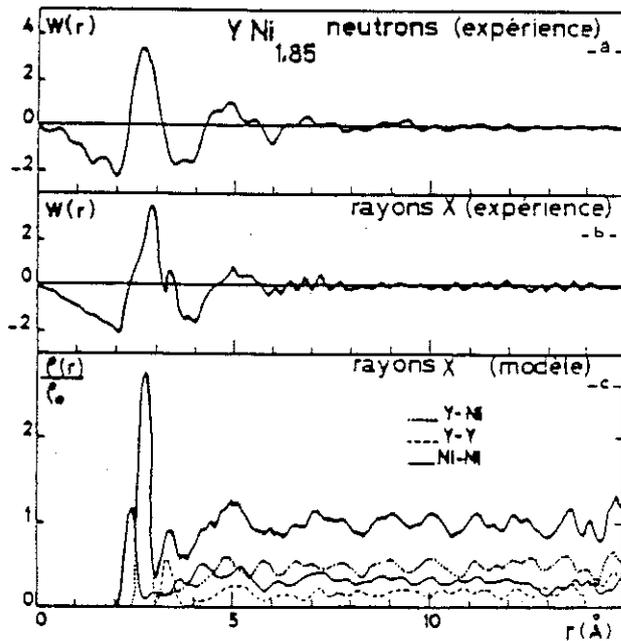


Figure II.2 : Fonctions  $W(r)$  expérimentales et fonctions  $\rho(r)/\rho_0$  calculées de l'alliage amorphe  $YNi_{1.85}$  [II.4].

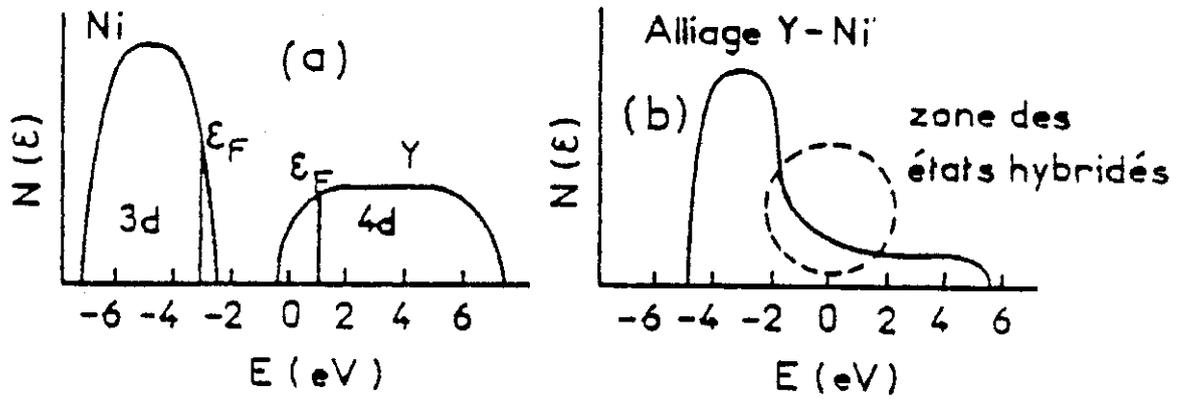


Figure II.3 : Schéma de la modification de la structure de bande lors de la formation d'un alliage 3d-4f [II.28].

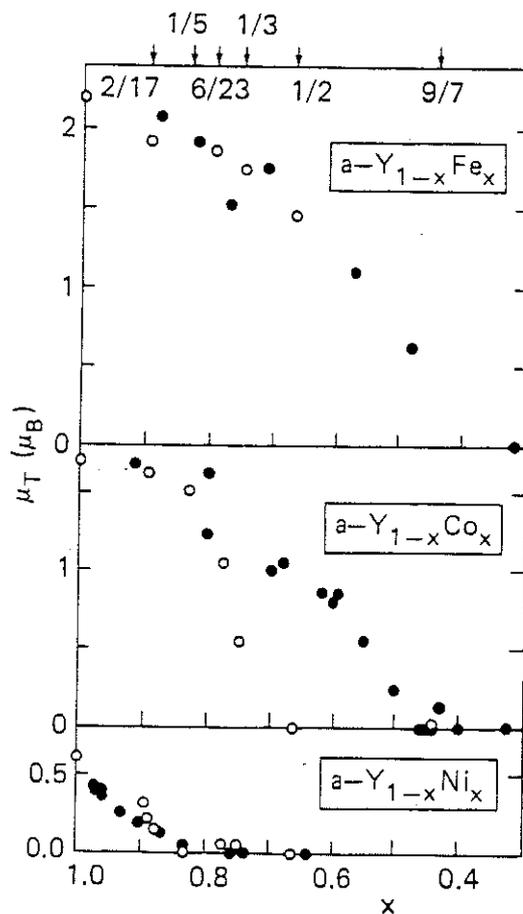


Figure II.4 : Variation du moment magnétique de fer, du cobalt et du nickel en fonction de la concentration en métal 3d dans les alliages Y-M (M = Fe, Co, Ni) [II.15].

Williams et al [II.6] ont discuté les variations de l'aimantation en fonction de la composition dans plusieurs séries d'alliages en utilisant l'interprétation de Friedel [II.7] de la courbe de Slater-Pauling pour les alliages de métaux de transition. Dans cette approche, l'aimantation de l'alliage n'est plus considérée en termes d'atomes magnétiques ou non magnétiques mais plutôt en terme de moment magnétique moyen par atome présent. Soient  $N_{\uparrow}$  et  $N_{\downarrow}$  le nombre d'électrons de valence de chaque état de spin. La valence chimique est :

$$Z = N_{\uparrow} + N_{\downarrow} \quad (\text{II.1})$$

et le moment magnétique moyen par atome est :

$$M = N_{\uparrow} - N_{\downarrow} \quad (\text{II.2})$$

$$= 2 N_{\uparrow} - Z \quad (\text{II.3})$$

Dans les métaux de transition, les électrons de valence peuvent être séparés en électrons itinérants sp et électrons plus localisés d :

$$N_{\uparrow} = N_{d\uparrow} + N_{sp\uparrow} \quad (\text{II.4})$$

où  $N_{d\uparrow}$  et  $N_{sp\uparrow}$  sont respectivement le nombre d'électrons d et sp dans la bande d'état de spin  $\uparrow$ .

Introduisant le concept de valence magnétique [II.6],

$$Z_m = 2 N_{d\uparrow} - Z \quad (\text{II.5})$$

On en déduit :

$$M = Z_m + 2 N_{sp\uparrow} \quad (\text{II.6})$$

L'idée de base du modèle de Friedel [II.7] pour interpréter le magnétisme dans les alliages de métaux de transition est la suivante : en remplaçant un atome d'une matrice Fe, Co ou Ni par un atome de métal de transition de début de série (Cr, V, Ti ...), on enlève 5 états d au-dessous du niveau de Fermi  $E_F$  et on introduit 5 autres états d au-dessus de  $E_F$ . Dans les ferromagnétiques forts, le moment magnétique peut ainsi être évalué d'après l'équation (II-6) en remplaçant  $Z_m$  par :

$$Z_m = 2 N_{d\uparrow} (1-x) - Z_M (1-x) - x Z_M' \quad (\text{II.7})$$

où  $M$  et  $M'$  font respectivement référence à la matrice et à l'élément allié. En supposant  $N_{sp\uparrow}$  constant, l'aimantation varie linéairement avec  $Z_m$ . Elle varie aussi linéairement avec le pourcentage d'électrons par atome tel qu'utilisé habituellement dans la courbe de Slater-Pauling [II-8]. Cette approche montre que tant que le ferromagnétisme reste fort, on peut évaluer l'aimantation sans connaître en détail les effets de transfert électronique et d'hybridation.

La variation de l'aimantation dans les alliages R-M peut être interprétée en considérant les éléments de terre rare dont la configuration électronique externe est  $5d^16s^2$  ( $4d^15s^2$  pour l'yttrium), comme des éléments de transition de début de série. On a dans ce cas  $Z_{Fe} = 8$ ,  $Z_{Co} = 9$ ,  $Z_{Ni} = 10$  et  $Z_Y = 3$ . Pour calculer la variation du moment atomique  $M$  en fonction de  $Z_m$ , il reste à évaluer la valeur de  $2 N_{sp\uparrow}$ .

De Ni pur à  $YNi_5$  (figure II-5), la variation expérimentale correspond approximativement à la courbe prévue par le modèle pour  $2N_{sp\uparrow} = 0.6$ , valeur habituelle de  $2N_{sp\uparrow}$  pour les métaux de transition purs. De Co pur à  $YCo_5$ , les points expérimentaux correspondent également à la courbe théorique, mais en attribuant à  $2N_{sp\uparrow}$  la valeur 0.9. Une telle valeur de  $2N_{sp\uparrow}$  a déjà été obtenue par Williams et al dans les composés intermétalliques Y-Fe et Y-Co [II.9]. Elle a été confirmée par les calculs de bande [II.6]. La variation du moment du cobalt observée correspond alors au caractère ferromagnétique fort de ces composés. Pour  $Y_2Co_7$  et les composés plus riches en yttrium, le moment magnétique par atome est plus faible que la valeur calculée. Le cobalt perd dès lors son caractère ferromagnétique fort et la séparation de la bande 3d diminue jusqu'à disparaître complètement pour  $YCo_2$ .

Dans les composés intermétalliques Y-Fe, considérant  $2N_{sp\uparrow} \sim 0.9$  comme dans les alliages Y-Co, le moment magnétique expérimental est inférieur à la valeur calculée. Cela correspond à un caractère de ferromagnétique faible. Au fur et à mesure que la concentration en yttrium augmente, les valeurs expérimentales se rapprochent de la courbe théorique révélant ainsi que le fer tend à devenir un ferromagnétique fort [II.10]. Les calculs de bande de Williams et al [II.11] montrent effectivement que dans les alliages à base de fer, le ferromagnétisme fort peut se trouver satisfait pour une concentration finie en atomes alliés non magnétiques, alors qu'il ne l'est pas dans le fer pur.

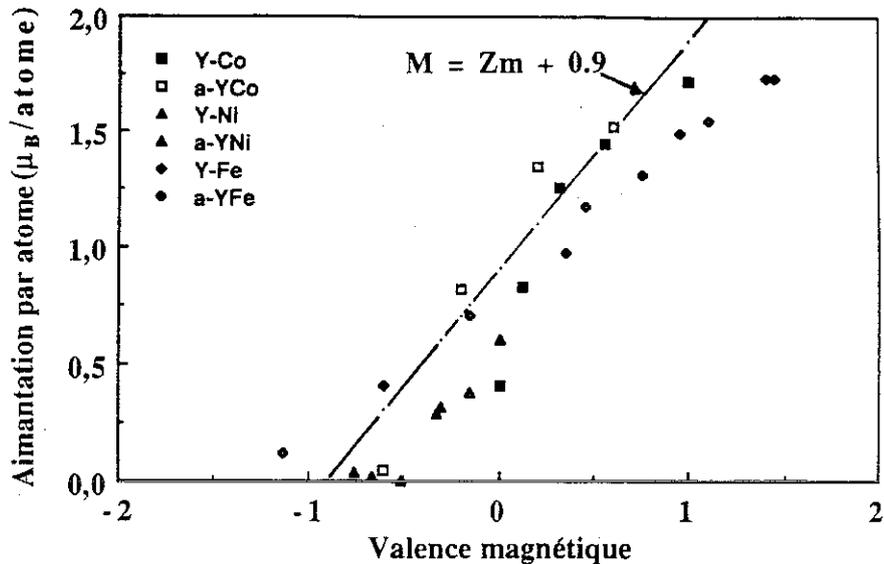


Figure II.5 : Variation du moment magnétique moyen par atome en fonction de la valence magnétique dans les alliages Y-M (M = Fe, Co, Ni) cristallisés et amorphes. Les valeurs expérimentales ont été déduites des mesures d'aimantation reportées dans la référence [II.17].

Les variations du moment magnétique moyen par atome en fonction de la valence magnétique  $Z_m$  dans les composés amorphes Y-Fe, Y-Co et Y-Ni sont comparées à celles des composés cristallisés sur la figure II-5. De façon générale, les variations observées sont similaires à celles des composés cristallisés. Ce résultat confirme la validité de l'approche développée : en première approximation, le moment magnétique moyen ne dépend pas des détails des arrangements atomiques, mais est déterminé par la composition chimique, que le système soit cristallisé ou amorphe. On remarque cependant au fur et à mesure que la concentration en yttrium augmente, que le moment des alliages amorphes devient supérieur à celui des alliages cristallisés correspondants. En effet, la plus faible densité à l'état amorphe et la perte de périodicité entraînent une plus grande localisation des électrons 3d. La diminution du transfert et de l'hybridation associées permettent de conserver le caractère ferromagnétique fort dans une plus grande gamme de concentration. De plus au voisinage de la concentration critique de disparition du magnétisme, les effets d'environnement deviennent importants. Considérons un alliage amorphe dont la composition chimique moyenne correspond à celle de disparition du magnétisme:  $RCO_2$  par exemple. En raison de la diversité des environnements, dans certaines zones la concentration en cobalt est supérieure à la moyenne et le cobalt y porte donc un moment magnétique. Cet effet est amplifié du fait que les interactions magnétiques résultantes entraînent une polarisation de l'ensemble des moments magnétiques du cobalt de l'alliage. Les deux phénomènes décrits ci-dessus expliquent que la concentration critique de disparition du magnétisme dans les amorphes soit supérieure à celle observée à l'état cristallisé.

## II-2-2 Interactions d'échange

La figure II-6 représente la variation de la température de Curie des alliages cristallisés Y-Fe, Y-Co et Y-Ni en fonction de la concentration en yttrium. La température de Curie des alliages Y-Ni et Y-Co décroît progressivement lorsque la concentration en yttrium allié augmente. Elle est approximativement proportionnelle au carré de l'aimantation (figure II-7). Ceci montre que dans ces composés les interactions Co-Co et Ni-Ni ne sont pas fortement affectées par les changements d'environnement local.

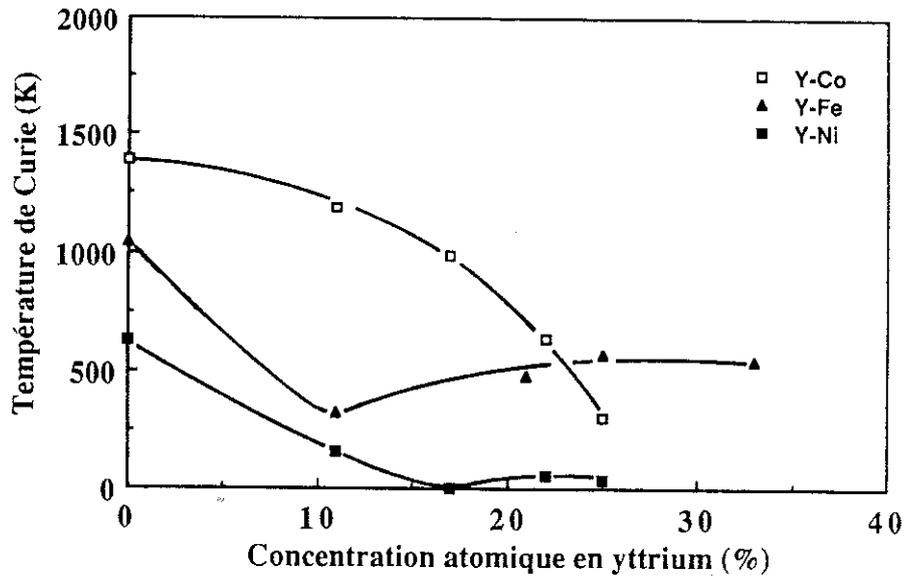


Figure II.6 : variation de la température de Curie des alliages cristallisés Y-M (M = Fe, Co, Ni) en fonction de la concentration en yttrium.

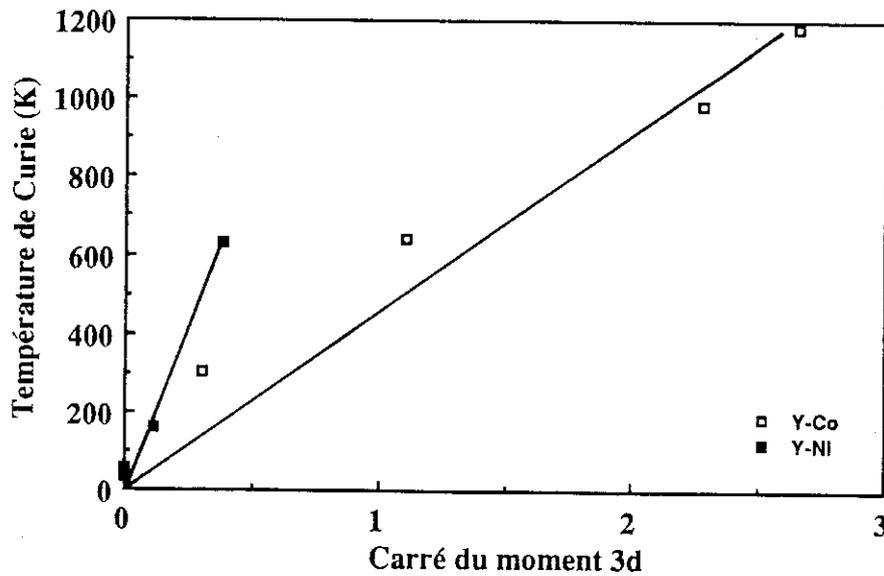


Figure II.7 : Variation de la température de Curie des alliages Y-Co et Y-Ni en fonction du carré du moment 3d.

Dans les composés Y-Fe la variation de la température de Curie en fonction de la concentration en yttrium est très différente de celle observée dans les composés Y-Co et Y-Ni : de  $Y_2Fe_{17}$  à  $YFe_2$ , la température de Curie augmente de 310 K à 510 K. Une telle variation de  $T_c$  peut être due soit à la variation des valeurs des moments locaux, soit à celle de l'intensité des interactions entre moments. Afin de séparer la contribution du moment magnétique  $M_{Fe}^2$  de celle des interactions d'échange représentées par le coefficient de champ moléculaire  $n_{FeFe}$  qui est proportionnel au rapport  $T_c/M_{Fe}^2$ , les valeurs de ce rapport sont présentées sur le tableau II.2, pour les composés Y-Fe et Lu-Fe. Elles décroissent lorsque le pourcentage d'atomes de terre rare augmente.

Tableau II.2

	$RFe_2$		$RFe_3$		$R_6Fe_{23}$		$R_2Fe_{14}B$		$R_2Fe_{17}$	
	Y	Lu	Y	Lu	Y	Lu	Y	Lu	Y	Lu
$T_c/M_{Fe}^2$ (K/ $\mu_B^2$ )	258	277	186		137	140	125	129	81	71

Alors que le moment du fer est plus grand dans  $Y_2Fe_{17}$  que dans  $YFe_2$ , la réduction de  $n_{FeFe}$  pour les alliages riches en fer est responsable de la faible valeur de  $T_c$  dans  $Y_2Fe_{17}$  (310 K) par rapport à  $YFe_2$  (570 K). On constate d'ailleurs que sur certains sites atomiques, des interactions négatives entre atomes de fer sont présentes [II.9]. Ces fortes variations de  $n_{FeFe}$  peuvent être attribuées à la variation des distances interatomiques, ou à des effets d'environnement local. Dans les composés  $R_2Fe_{17}$  la variation de la température de Curie en fonction de la variation relative de volume  $\omega(=\Delta V/V)$  a été déduite par Givord et Lemaire [II.12] de la variation de la température de Curie avec la pression :

$$\frac{\partial T_c}{\partial \omega} = 1900 \text{ K} \quad (\text{II.8})$$

Supposons que cette valeur de  $\partial T_c/\partial \omega$  décrit dans les composés R-Fe la variation des interactions magnétiques avec les distances interatomiques Fe-Fe. A la variation de ces distances entre les composés  $R_2Fe_{17}$  et  $RFe_2$ , qui est d'environ 2%, correspond alors une variation calculée de la température de Curie  $\Delta T_c \sim 100$  K. La différence entre les valeurs expérimentales est deux fois et demi plus importante bien qu'on n'ait pas tenu compte, dans cette analyse, de la valeur plus faible du moment du fer dans les composés  $RFe_2$  qui devrait entraîner une forte réduction de  $T_c$ . On peut donc conclure que les valeurs de  $n_{FeFe}$  doivent être fortement influencées par les effets d'environnement local. Un tel comportement a été observé dans le fer pur :  $\alpha$ -Fe qui a une structure cc est

ferromagnétique avec une température de Curie de 1043 K tandis que  $\gamma$ -Fe qui a une structure cfc n'est pas ordonné magnétiquement. Ce phénomène peut être décrit en termes de coordination locale des atomes Fe. La figure II-8 représente la variation de  $T_C/M_{Fe}^2$  en fonction du nombre de coordination locale moyen dans les composés intermétalliques Y-Fe et Lu-Fe. Les interactions entre atomes de fer décroissent régulièrement au fur et à mesure que  $c_n$  augmente de 6 ( $RFe_2$ ) à 10 ( $R_2Fe_{17}$ ). La figure II.8 prédit le ferromagnétisme du fer- $\alpha$  ( $c_n = 8$ ) ainsi que le non ferromagnétisme du fer- $\gamma$  ( $c_n = 12$ ). Les calculs de bandes expliquent le comportement ci-dessus [II.13] : les fortes interactions ferromagnétiques sont associées aux structures moins compactes dans lesquelles la coordination locale des atomes Fe est faible. Les interactions Fe-Fe sont considérablement réduites et l'antiferromagnétisme peut parfois apparaître dans les structures très compactes, où la coordination locale des atomes Fe est maximale ( $\gamma$ -Fe,  $R_2Fe_{17}$ ).

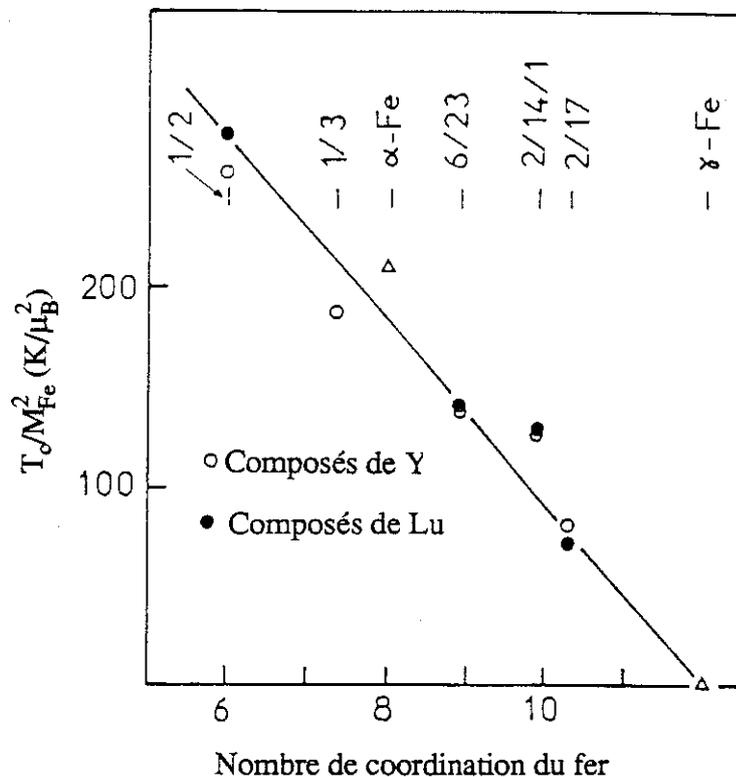


Figure II.8 : Variation de  $T_C/M_{Fe}^2$  en fonction du nombre de coordination locale moyen  $c_n$  dans les composés intermétalliques Y-Fe et Lu-Fe [II.9].

Les températures de Curie des alliages amorphes Y-M (M=Fe, Co, Ni) sont comparées à celles des composés cristallisés correspondants sur le tableau II-3. De même que les composés cristallisés, les alliages amorphes Y-Ni et Y-Co sont ferromagnétiques. La température de Curie décroît lorsque la teneur en yttrium augmente. Elle est approximativement proportionnelle au carré des moments magnétiques. Les variations

observées sont similaires à celles caractérisant les composés cristallisés. Ainsi à l'état amorphe comme à l'état cristallisé, les interactions d'échange sont peu sensibles aux variations de distances ou aux modifications d'environnements.

Tableau II.3 : Température d'ordre magnétique dans les composés cristallisés et amorphes Y-M [II.15].

	T = Fe		T = Co		T = Ni	
	cristallisé	amorphe	cristallisé	amorphe	cristallisé	amorphe
Y <sub>2</sub> M <sub>17</sub>	300	100 (410*)	1186	>1000	160	150
YT <sub>3</sub>	549	89	305	890	33	20
YT <sub>2</sub>	542	67	-	580	-	-
x <sub>c</sub>		0,4	(0,7)	0,5	(0,7)	0,78

\* Température de Curie pour l'hydrure.

Les alliages Y-Fe amorphes ne sont pas des ferromagnétiques. Certaines interactions négatives entre atomes de fer sont présentes. Par analogie avec le comportement observé à l'état cristallisé, elles peuvent être associées aux régions où la coordination entre atomes de fer est maximale et les distances interatomiques les plus courtes. Des interactions positives existent également, associées aux grandes distances interatomiques. L'arrangement magnétique résultant n'est pas colinéaire ; un ordre ferromagnétique à courte distance existe cependant. Au fur et à mesure que la concentration en atomes de fer augmente, la structure magnétique évolue du type spéromagnétique (distribution des moments atomiques dans toutes les directions de l'espace) dans a-YFe<sub>2</sub> au type aspéromagnétique [II.14] (distribution des moments atomiques dans un angle solide plus restreint) dans les alliages riches en fer (figure II.9).

### II-3 MAGNETISMES 3d ET 4f DANS LES ALLIAGES INTERMETALLIQUES

Lorsque l'atome R est magnétique, les propriétés magnétiques des alliages terre rare-métal de transition résultent des effets combinés des magnétismes 3d et 4f. Nous nous limiterons dans la discussion suivante aux alliages dans lesquels les interactions M-M dominant et déterminent la température d'ordre magnétique. Les principales interactions agissant sur les atomes R sont les interactions d'échange indirectes R-M et les interactions de champ cristallin ; les interactions d'échange entre atomes de terre rare peuvent être négligées. Campbell [II.16] a proposé une description élégante du mécanisme d'interactions R-M. Il considère un mécanisme d'échange positif 4f-5d sur les sites de terre rare associé à un échange direct 5d-3d entre atomes de terre rare et de transition. Les éléments de terre rare sont du point de vue des électrons d des éléments

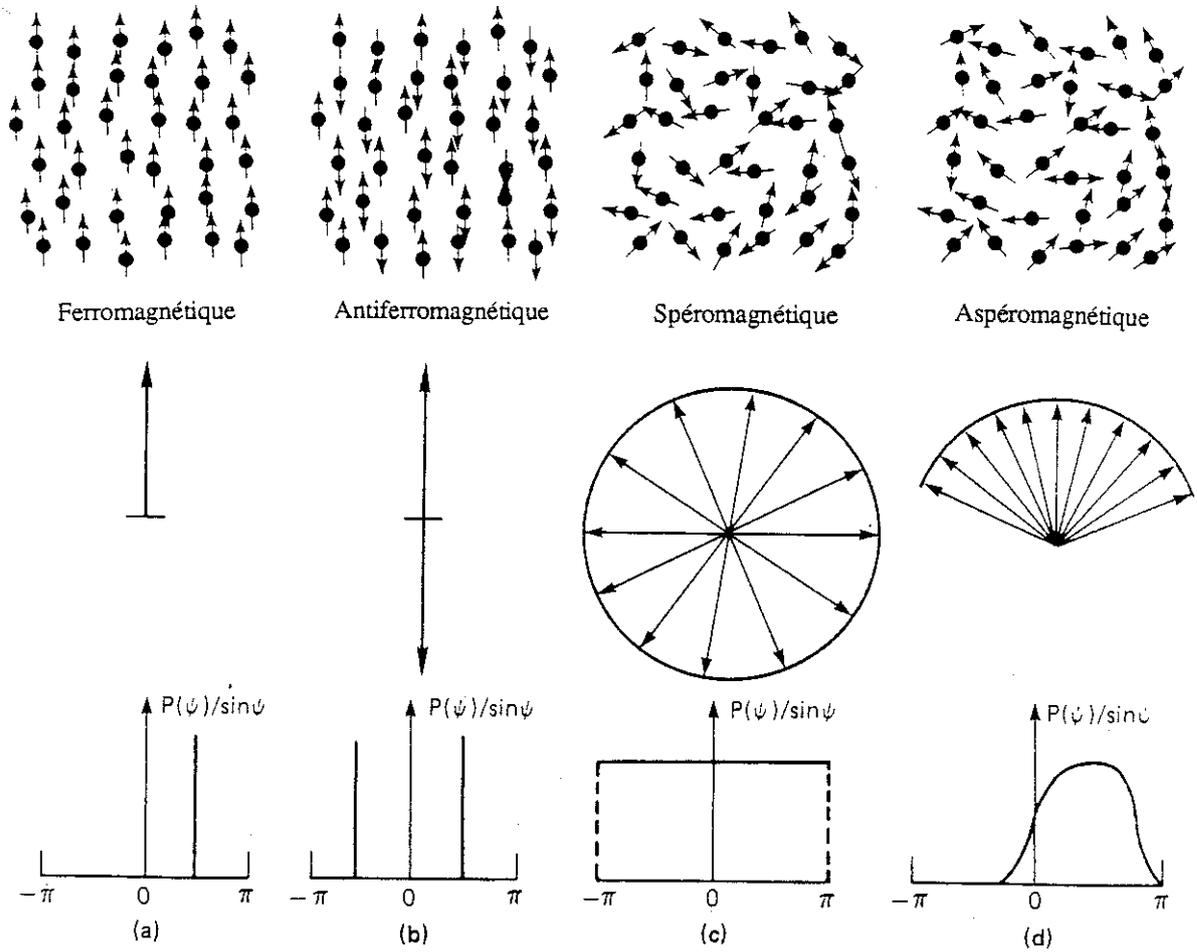


Figure II.9 : Structures magnétiques des alliages amorphes R-M où R est non magnétique et M = Fe, Co ou Ni [II.15]. Cette figure montre la distribution spatiale des directions des moments et la probabilité de distribution angulaire normalisée  $P(\psi)/\sin(\psi)$  correspondante.

de début de série ; le couplage de leurs moments de spin avec ceux des atomes Fe, Co ou Ni doit alors être antiparallèle selon les règles établies par Friedel [II.7]. Par ailleurs, le couplage spin-orbite très fort dans les terres rares lie de façon rigide les spins des électrons 4f à leur orbite ; ce couplage est antiparallèle dans le cas des terres rares légères (couche 4f moins qu'à moitié remplie) et parallèle dans le cas des terres rares lourdes (couche 4f plus qu'à moitié remplie). Les moments orbitaux des électrons 4f étant généralement plus importants que leurs moments de spin, il résulte des effets ci-dessus

que le couplage entre moments magnétiques des éléments de transition et de terres rares est parallèle dans le cas d'une terre rare légère et antiparallèle pour une terre rare lourde (figure II.10).

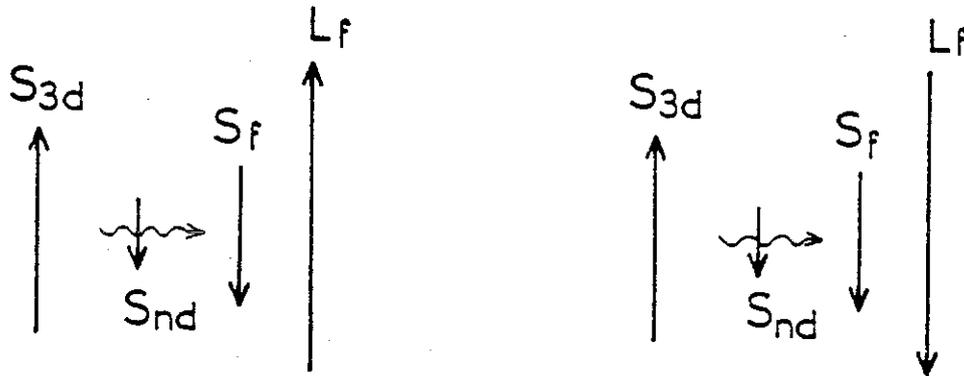


Figure II.10 : Schématisation des interactions d'échange entre moments 3d de M et 4f de R

Les interactions de champ cristallin agissant sur les ions  $R^{3+}$  sont à l'origine de l'anisotropie magnétocristalline qui peut être très importante à basses températures dans les composés de symétrie uniaxiale. Pour décrire la variation thermique de l'anisotropie, il faut considérer que la décomposition des niveaux 4f est essentiellement déterminée par les interactions d'échange R-M. Cette décomposition est donc peu fonction de la température tant que le moment du métal de transition est proche de sa valeur à 0 K, c'est-à-dire jusqu'à des températures supérieures à  $T_c/2$ . La variation thermique de l'anisotropie résulte alors du simple peuplement progressif des niveaux d'énergie de l'ion terre rare lorsque la température augmente ; elle est directement liée à l'importance des interactions d'échange R-M.

A l'état amorphe, les interactions d'échange R-M ne sont pas modifiées de façon significative. Le champ cristallin au contraire est profondément affecté par la perte de symétrie. En effet, les interactions de champ électrostatique définissent une direction locale de facile aimantation dirigée de façon aléatoire. Les structures magnétiques dans les alliages amorphes résultent alors des effets combinés des interactions d'échange M-M, R-M et du champ cristallin. Les interactions d'échange favorisent des arrangements colinéaires de moments magnétiques, le champ cristallin favorise des structures dans lesquelles les moments magnétiques sont dirigés dans toutes les directions de l'espace. Les structures résultantes dépendent de l'importance relative de l'échange à l'anisotropie. Elles ont été décrites par Coey et al [II.14] et sont présentées sur la figure II-11.

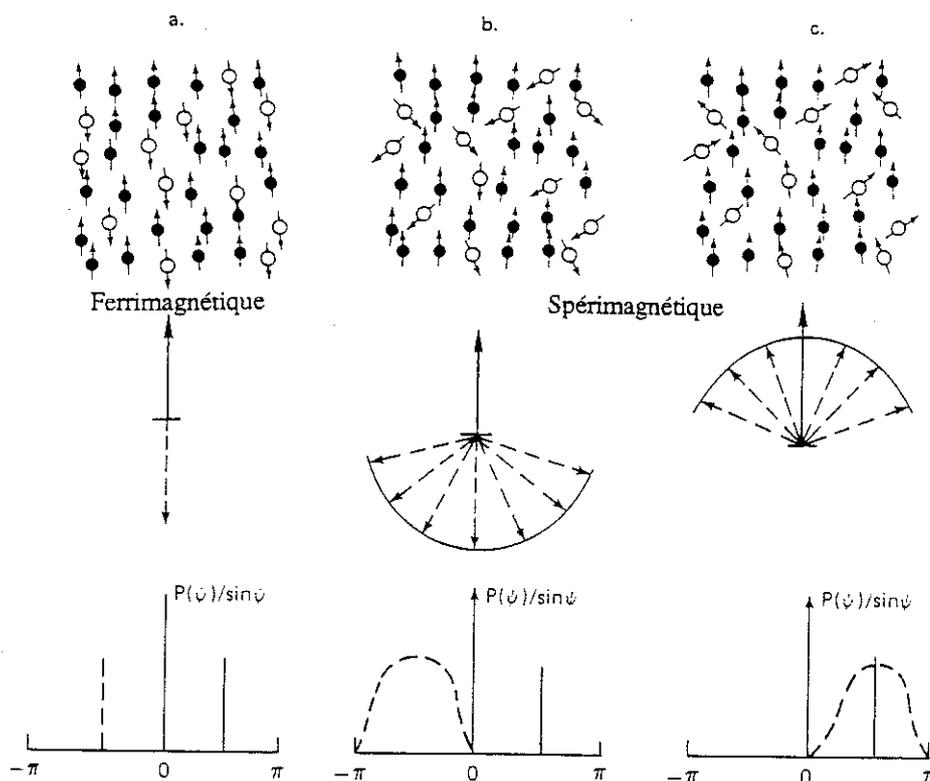


Figure II.11 : Structures magnétiques des alliages amorphes R-M où R est une terre rare magnétique et M = Fe, Co ou Ni [II.15]

## II-4 MESURES D'AIMANTATION

### II-4-1 Alliages amorphes $Y_{1-x}Co_x$ , $La_{1-x}Co_x$ et $Y_{1-x}Ni_x$

Nous avons préparé par pulvérisation cathodique des couches minces d'alliages amorphes à partir de cibles de composition  $Y_{1-x}Co_x$ ,  $La_{1-x}Co_x$  ( $x = 1, 0.9, 0.8, 0.7, 0.6$ ) et  $Y_{1-x}Ni_x$  ( $x = 1, 0.95, 0.9$ ). Les cibles d'environ 30 mm de diamètre, ont été obtenues à partir de métaux purs (Co ou Ni : 4N, Y ou La : 3N). Les substrats étaient constitués de morceaux carrés de verre de type Corning glass de  $22 \times 22 \text{ mm}^2$  de surface et 0.15 mm d'épaisseur. Ils ont été fixés à l'aide de Kapton autocollant sur un disque porte-substrats en cuivre lui-même refroidi par une circulation d'azote liquide. Dans les conditions usuelles de fonctionnement, la vitesse de dépôt pour des cibles de 30 mm de diamètre était comprise entre 40 et 80 Å/mn. Les échantillons préparés, de 1µm d'épaisseur environ, ont été obtenus en 3 h environ; ils ont été immédiatement protégés de l'oxydation par un dépôt de molybdène d'épaisseur comprise entre 50 et 200 Å. La masse précise des échantillons a été déduite de la pesée de substrat effectuée avant et après le dépôt. Le caractère amorphe des couches a été vérifié par diffraction des R X.

Leur composition chimique a été déterminée par microanalyse X. Afin de mettre en évidence l'influence éventuelle de la couche de molybdène protectrice sur les résultats de l'analyse chimique, un échantillon  $Y_{1-x}Co_x$  non protégé a également été analysé. Un spectre typique est présenté sur la figure II.12 ; les résultats obtenus sont rassemblés dans le tableau II.4. Les pourcentages relatifs de terre rare et de métal de transition sont en bon accord avec ceux des cibles excepté pour l'alliage  $Y_{0.4}Co_{0.6}$  ; l'analyse suggère cependant un léger enrichissement en métal de transition dans les couches préparées par rapport à la composition chimique initiale des cibles . Ce phénomène n'est pas forcément significatif si l'on considère les imprécisions dans la calibration du microscope. Les impuretés principales relevées par l'analyse sont : Ar (~1%), In (<1%), Ga (jusqu'à 3%). Ces deux dernières impuretés proviennent de la soudure utilisée pour fixer les cibles sur le porte-cibles. Enfin, l'analyse chimique a révélé un taux très important de Ga dans l'échantillon préparé à partir d'une cible  $La_{0.1}Co_{0.9}$  ; ce phénomène a pu être attribué à la diffusion d'In et Ga dans une cible qui s'est cassée lors de la préparation. Dans la suite de notre étude, nous avons considéré que la composition réelle des couches correspondait à celle déduite de l'analyse chimique. Par ailleurs, l'échantillon obtenu à partir d'une cible de composition  $La_{0.1}Co_{0.9}$  a été éliminé.

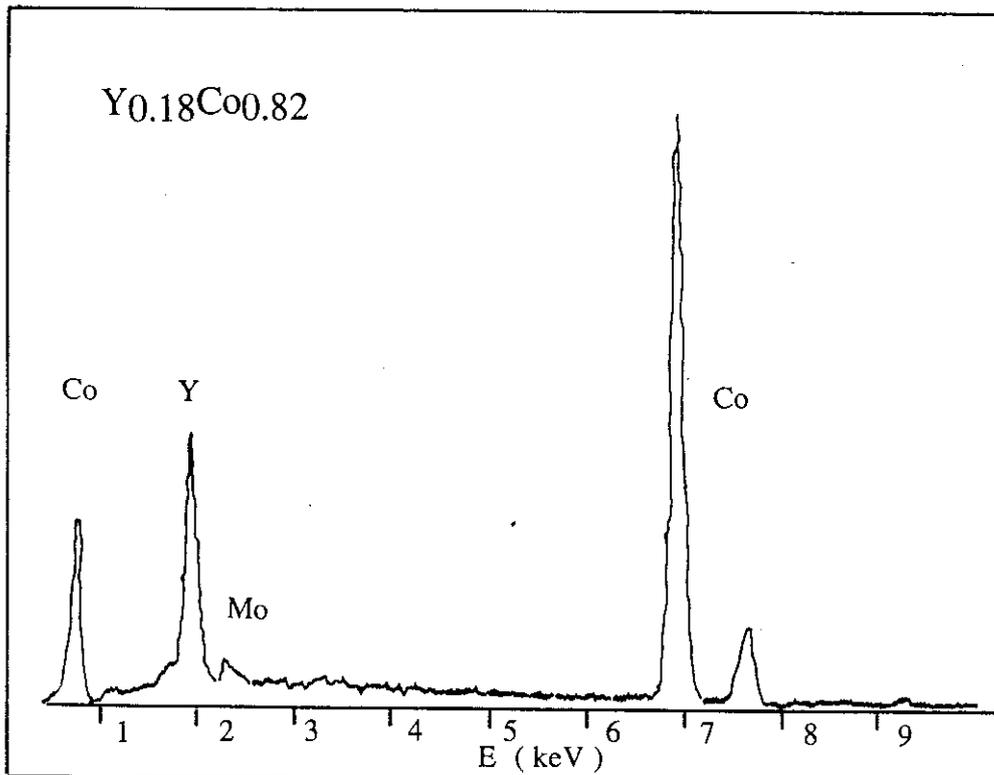


Figure II.12 : spectres d'émission X de l'alliage  $Y_{0.18}Co_{0.82}$

Tableau II.4

Composition Cible	Epaisseur Couche ( $\mu\text{m}$ )	Epaisseur couche protectrice Mo ( $\text{\AA}$ )	Pourcentage atomique obtenu par analyse chimique	Impuretés	Composition chimique relative
$\text{Y}_{0,1}\text{Co}_{0,9}$	1	50	86,47 Co 8,60 Y	2,90 Ga 1,59Mo* 0,44 In	$\text{Y}_{0,09}\text{Co}_{0,91}$
$\text{Y}_{0,2}\text{Co}_{0,8}$	1	50	82,44 Co 17,56 Y	1,20Mo	$\text{Y}_{0,18}\text{Co}_{0,82}$
$\text{Y}_{0,3}\text{Co}_{0,7}$	1	50	69,02 Co 29,98 Y	0,73 Ar 0,26 In	$\text{Y}_{0,30}\text{Co}_{0,70}$
$\text{Y}_{0,3}\text{Co}_{0,7}$	1	sans protection	67,41 Co 27,82 Y	0,67 Ar 3,06 Ga 1,05 In	$\text{Y}_{0,29}\text{Co}_{0,71}$
$\text{Y}_{0,4}\text{Co}_{0,6}$	1	50	47,50 Co 48,93 Y	1,46 Ar 2,10 Mo	$\text{Y}_{0,49}\text{Co}_{0,51}$
$\text{La}_{0,1}\text{Co}_{0,9}$	1	200	56,81 Co 6,60 La	0,24 Ar 2,18 Mo 30,21 Ga 5,16 In	non utilisé
$\text{La}_{0,2}\text{Co}_{0,8}$	1	200	78,67 Co 18,60 La	2,73 Mo	$\text{La}_{0,19}\text{Co}_{0,81}$
$\text{La}_{0,3}\text{Co}_{0,7}$	1	200	67,94 Co 26,70 La	1,13 Ar 2,93 Ga 6,12 Mo	$\text{La}_{0,28}\text{Co}_{0,72}$
$\text{La}_{0,4}\text{Co}_{0,6}$	1	200	60,86 Co 37,80 La	2,33 Ar 5,82 Mo	$\text{La}_{0,39}\text{Co}_{0,61}$
$\text{Y}_{0,05}\text{Ni}_{0,95}$	1	200	92,48 Ni 7,11 Y		$\text{Y}_{0,07}\text{Ni}_{0,93}$
$\text{Y}_{0,1}\text{Ni}_{0,9}$	1	200	84,37 Ni 9,15 Y	6,48 Mo	$\text{Y}_{0,10}\text{Ni}_{0,90}$

\*Le molybdène détecté en impureté correspond à la présence de la couche protectrice.

## MESURES D'AIMANTATION

Les figures II.13 et II.14 montrent les courbes d'aimantation en fonction du champ appliqué dans le plan des couches obtenues à 4.2, 100, 200 et 300 K pour les alliages  $Y_{0.09}Co_{0.91}$  et  $Y_{0.29}Co_{0.71}$  respectivement. Une forte susceptibilité est observée en champs faibles ; elle peut être attribuée à un processus de déplacement des parois. La susceptibilité diminue fortement avant que la saturation ne soit atteinte, processus caractérisant l'existence d'une anisotropie qui fixe les moments dans une direction faisant un certain angle avec le plan de la couche. Dans l'alliage  $Y_{0.09}Co_{0.91}$  le champ nécessaire à la saturation est de 200 Oe à 4.2 K. Les mesures effectuées sur les autres alliages montrent que l'anisotropie diminue lorsque le pourcentage d'yttrium allié augmente. Les variations thermiques de l'aimantation déduite des mesures ci-dessus sont reportées sur la figure II.15. Les températures d'ordre de tous les alliages sont supérieures à la température ambiante sauf pour  $Y_{0.51}Co_{0.49}$  où  $T_c = 23$  K.

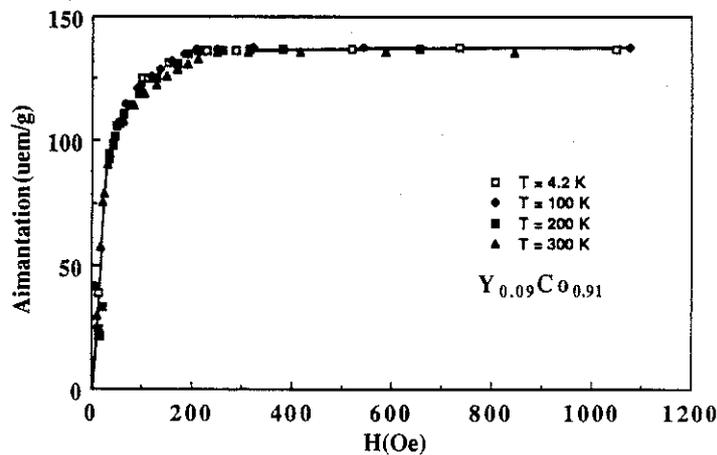


Figure II.13 : Variations isothermes de l'aimantation de l'alliage  $Y_{0.09}Co_{0.91}$ .  
(1 uem/g = 0.011  $\mu_B/Y_{0.09}Co_{0.91}$ )

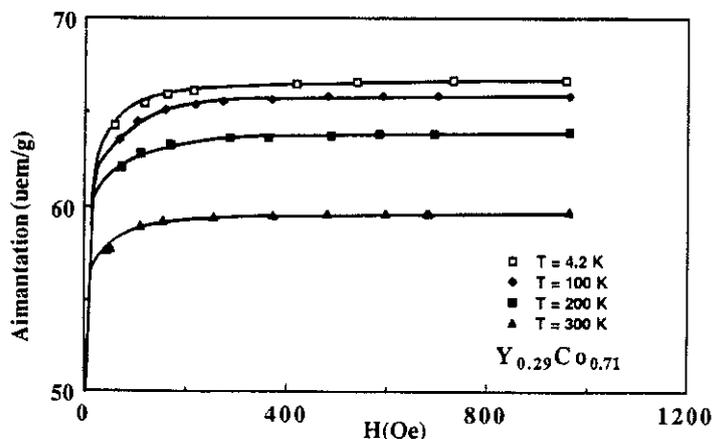


Figure II.14 : Variations isothermes de l'aimantation de l'alliage  $Y_{0.29}Co_{0.71}$ .  
(1 uem/g = 0.012  $\mu_B/Y_{0.29}Co_{0.71}$ )

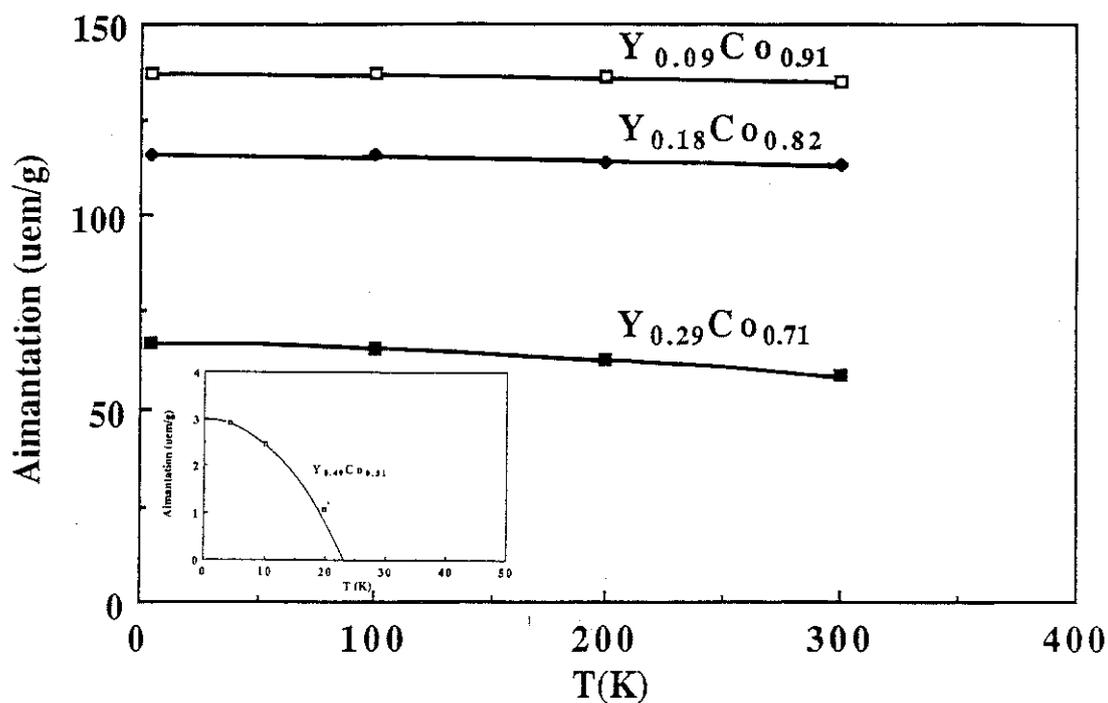


Figure II.15 : Variation thermique de l'aimantation spontanée dans les alliages amorphes Y-Co. L'encart montre la variation thermique de l'aimantation de l'alliage  $Y_{0.49}Co_{0.51}$ .

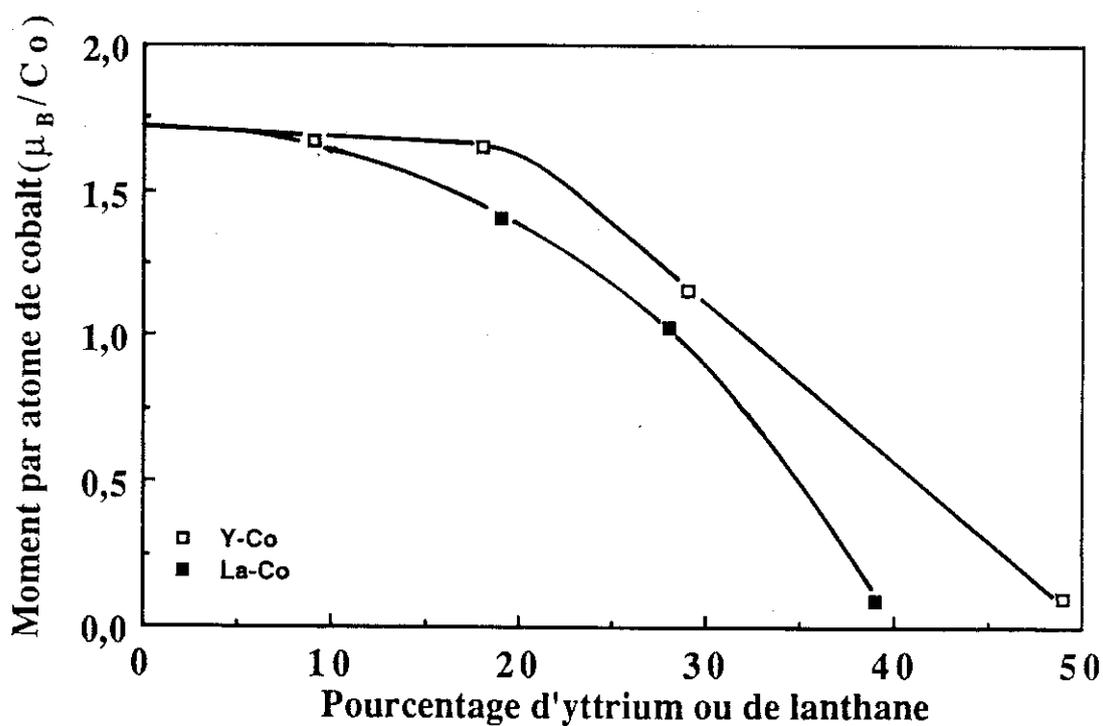


Figure II.16 : Variation du moment 3d dans les alliages amorphes Y-Co et La-Co en fonction du pourcentage de lanthane ou d'yttrium.

Les études décrites dans les chapitres IV et V ayant été effectuées sur des multicouches formées à partir de couches d'épaisseur individuelle 1000 - 1500 Å, nous avons préparé un alliage test de même épaisseur à partir d'une cible  $Y_{0.3}Co_{0.7}$ . La courbe d'aimantation obtenue à 4.2 K est présentée sur la figure II.17. Elle est qualitativement similaire à celle de l'échantillon de 1 µm d'épaisseur. L'analyse des courbes d'aimantation présentées dans les chapitres IV et V met en jeu des aimantations par unité de surface plutôt que des aimantations par unité de volume. Aussi avons-nous déterminé l'aimantation en uem/cm<sup>2</sup> de l'alliage  $Y_{0.29}Co_{0.71}$  ci-dessus (tableau II.5) ; elle a été déduite de la détermination de la surface de l'échantillon. Supposant que la densité de l'alliage est de 6.8 g/cm<sup>3</sup>, inférieure de 8% à la densité de l'état cristallisé, l'épaisseur déduite de la couche est de 1170 Å.

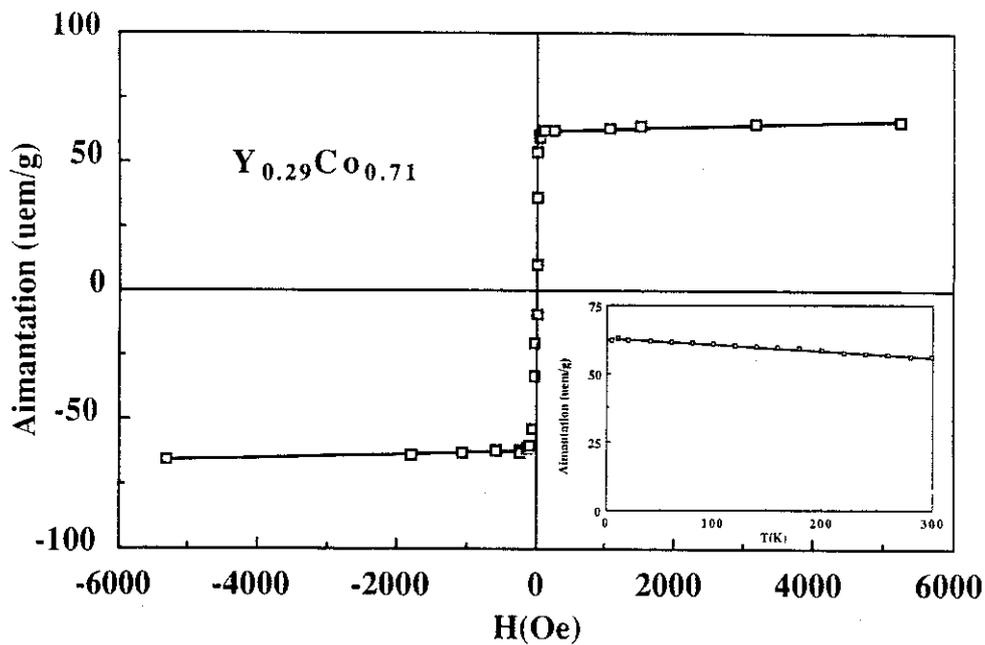


Figure II.17 : Variation de l'aimantation de l'alliage  $Y_{0.29}Co_{0.71}$  en fonction du champ magnétique appliqué à 4.2 K. L'encart représente la variation thermique de l'aimantation spontanée. (Epaisseur = 1170 Å, 1 uem/g =  $7.96 \times 10^{-5}$  uem/cm<sup>2</sup>).

Les mesures d'aimantation effectuées sur les alliages  $La_{1-x}Co_x$  révèlent une susceptibilité en champs faibles très inférieure à celle attendue pour un composé ferromagnétique doux lorsque le champ est appliqué dans le plan de la couche. Dans l'alliage  $La_{0.19}Co_{0.81}$  (figure II.18), l'aimantation ne se sature que dans un champ de 1.1 kOe. Le processus observé en champs faibles révèle l'existence d'une certaine anisotropie qui détermine une direction d'aimantation pratiquement perpendiculaire au plan des

couches. Comme dans les alliages  $Y_{1-x}Co_x$ , l'anisotropie est pratiquement indépendante de la température entre 4.2 et 300 K.

La variation du moment magnétique du cobalt en fonction du pourcentage atomique de terre rare alliée (Y ou La) est représentée sur la figure II.16. De même que dans les composés cristallisés [II.16], l'aimantation des alliages  $La_{1-x}Co_x$  est légèrement inférieure à celle des alliages  $Y_{1-x}Co_x$  pour des concentrations en cobalt identiques.

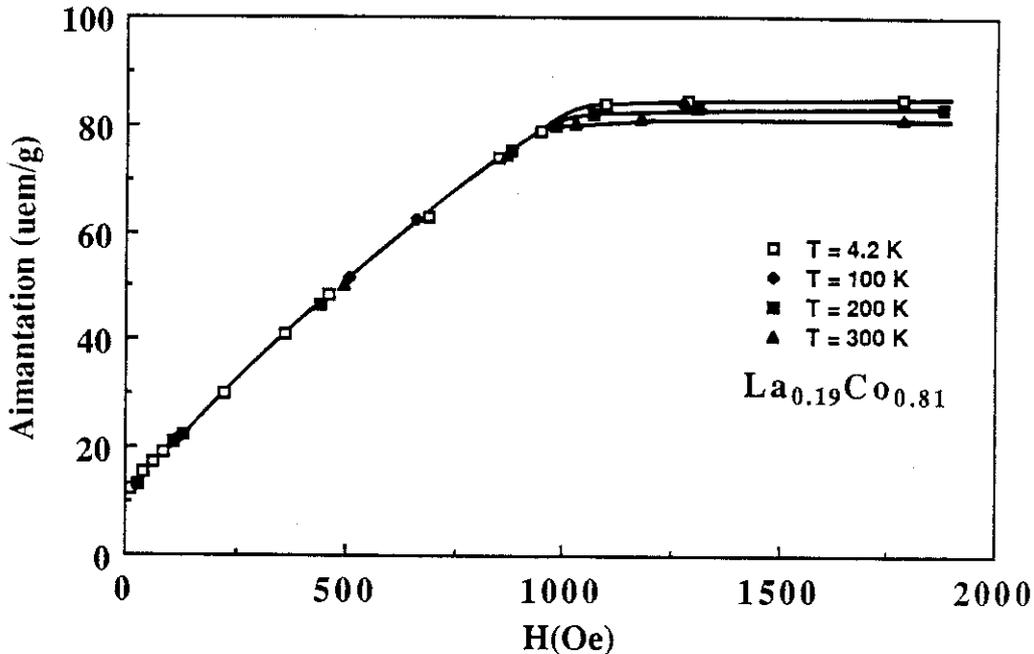


Figure II.18 : Variations isothermes de l'aimantation de l'alliage  $La_{0.19}Co_{0.81}$   
( 1 uem/g = 0.013  $\mu_B/La_{0.19}Co_{0.81}$ )

Les alliages  $Y_{1-x}Ni_x$  se comportent comme des ferromagnétiques doux, les moments de nickel étant dirigés dans le plan des couches (figure II.19 pour l'alliage  $Y_{0.10}Ni_{0.90}$ ). La variation thermique de l'aimantation spontanée déduite des mesures d'aimantation est présentée sur la figure II.20.

### Discussion

Les mesures d'aimantation décrites dans le paragraphe précédent ont été essentiellement entreprises afin d'obtenir des valeurs du moment du métal de transition dans les couches  $Y_{1-x}Co_x$ ,  $La_{1-x}Co_x$  et  $Y_{1-x}Ni_x$  et permettre ainsi la calibration des mesures magnéto-optiques décrites dans le chapitre suivant. Des valeurs du moment magnétique par atome de transition en fonction du pourcentage d'yttrium ou de lanthane allié (figures II.16 et II.20), on a déduit les valeurs des moments par atome d'alliage; elles sont comparées aux valeurs obtenues par d'autres auteurs sur la figure II.5 ; l'accord est satisfaisant.

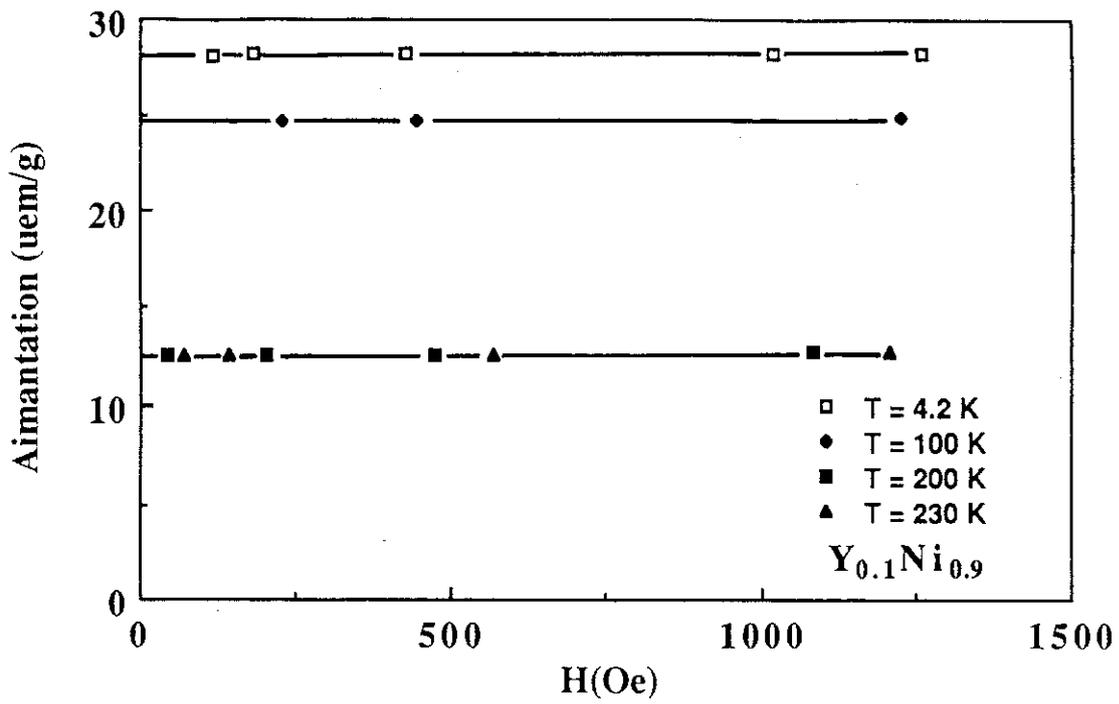


Figure II.19 : Variations isothermes de l'aimantation de l'alliage  $Y_{0.10}Ni_{0.90}$ .  
( 1 uem/g =  $0.011 \mu_B/Y_{0.10}Ni_{0.90}$ )

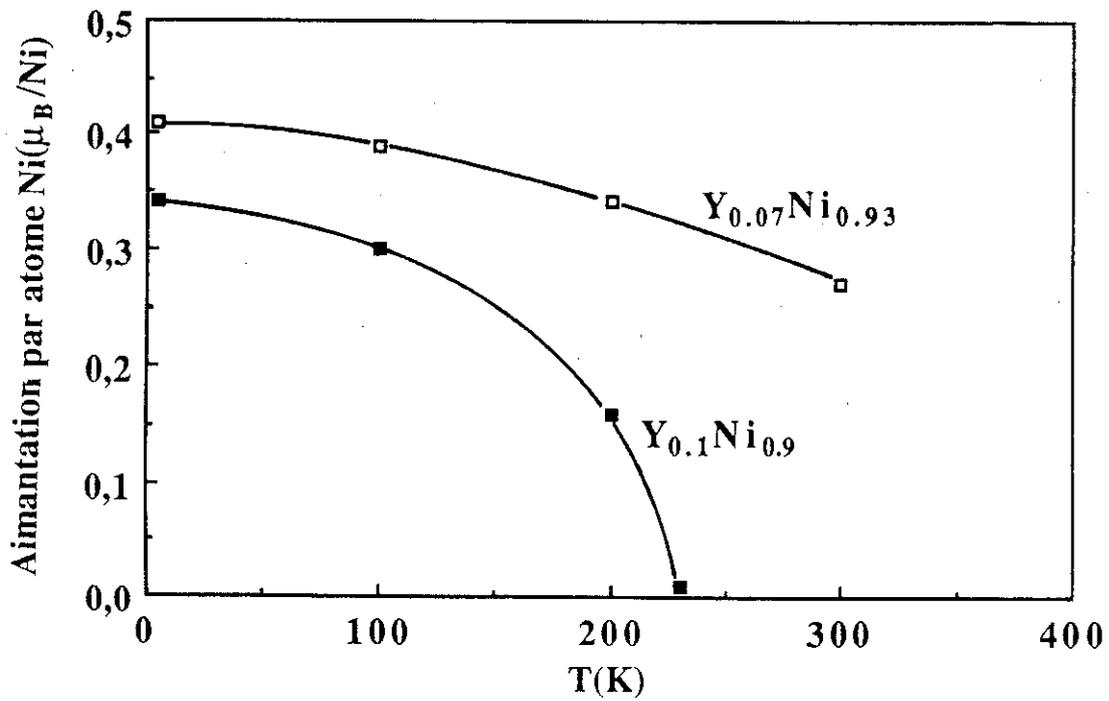


Figure II.20: Variation thermique de l'aimantation spontanée des alliages  $Y_{1-x}Ni_x$

Dans les alliages  $Y_{1-x}Co_x$  et  $La_{1-x}Co_x$  riches en cobalt, nos mesures ont révélé que les moments magnétiques du cobalt font un certain angle avec le plan des couches ; un tel phénomène a déjà été observé dans les alliages Fe-Ni du type permalloy [II.18-19]. Il résulte du fait que la compétition entre l'anisotropie de forme qui tend à fixer les moments dans le plan des couches et une autre anisotropie qui favorise la direction perpendiculaire à ce plan, conduit à l'existence de domaines dénommés domaines en bandes qui consistent en une oscillation périodique de la direction d'aimantation. (figure II.21). Une telle configuration permet aux moments magnétiques de s'éloigner du plan des couches afin de réduire l'énergie d'anisotropie perpendiculaire bien que la constante d'anisotropie correspondante  $K_{\perp}$  soit très inférieure à  $2\pi M_s^2$ .

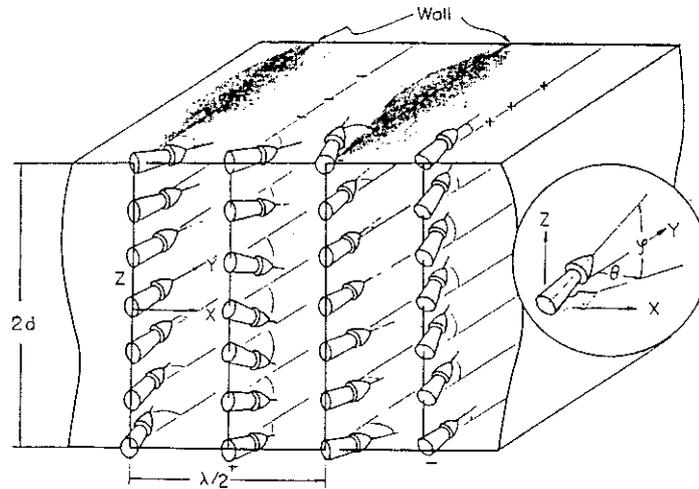


Figure II.21: Représentation schématique des domaines en bandes [II.20].

La stabilité des domaines en bandes a été étudiée théoriquement par différents auteurs [II.20-22]. En dessous d'une certaine épaisseur critique  $e_{cr}$ , les domaines en bandes ne sont plus stables et l'aimantation reste confinée dans le plan des couches ;  $e_{cr}$  vaut :

$$e_{cr} = 2\pi \sqrt{\frac{A}{K_{\perp}}} \quad (II.9)$$

où A est la constante d'échange. La largeur des domaines  $d_{cr}$  vaut alors :

$$d_{cr} = e_{cr} \sqrt{\frac{1-h}{1+h}} \quad (II.10)$$

où

$$h = \frac{H M_s}{2K_{\perp}} \quad (II.11)$$

Par ailleurs la structure de domaines en bandes tend à disparaître sous l'effet d'un champ appliqué dans le plan des couches ; le champ seuil associé est :

$$H_s = \frac{2K_{\perp}}{M_s} \left[ 1 - \frac{2\pi}{e} \sqrt{\frac{A}{K_{\perp}}} \right] \quad (\text{II.12})$$

L'application des relations ci-dessus aux alliages  $Y_{1-x}Co_x$  et  $La_{1-x}Co_x$  conduit aux valeurs  $K_{\perp} = 1.56 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$  dans l'alliage  $Y_{0.09}Co_{0.91}$  ( $A = 10^{-6} \text{ erg/cm}$ ,  $H_s = 250 \text{ Oe}$ ,  $M_s = 1050 \text{ uem/cm}^3$ ,  $e = 1 \mu\text{m}$ ) et  $K_{\perp} = 0.32 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$  dans l'alliage  $Y_{0.29}Co_{0.71}$  ( $A = 6.6 \times 10^{-7} \text{ erg/cm}$ ,  $H_s = 100 \text{ Oe}$ ,  $M_s = 450 \text{ uem/cm}^3$ ).

Dans  $La_{0.19}Co_{0.81}$  ( $A = 10^{-6} \text{ erg/cm}$ ,  $H_s = 1100 \text{ Oe}$ ,  $M_s = 645 \text{ uem/cm}^3$ ),  $K_{\perp}$  vaut  $3.94 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$ . Dans ce dernier système, les moments sont pratiquement perpendiculaires aux plans des couches. Pourtant, l'énergie d'anisotropie perpendiculaire est encore très inférieure à l'énergie d'anisotropie de forme  $2\pi M_s^2$ . En effet, la largeur des domaines en bandes, évaluée à partir de la relation [II.10] est de l'ordre de  $250 \text{ \AA}$ , bien inférieure à l'épaisseur des couches. Il en résulte que le champ démagnétisant vu par les moments magnétiques perpendiculaires au plan des couches ne représente qu'une faible fraction du terme  $2\pi M_s^2$ .

Notons enfin que l'énergie d'anisotropie perpendiculaire est pratiquement indépendante de la température pour les différents échantillons étudiés. Elle ne résulte probablement pas d'une anisotropie magnétocristalline à un ion car, dans ce cas, on aurait une forte variation d'anisotropie entre 4.2 et 300 K. Comme dans les alliages amorphes Gd-Co [II.23], on est conduit à l'attribuer soit à un effet d'ordre de paires atomiques, soit à une microstructure de type colonnaire.

#### II-4-2 Alliages amorphes $R_{0.32}Co_{0.68}$ (R=Nd, Gd ou Er).

Pour mieux cerner les effets résultant du couplage entre couches dans les multicouches d'alliages amorphes terre rare-cobalt, nous avons étudié les propriétés magnétiques d'alliages amorphes  $R_{0.33}Co_{0.67}$  où l'atome R est magnétique (R=Nd, Gd ou Er). Les couches, préparées de la même façon que précédemment et d'épaisseur  $\sim 1500 \text{ \AA}$ , ont été recouvertes d'une couche de molybdène protectrice de  $1000 \text{ \AA}$ . Un échantillon d'alliage Gd-Co d'épaisseur  $1 \mu\text{m}$  a été préparé spécialement en vue d'une analyse chimique. La composition chimique déduite,  $Gd_{0.32}Co_{0.68}$ , correspond pratiquement à celle de la cible. Considérant l'excellente correspondance obtenue en général entre les compositions des cibles et celles des couches, nous avons supposé que les autres

couches avec le néodyme et l'erbium respectivement, avaient la même composition chimique que la couche  $Gd_{0.32}Co_{0.68}$ .

L'aimantation spontanée  $M_s$  des couches  $Gd_{0.32}Co_{0.68}$  décroît plus rapidement lorsque la température augmente que dans les couches Y-Co (figure II.22). Ce comportement est en accord avec le couplage antiparallèle attendu entre les moments magnétiques de Co et Gd. A 4.2 K, l'aimantation spontanée vaut 86.8 uem/g ( $7.92 \times 10^{-3}$  uem/cm<sup>2</sup>) soit  $M_s = 1.40 \mu_B/Gd_{0.32}Co_{0.68}$ . En considérant que le moment atomique de Gd est  $7\mu_B$ , on obtient un moment atomique de  $1.24 \mu_B$  pour le cobalt. Cette valeur est de 17% supérieure à celle obtenue dans les couches  $Y_{0.32}Co_{0.68}$  où le moment atomique de Co déduit de la figure II.16, est  $1.06 \mu_B$  à 4.2 K. Cette augmentation peut être attribuée à un moment additionnel,  $M_{ind}^{Gd-Co} = 0.18\mu_B$ , induit sur les moments de cobalt par les interactions d'échange Gd-Co. Le moment induit est a priori proportionnel à l'intensité des interactions d'échange et peut donc s'exprimer :

$$M_{ind}^{Gd-Co} \propto n_{RM}^{Gd} M_{Gd}^s \quad (II.13)$$

où  $M_{Gd}^s$  est le moment de spin des atomes de gadolinium et  $n_{RM}^{Gd}$  est le coefficient de champ moléculaire [II.24] représentant les interactions d'échange entre moments de spin 3d de Co et 4f de Gd. La relation [II.13] ci-dessus sera utile dans la suite de la discussion.

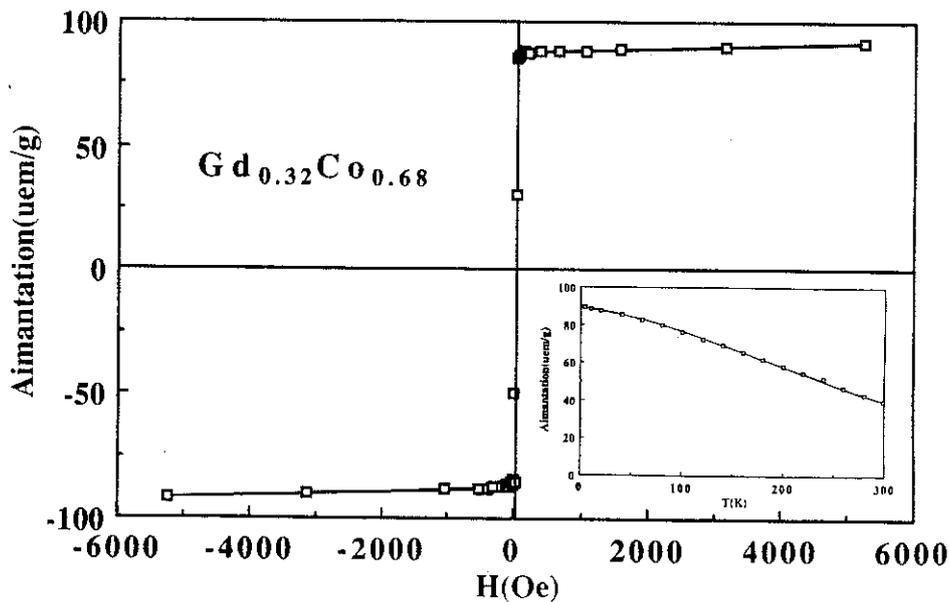


Figure II.22 : Variation de l'aimantation de l'alliage  $Gd_{0.32}Co_{0.68}$  en fonction du champ magnétique appliqué à 4.2 K. L'encart représente la variation thermique de l'aimantation spontanée (  $1 \text{ uem/g} = 9.13 \times 10^{-5} \text{ uem/cm}^2$ ).

Dans l'alliage amorphe  $\text{Nd}_{0.32}\text{Co}_{0.68}$ , les interactions de champ électrostatique agissant sur les ions  $\text{Nd}^{3+}$  conduisent à une coercitivité qui est de 300 Oe à 4.2 K. (figure II.23). Mais le champ coercitif décroît vite lorsque la température augmente ; il est inférieur à 20 Oe à 300 K. Dans cet alliage l'aimantation spontanée  $M_s$  vaut 104 uem/g ( $12.5 \times 10^{-3}$  uem/cm<sup>2</sup>) soit  $1,61 \mu_B/\text{Nd}_{0.32}\text{Co}_{0.68}$  à 4.2 K ; elle est de 73 uem/g ( $8.78 \times 10^{-3}$  uem/cm<sup>2</sup>) soit  $1.13 \mu_B/\text{Nd}_{0.32}\text{Co}_{0.68}$  à 300 K. Ces valeurs de  $M_s$  sont supérieures à celles obtenues dans l'alliage amorphe  $\text{Y}_{0.32}\text{Co}_{0.68}$ . Elles correspondent à un alignement parallèle des sous-réseaux magnétiques Nd et Co. L'aimantation totale de l'alliage  $\text{Nd}_{0.32}\text{Co}_{0.68}$  ( $M_{\text{Nd-Co}}$ ) peut s'exprimer en tenant compte du moment additionnel induit  $M_{\text{ind}}^{\text{Nd-Co}}$  par les interactions d'échange Nd-Co sur les moments atomiques de cobalt :

$$M_{\text{Nd-Co}} = 0.32M_{\text{Nd}} + 0.68 (M_{\text{Co}}^{\text{Y-Co}} + M_{\text{ind}}^{\text{Nd-Co}}) \quad (\text{II.14})$$

où  $M_{\text{Co}}^{\text{Y-Co}}$  est le moment atomique du cobalt dans l'alliage  $\text{Y}_{0.32}\text{Co}_{0.68}$ . Afin de déduire le moment magnétique du néodyme  $M_{\text{Nd}}$  à partir de cette relation, on peut écrire  $M_{\text{ind}}^{\text{Nd-Co}}$  sous la forme :

$$M_{\text{ind}}^{\text{Nd-Co}} = (n_{\text{RM}}^{\text{Nd}} / n_{\text{RM}}^{\text{Gd}}) (M_{\text{Nd}}^{\text{s}} / M_{\text{Gd}}^{\text{s}}) M_{\text{ind}}^{\text{Gd-Co}} \quad (\text{II.15})$$

Dans cette relation qui exprime simplement que le moment induit est proportionnel à l'intensité des interactions d'échange, la signification des différents termes est la même que dans la relation (II.13). Le rapport entre les coefficients  $n_{\text{RM}}^{\text{Nd}}$  et  $n_{\text{RM}}^{\text{Gd}}$  peut être supposé identique à celui déterminé expérimentalement par Belorizky et al [II.24] dans les composés  $\text{RCO}_2$  soit 1.54 (le renforcement des interactions dans le néodyme est dû à l'augmentation des interactions de contact 4f-5d sur les sites de ions  $\text{Nd}^{3+}$ ). Sachant que

$$M_{\text{Nd}}^{\text{s}} = 2 [(g_j - 1)/g_j] M_{\text{Nd}} \quad (\text{II.16})$$

et remplaçant les différents termes par leur valeur numérique, on obtient :

$$M_{\text{ind}}^{\text{Nd-Co}} = 0.0297 M_{\text{Nd}} \quad (\text{II.17})$$

Introduisant cette expression de  $M_{\text{ind}}^{\text{Nd-Co}}$  dans la relation (II.14), on déduit  $M_{\text{Nd}} = 2.49 \mu_B$  et le moment induit sur les atomes de cobalt vaut  $0.09 \mu_B$ . La valeur de  $M_{\text{Nd}}$  obtenue est bien inférieure à celle du moment maximum de l'ion  $\text{Nd}^{3+}$ ,  $3.27 \mu_B$ . Une telle réduction du moment peut résulter soit d'un effet intrinsèque, soit d'une distribution de l'orientation des moments de néodyme à l'intérieur d'un cône, tel que décrit dans une

structure spérimagnétique. En raison de l'importance des interactions d'échange par rapport aux effets de champ électrostatique, la réduction intrinsèque du moment du néodyme devrait être très faible. Il est donc logique de considérer que les moments de Nd sont distribués à l'intérieur d'un cône et forment un arrangement de type spérimagnétique sous l'effet de la compétition entre interactions d'échange et de champ électrostatique. Cependant, une réduction intrinsèque du moment de Nd ne peut être formellement écartée. Dans le composé hexagonal NdCo<sub>5</sub> Alameda et al [II.25] ont montré que le moment du néodyme à 4.2K n'est que de 2.37μ<sub>B</sub> ; ce phénomène n'est pas compris car la prédominance des interactions d'échange par rapport aux effets de champ cristallin devrait conduire à un moment de 3.27 μ<sub>B</sub>.

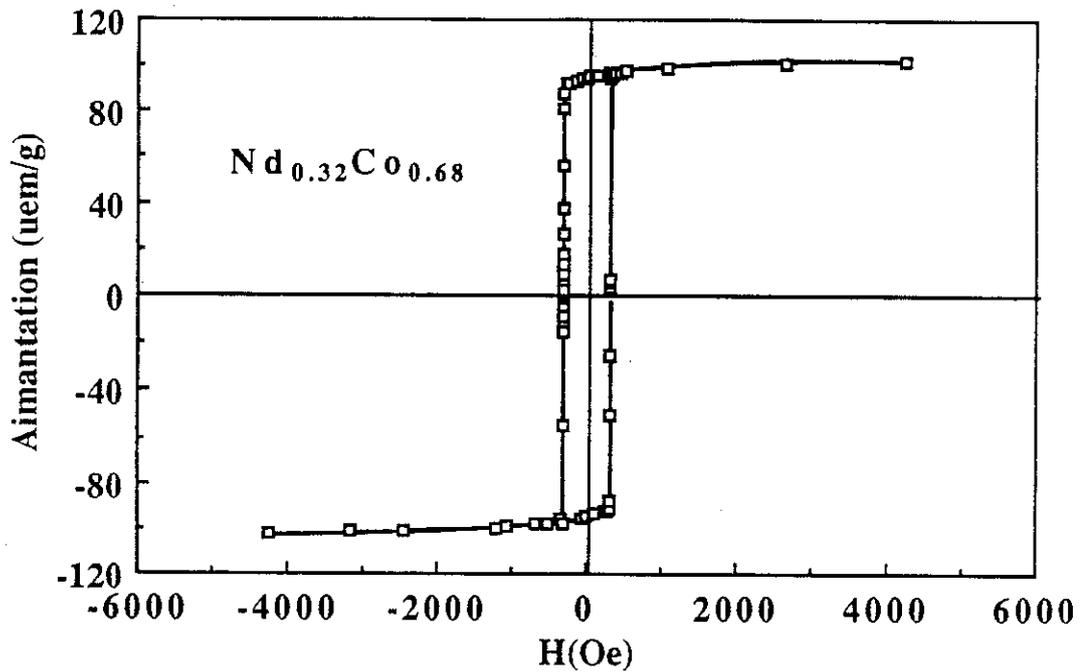


Figure II.23 : Variation de l'aimantation de l'alliage amorphe Nd<sub>0.32</sub>Co<sub>0.68</sub> en fonction du champ magnétique appliqué à 4.2 K (1 uem/g = 0.12 x 10<sup>-5</sup> uem/cm<sup>2</sup>).

Les mesures d'aimantation effectuées sur l'alliage Er<sub>0.32</sub>Co<sub>0.68</sub> sont représentées sur la figure II.24. A 4.2 K, le cycle d'hystérésis est caractérisé par une coercitivité d'environ 750 Oe et une variation progressive de l'aimantation jusqu'en champs forts. Ce comportement est typique d'un arrangement spérimagnétique. La susceptibilité en champs forts traduit la rotation des moments vers le champ appliqué. En champs plus faibles, la compétition entre le champ cristallin local et les interactions d'échange conduit à la formation de domaines d'Imry et Ma [II.26] dont la taille est de 30 à 50 Å [II.27]. La réorganisation irréversible de ces domaines sous l'effet du champ est à l'origine de la coercitivité observée.

L'extrapolation en champ nul de la variation d'aimantation en champs forts conduit à une valeur de 73 uem/g ( $9.4 \times 10^{-3}$  uem/cm<sup>2</sup>), soit  $1.22 \mu_B / \text{Er}_{0.32}\text{Co}_{0.68}$ . Considérant que les interactions d'échange Er-Co induisent un moment magnétique additionnel  $M_{\text{ind}}^{\text{Er-Co}}$  sur les moments atomiques de Co, un calcul analogue à celui effectué sur  $\text{Nd}_{0.32}\text{Co}_{0.68}$  donne :

$$M_{\text{Er}} = 6.14 \mu_B$$

et  $M_{\text{ind}}^{\text{Er-Co}} = 0.03 \mu_B$ .

Cette valeur du moment atomique de l'Erbium  $M_{\text{Er}}$  est approximativement égale au 2/3 de celle du moment magnétique maximum de l'ion  $\text{Er}^{3+}$ ,  $9 \mu_B$ . Elle est supérieure à la valeur  $4.5 \mu_B$  qui correspondrait à une distribution aléatoire des moments d'erbium dans un hémisphère, ce qui traduit l'influence des interactions d'échange Er-Co sur l'arrangement spérimagnétique.

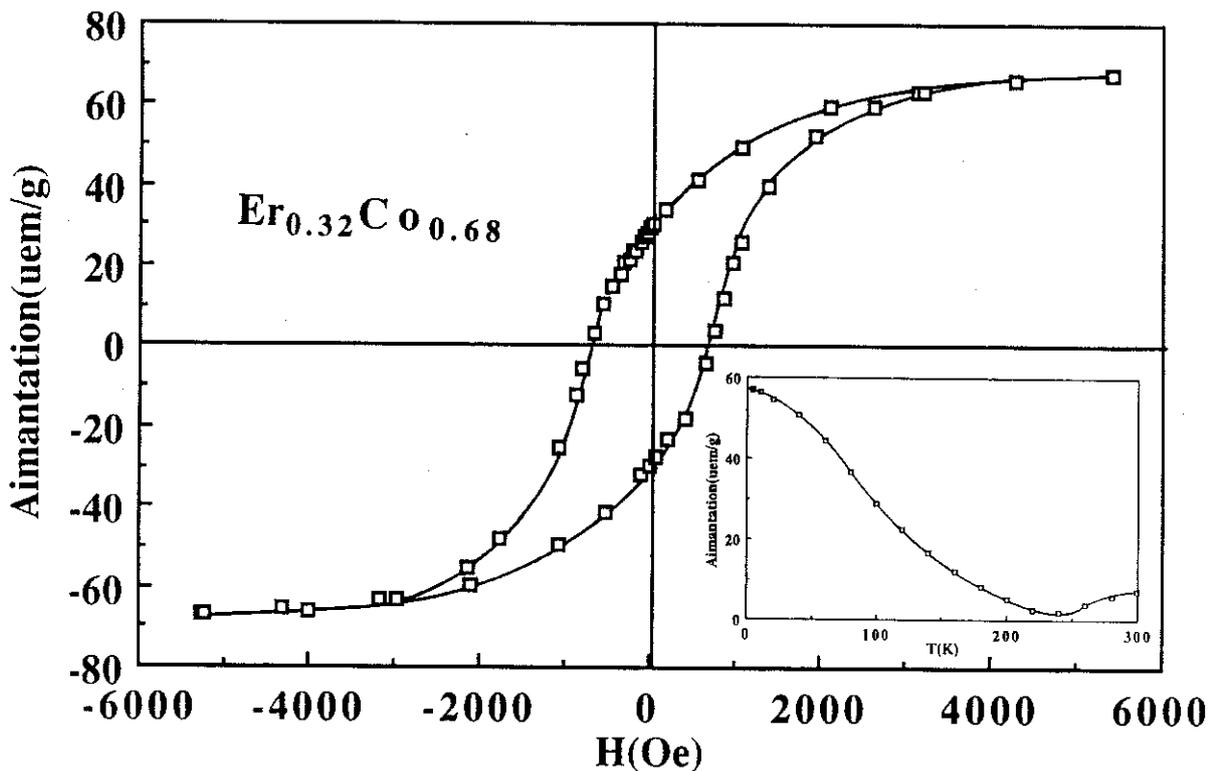


Figure II.24 : Variation de l'aimantation de l'alliage amorphe  $\text{Er}_{0.32}\text{Co}_{0.68}$  en fonction du champ magnétique appliqué à 4.2 K. L'encart représente la variation thermique de l'aimantation extrapolée en champ nul ( $1 \text{ uem/g} = 0.13 \times 10^{-5} \text{ uem/cm}^2$ ).

La variation thermique de l'aimantation extrapolée en champ nul est présentée sur l'encart de la figure II.24. Elle passe par un minimum à 240 K pour atteindre 9 uem/g ( $1.16 \times 10^{-3} \text{ uem/cm}^2$ ), soit  $0.15 \mu_B / \text{Er}_{0.32}\text{Co}_{0.68}$  à 300 K. Une telle variation est une

conséquence directe du couplage antiparallèle des moments Er et Co. Le champ coercitif décroît rapidement lorsque la température augmente; il est de 160 Oe à 150 K et est inférieur à 20 Oe à 300 K.

Les aimantations en  $\text{uem/cm}^2$  et à différentes températures des échantillons R-Co sont rassemblées dans le tableau II.5. Par ailleurs, les épaisseurs des couches ont été déduites de la valeur de la masse et de la surface de chaque échantillon en utilisant les mêmes hypothèses que ci-dessus d'une réduction de 8 % de la densité à l'état amorphe par rapport à l'état cristallisé. Les valeurs obtenues sont également reportées dans le tableau II.5.

Tableau II.5 : Aimantation en  $\text{uem/cm}^2$  et à différentes températures des couches minces d'alliages R-Co (R = Y, Nd, Gd, Er).

Alliage	$m_s$ ( $\times 10^{-3}$ $\text{uem/cm}^2$ )						Densité calculée	Epaisseur déduite des mesures d'aimantation	
	T=4.2 K	T=100 K	T=150 K	T=200 K	T=250 K	T=300 K			
$\text{Y}_{0.29}\text{Co}_{0.71}$	5,23	5,07	4,98	4,86	4,74	4,66	6,8	1170	
$\text{Nd}_{0.32}\text{Co}_{0.38}$	12,50		10,70				8,78	7,5	1600
$\text{Gd}_{0.32}\text{Co}_{0.68}$	7,92	6,73	5,97	5,15	4,34	3,55	7,8	1170	
$\text{Er}_{0.32}\text{Co}_{0.68}$	9,43		1,85				1,16	8,1	1600

**CHAPITRE III**

***PROPRIETES MAGNETO-OPTIQUES DES  
ALLIAGES AMORPHES R-Co***



### III-1 - ORIGINE DES EFFETS MAGNETO-OPTIQUES

Dans les solides, les effets magnéto-optiques traduisent l'influence du champ magnétique appliqué ou de l'aimantation sur la phase, l'état de polarisation et l'intensité d'un faisceau de lumière. En transmission, ils sont dénommés effet Faraday et effet Voigt; en réflexion, ce sont les effets Kerr magnéto-optiques [III.1-3].

De façon générale, les effets optiques résultent de l'interaction entre les électrons dans la matière et le champ électromagnétique d'une lumière incidente. Les effets magnéto-optiques sont observés dans les matériaux diamagnétiques ou paramagnétiques soumis à un champ magnétique appliqué ainsi que dans les matériaux ferromagnétiques. Ils ne sont pas dus à l'interaction directe très faible entre le champ magnétique de la radiation incidente et le moment magnétique du matériau, mais à l'interaction entre le champ électrique de la radiation et les charges électriques des électrons dont les trajectoires sont modifiées par le champ magnétique appliqué. Dans les matériaux diamagnétiques, le moment magnétique induit est dû à la modification des trajectoires électroniques sous l'effet du champ magnétique appliqué. Les effets magnéto-optiques associés sont très faibles. Dans les matériaux paramagnétiques, le moment magnétique résulte de la redistribution des électrons sur des états orbitaux dont la dégénérescence est levée par l'application d'un champ magnétique. Ce phénomène est dû d'une part à l'action directe du champ sur le moment orbital, d'autre part à son action sur le moment de spin lié au moment orbital par le couplage spin-orbite. Le moment magnétique et les effets magnéto-optiques correspondants peuvent être importants et dépendent fortement de la température. Dans les matériaux ferromagnétiques, des interactions magnétiques très fortes ont lieu entre les moments de spin. La sélection d'orbitales électroniques présentant des moments orbitaux différents est due aux effets du couplage spin-orbite qui joue dans ce cas un rôle essentiel. Le champ appliqué n'agit pas directement sur les propriétés microscopiques du système car l'énergie associée est très faible par rapport à l'énergie d'échange. Son rôle est de favoriser l'alignement de l'aimantation selon sa direction d'application par déplacement des parois et rotation des moments magnétiques.

D'un point de vue macroscopique classique, les effets magnéto-optiques peuvent être décrits à partir des équations de Maxwell :

$$\text{Rot } \vec{E} = - \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (\text{III.1})$$

$$\text{Rot } \vec{H} = \sigma \vec{E} + \epsilon \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (\text{III.2})$$

Dans ces équations,  $\vec{E}$  est le champ électrique,  $\vec{B}$  le champ d'induction magnétique,  $\vec{H}$  le champ d'excitation magnétique,  $\epsilon$  la permittivité diélectrique du matériau. Le terme contenant le courant de conduction  $\sigma \vec{E}$ ,  $\sigma$  étant la conductivité électrique, provient du déplacement des porteurs libres. Il caractérise les systèmes métalliques et détermine l'absorption de la lumière. Les champs électrique et magnétique pour une onde incidente monochromatique plane polarisée et de pulsation  $\omega$  s'expriment :

$$\vec{E} = \vec{E}_0 e^{i(\omega t - \vec{K} \cdot \vec{r})} \quad (\text{III.3})$$

$$\vec{H} = \vec{H}_0 e^{i(\omega t - \vec{K} \cdot \vec{r})} \quad (\text{III.4})$$

On a donc :

$$\text{Rot } \vec{E} = - i \vec{K} \times \vec{E} \quad (\text{III.5})$$

$$\text{Rot } \vec{H} = - i \vec{K} \times \vec{H} \quad (\text{III.6})$$

$$\frac{\partial \vec{E}}{\partial t} = i \omega \vec{E} \quad (\text{III.7})$$

$$\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = i \omega \vec{B} = i \omega \mu \vec{H} \quad (\text{III.8})$$

où  $\vec{K}$  est le vecteur d'onde de la lumière et  $\mu$  la perméabilité magnétique. Les équations de Maxwell se mettent alors sous la forme :

$$\vec{K} \times \vec{E} = \mu \omega \vec{H} \quad (\text{III.9})$$

$$\vec{H} \times \vec{K} = \omega \tilde{\epsilon} \vec{E} \quad (\text{III.10})$$

où :

$$\tilde{\epsilon} = \epsilon' - i\epsilon'' = \epsilon - \frac{i\sigma}{\omega}$$

est la permittivité diélectrique complexe et est généralement un tenseur. L'introduction de (III.9) dans (III.10) donne :

$$K^2 \vec{E} - (\vec{K} \cdot \vec{E}) \vec{K} - \omega^2 \mu \tilde{\epsilon} \vec{E} = 0 \quad (\text{III.11})$$

L'équation (III.11) possède des solutions non triviales uniquement si le déterminant des coefficients s'annule. Elle détermine la réponse d'un matériau à une onde lumineuse incidente. Dans le cas d'un matériau ayant une symétrie d'ordre supérieur ou égale à 3 et pour lequel l'aimantation est saturée selon la direction z, on peut mettre  $\epsilon$  sous la forme [III.4] :

$$\epsilon = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & -\epsilon_{xy} & 0 \\ \epsilon_{xy} & \epsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{pmatrix} \quad (\text{III.12})$$

Les éléments diagonaux de cette matrice décrivent les effets optiques ordinaires. Les éléments non-diagonaux dépendent du champ magnétique appliqué et dans un matériau magnétique, de l'aimantation. Ils représentent le lien entre propriétés magnétiques du matériau considéré et effets magnéto-optiques résultants.

### III-2 DESCRIPTION PHENOMENOLOGIQUE DES EFFETS MAGNETO-OPTIQUES EN TRANSMISSION ET EN REFLEXION

L'observation des différents effets magnéto-optiques dépend des conditions géométriques fixées par l'expérience ainsi que du caractère absorbant ou transparent du milieu considéré. Les conditions dans lesquelles les effets magnéto-optiques sont observés en transmission et en réflexion sont schématisées sur la figure III.1.

#### *Effet Faraday :*

Lorsque le champ magnétique appliqué ou l'aimantation est perpendiculaire à la surface considérée de l'échantillon, la résolution des équations de Maxwell fait

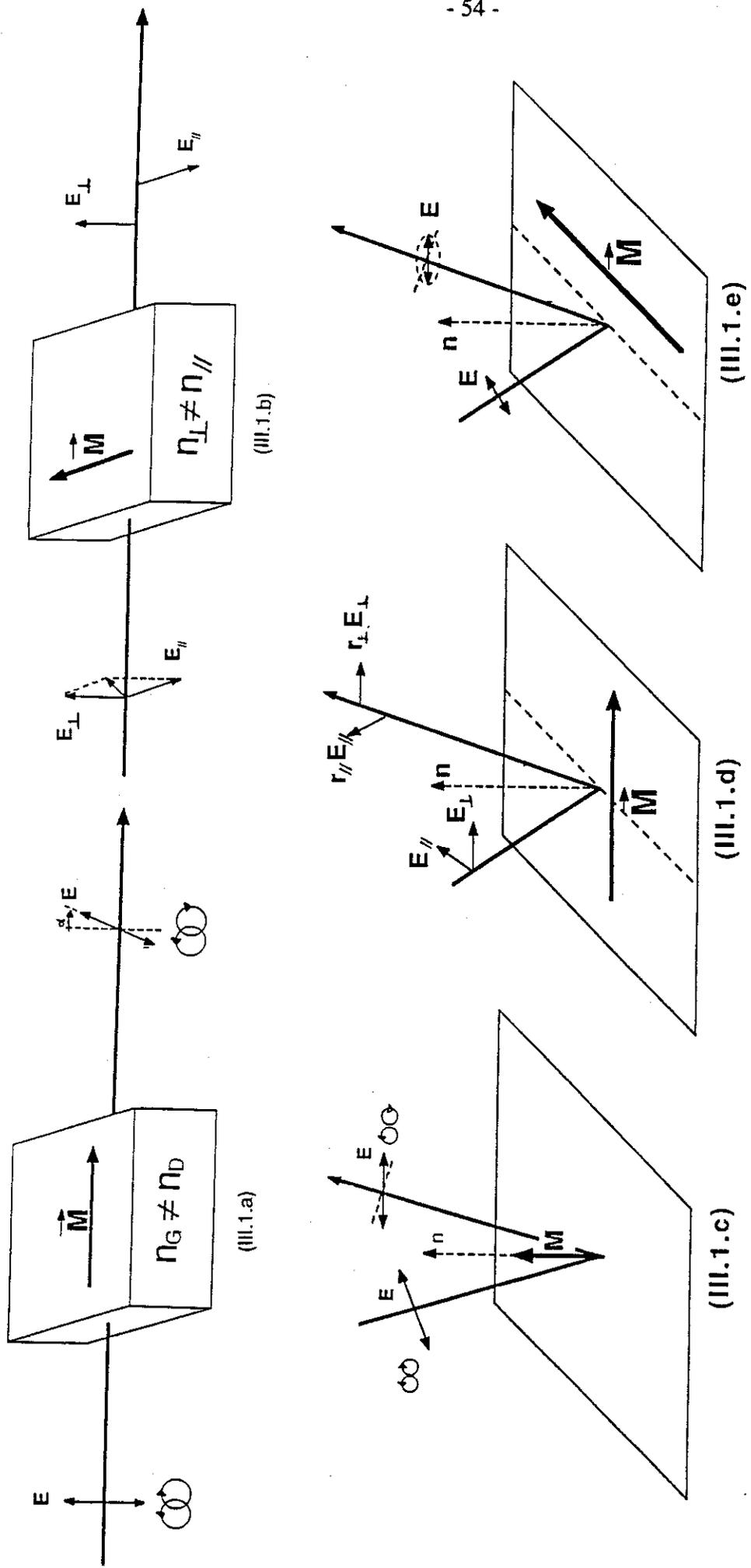


Figure III.1 : Schémas des configurations des différents effets magnéto-optiques en transmission : (a) Effet Faraday , (b) Effet Voigt en réflexion : Effets Kerr (c) polaire, (d) transverse, (e) longitudinal

apparaître, pour un rayonnement incident polarisé linéairement et qui se propage suivant la direction de l'aimantation, deux modes propres de propagation correspondant respectivement à des lumières polarisées circulaires droite (pour l'observateur qui reçoit la lumière, le vecteur champ électrique lumineux tourne dans le sens des aiguilles d'une montre) et gauche (le vecteur champ électrique lumineux tourne dans le sens contraire des aiguilles d'une montre). Des indices de réfraction différents sont associés à ces deux modes qui subissent l'un par rapport à l'autre un déphasage progressif donnant lieu à une rotation du plan de polarisation de la lumière transmise par rapport à celui de la lumière incidente. L'effet magnéto-optique correspondant est l'effet Faraday.

**Effet Voigt :**

Lorsque l'aimantation est parallèle à la surface de l'échantillon et perpendiculaire à la direction de propagation de l'onde incidente polarisée rectiligne, les modes propres de propagation sont polarisés linéairement suivant des directions parallèle  $E_{//}$ , ou perpendiculaire  $E_{\perp}$ , à l'aimantation. A ces deux modes, correspondent des indices de réfraction (et des coefficients d'absorption) différents qui induisent un phénomène de biréfringence magnétique linéaire produisant l'elliptisation de la lumière transmise : c'est l'effet Voigt.

**Effets Kerr magnéto-optiques :**

Selon l'orientation relative de l'aimantation par rapport au plan d'incidence et à la surface du matériau, on distingue trois effets Kerr magnéto-optiques différents (figure III.1 c, d, e). L'effet Kerr polaire est observé dans une configuration où l'aimantation est perpendiculaire à la surface de l'échantillon. Pour une lumière incidente polarisée linéairement, il se traduit en incidence normale par une rotation du plan de polarisation de la lumière réfléchi par rapport à celui de la lumière incidente. La lumière réfléchi est polarisée elliptiquement car ses deux composantes circulaires n'ont plus exactement la même amplitude. L'effet Kerr polaire est l'analogie de l'effet Faraday observé en transmission. On définit l'angle de rotation Kerr complexe  $\Phi$ :

$$\Phi = \theta_K + i \epsilon_K \tag{III.13}$$

où  $\theta_K$  est l'angle de rotation Kerr et  $\epsilon_K$  est l'ellipticité. La valeur de  $\Phi$  est [III.5] :

$$\Phi = \frac{\sigma_{xy}}{i \sigma_{xx} n} = \frac{\epsilon_{xy}}{i (\epsilon_{xx} - 1) \sqrt{\epsilon_{xx}}} \tag{III.14}$$

où  $n$  est l'indice de réfraction complexe.

Lorsque l'aimantation est parallèle à la surface de l'échantillon et perpendiculaire au plan d'incidence, les modes propres de propagation sont polarisés linéairement suivant des directions parallèle  $E_{//}$  ou perpendiculaire  $E_{\perp}$  au plan d'incidence. L'absorption n'est pas la même pour ces deux modes ; il en résulte une différence de réflexion qui correspond à l'effet Kerr transverse. De plus, un déphasage d'origine magnétique entre les deux modes propres de propagation se superpose au déphasage dû à la réflexion métallique. Négligeant cet effet, le calcul des coefficients de réflexion  $r_{\perp}$  et  $r_{//}$  donne dans le cas d'une symétrie cubique [III.3] :

$$r_{\perp} = \frac{\cos \theta_0 - n_0}{\cos \theta_0 + n_0} \quad (\text{III.15})$$

et

$$r_{//} = \frac{n_0 \cos \theta_0 - 1}{n_0 \cos \theta_0 + 1} \left\{ 1 + \frac{\epsilon_{xy} \sin 2 \theta_0 / n^2}{n_0^2 \cos^2 \theta_0 - 1} \right\} \quad (\text{III.16})$$

où  $\theta_0$  est l'angle d'incidence,  $n_0$  l'indice de réfraction moyen.

On remarque que, dans cette approximation, la composante perpendiculaire  $r_{\perp}$  ne dépend pas de l'aimantation. Au contraire, la composante parallèle  $r_{//}$  est proportionnelle à l'aimantation par l'intermédiaire du terme  $\epsilon_{xy}$ . L'effet Kerr transverse traduit le changement du pouvoir réflecteur pour cette composante en fonction de l'aimantation. Le facteur  $\sin 2\theta_0$  dans la relation (III-16) indique que la lumière incidente doit être oblique par rapport au plan de l'échantillon.

Dans la configuration correspondant à l'effet Kerr longitudinal, l'aimantation est parallèle à la surface de l'échantillon et au plan d'incidence. En général, l'onde incidente est polarisée linéairement et l'incidence oblique. Les modes propres de propagation sont elliptiques. En première approximation, l'effet se traduit par une rotation du plan de polarisation de la lumière réfléchie.

### III-3 LES EFFETS MAGNETO-OPTIQUES DANS LES METAUX

#### APPROCHE MICROSCOPIQUE

Dans une approche microscopique, les effets magnéto-optiques sont dûs aux transitions dipolaires électriques induites par la lumière. Des contributions intra-bandes et inter-bandes peuvent être distinguées [III.6]. La contribution intra-bande est due à la relaxation vers l'état fondamental des électrons excités par le champ électrique. Elle correspond en mécanique classique au modèle de Drude [III.7] pour la conductivité, et a été discutée de façon semi-quantitative par Erskine et Stern [III.8]. Les composantes non-diagonales du tenseur de conductivité qui rendent compte des effets magnéto-optiques sont définies comme :

$$\sigma_{xy} = -\sigma_{yx} = \sigma_{xy}^{(1)} + i \sigma_{xy}^{(2)} \quad (\text{III.17})$$

Dans la limite où la pulsation  $\omega$  de la lumière incidente est bien supérieure à  $1/\tau$ , où  $\tau$  est le temps caractérisant la relaxation vers l'état fondamental, les parties réelle et imaginaire du terme  $\sigma_{xy}$  s'expriment :

$$\sigma_{xy}^{(1)}(\omega) = -\frac{\omega_p^2}{4\pi} \langle \sigma_z \rangle \frac{|P_0'|}{e v_0} \frac{1}{(\omega\tau)^2} \quad (\text{III.18})$$

$$\sigma_{xy}^{(2)}(\omega) = \frac{\omega_p^2}{4\pi} \langle \sigma_z \rangle \frac{|P_0'|}{e v_0} \frac{1}{(\omega\tau)} \quad (\text{III.19})$$

où  $\omega_p^2 = 4\pi n e^2 / m^*$ ,  $e$  est la charge de l'électron,  $n$  le nombre total d'électrons,  $m^*$  la masse effective des électrons de conduction.  $\langle \sigma_z \rangle = (n_\uparrow - n_\downarrow) / (n_\uparrow + n_\downarrow) = \Delta n / n$  décrit la fraction de spins polarisés ;  $\Delta n = n_\uparrow - n_\downarrow$  étant la différence entre le nombre de spins polarisés  $\uparrow$  et le nombre de spins polarisés  $\downarrow$ ,  $|P_0'|$  est la valeur maximale du moment dipolaire  $P(k)$ , où  $k$  est le module du vecteur d'onde des électrons,  $v_0$  la vitesse de Fermi. Les deux contributions à  $\sigma_{xy}$  décroissent lorsque  $\omega$  augmente. La partie réelle  $\sigma_{xy}^{(1)}$  qui décrit la dispersion de la lumière varie comme  $1/\omega^2$  et la partie imaginaire  $\sigma_{xy}^{(2)}$  qui décrit son absorption varie comme  $1/\omega$ . Comme le montre ce comportement le terme intra-bande n'est important que pour les faibles énergies (typiquement inférieures à 0.2 eV) qui correspondent aux longueurs d'onde supérieures à celle de la bande infrarouge.

La contribution inter-bande aux effets magnéto-optiques correspond à des transitions d'un état occupé vers un état non occupé de même vecteur d'onde  $k$  mais d'énergie différente. Du fait que le vecteur d'onde de l'onde incidente est beaucoup plus faible que celui des électrons, les transitions se produisent à  $k$  constant. Les transitions obéissent aux règles de sélection :

$$\Delta l = \pm 1, \quad \Delta m_l = \pm 1 \quad \text{et} \quad \Delta S_z = 0$$

Elles sont distribuées sur une gamme d'énergie de plusieurs eV et sont dominantes dans le visible et les courtes longueurs d'onde du spectre magnéto-optique (1-4.5 eV). Elles donnent souvent lieu à des pics dans le spectre de la variation de la conductivité en fonction de l'énergie du fait que les transitions entre deux états ne sont souvent possibles que dans une gamme restreinte de valeurs de  $k$  pour lesquelles l'état initial est situé en dessous de  $E_F$  et l'état final au-dessus de  $E_F$ . Ainsi les pics observés dans les diagrammes expérimentaux du spectre de la conductivité en fonction de l'énergie reflètent les particularités de la structure de bande. C'est l'intérêt principal de l'analyse des effets magnétooptiques dans les matériaux.

### **RESULTATS EXPERIMENTAUX DANS LES METAUX**

Les principales études portent sur les effets magnéto-optiques dans les métaux de transition. Des mesures d'effet Kerr transverse [III.9-11] et d'effet Kerr longitudinal [III.6] ont été effectuées sur le fer, le cobalt et le nickel. Les variations de la réflectivité en fonction de la longueur d'onde incidente sont présentées pour ces trois métaux sur la figure (III.2). Les parties réelle  $\epsilon_{xy}^{(1)}$  et imaginaire  $\epsilon_{xy}^{(2)}$  de la composante non diagonale du tenseur de permittivité  $\epsilon_{xy}$  ont été déduites de ces mesures effectuées de façon systématique pour deux valeurs de l'angle d'incidence de la lumière (figure III.3). La principale caractéristique de ces spectres est la forte réduction de  $\epsilon_{xy}^{(2)}$  à faible énergie qui change même de signe en dessous de 0.2 eV pour Co et Fe, de 0.5 eV pour Ni. Ce comportement résulte d'une contribution aux effets magnéto-optiques due aux électrons appartenant à la bande minoritaire. Une analyse plus détaillée des différents spectres indique que les transitions optiques inter-bandes indirectes sont dominantes pour une énergie  $h\nu > 1$  eV [III.9], [III.12].

Des études d'effets Faraday et Kerr ont montré que le fer et le cobalt cristallins ont une rotation Kerr négative et une rotation Faraday positive dans la bande d'énergie comprise entre 0.5 et 5 eV [III.13]. La rotation Kerr pour le fer est caractérisée par un pic intense autour de 1,1 eV, avec un angle de rotation  $\theta_k \sim -0,47^\circ$  à 300 K. Le cobalt possède une structure moins prononcée avec deux pics situés à environ 1.3 et 3.9 eV et une valeur de  $\theta_k$  de l'ordre de  $-0,35^\circ$  à 300 K.

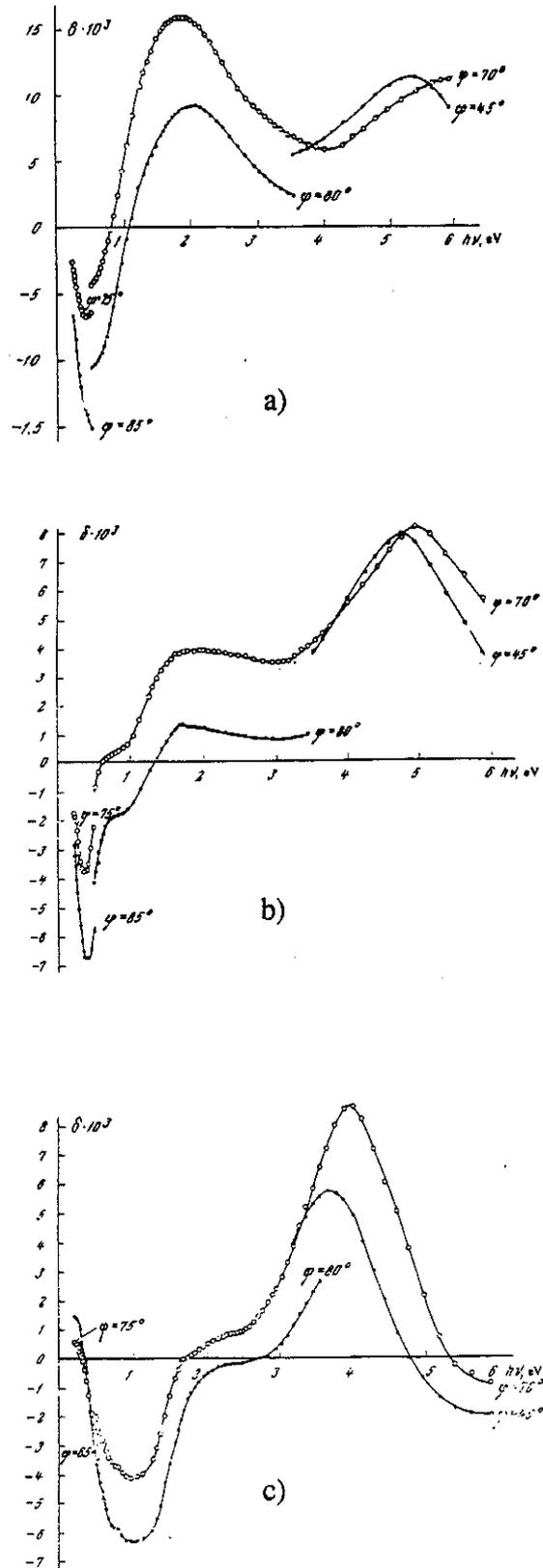


Figure III.2: Effet Kerr transverse pour deux angles d'incidence de la lumière  
(a) pour le fer, (b) pour le cobalt, (c) pour le nickel [III.9].

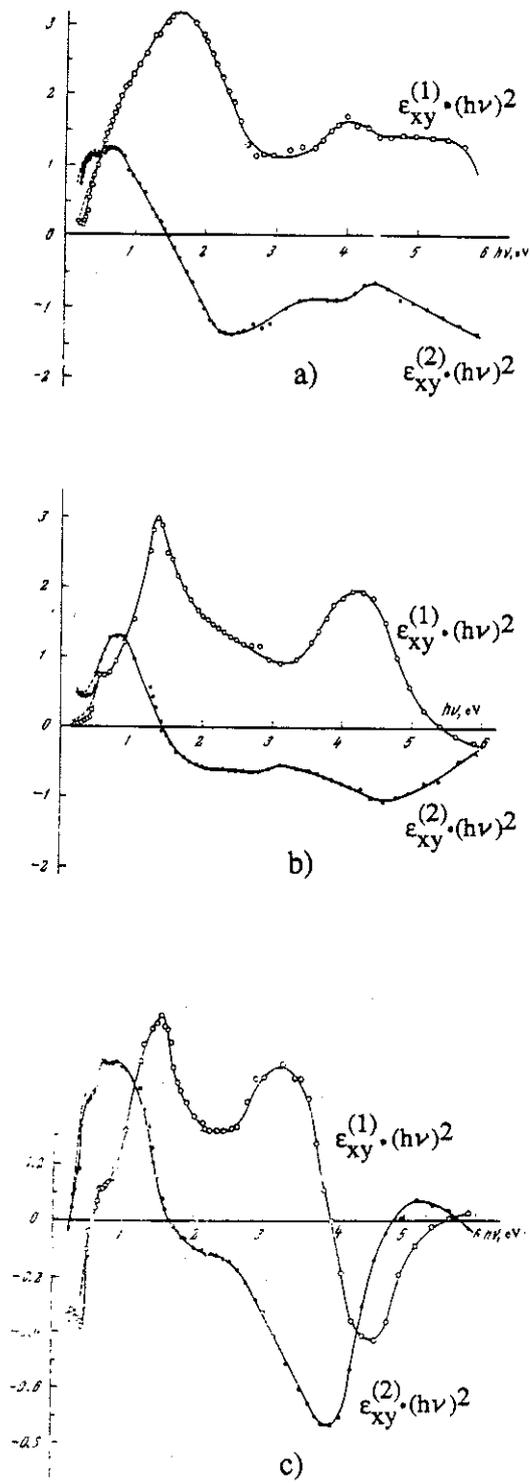


Figure III.3 : Parties réelle  $\epsilon_{xy}^{(1)}$  et imaginaire  $\epsilon_{xy}^{(2)}$  de la composante non-diagonale  $\epsilon_{xy}$  du tenseur de permittivité déduit du signal Kerr : (a) du fer, (b) du cobalt, (c) du nickel [III.9]

Les seules données magnéto-optiques disponibles sur les métaux de terre rare concernent le gadolinium, le terbium et le dysprosium. Les contributions réelle et imaginaire au tenseur de conductivité optique dans le cas du gadolinium sont présentées sur la figure III-4 [III.13]. Le tracé de  $\omega\sigma_{xy}$  (figure III-4b) permet de séparer la contribution inter-bande en dessous d'une ligne horizontale représentée en pointillés sur la figure III.4b et la contribution inter-bande qui se manifeste par deux pics au voisinage de 2 et 4 eV. Les pics ont été interprétés comme résultant de transitions d'états p situés juste au-dessous de  $E_F$  vers des états de type d situés au dessus de  $E_F$ . De plus, une décroissance rapide et un changement de signe de  $\sigma_{xy}^{(2)}(\omega)$  sont observés au-delà de 4.5 eV ; ils ont été attribués à une transition des états d vers les états f non occupés au-dessus du niveau de Fermi. Des résultats similaires ont été observés dans le dysprosium.

La rotation Kerr du gadolinium dans la bande d'énergie 0.5 - 5eV est positive avec un pic intense à environ 4.2 eV associé aux transitions inter-bandes p-d [III.8, III.13]. Les autres éléments de terres rares (Tb,Dy, Ho, Er) donnent lieu à une forte rotation Kerr négative dans les courtes longueurs d'onde.

Les études portant sur les effets magnéto-optiques dans les composés terre rare-métal de transition sont peu nombreuses. Une étude sur les composés Nd-Co [III.14] a montré que les effets magnéto-optiques décroissent lorsque le pourcentage de Co augmente. Une étude plus détaillée de la rotation Kerr dans les composés RFe<sub>2</sub> [III.15] a permis de séparer les contributions dues respectivement au métal de terre rare et au fer, cette dernière étant largement dominante. Une conclusion similaire a été obtenue lors d'une étude de l'effet Kerr dans les composés R<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B [III.16].

La dépendance spectrale du signal Kerr dans les alliages amorphes terre rare-métal de transition est similaire à celle des composés cristallisés mais la structure est moins prononcée en raison du désordre structural [III.13]. L'amplitude des effets observés est réduite par rapport à celle des composés cristallisés mais, le signe de la contribution de la terre rare ou du métal de transition à  $\theta_K$  ou  $\theta_F$  est le même pour les éléments purs et leurs alliages.

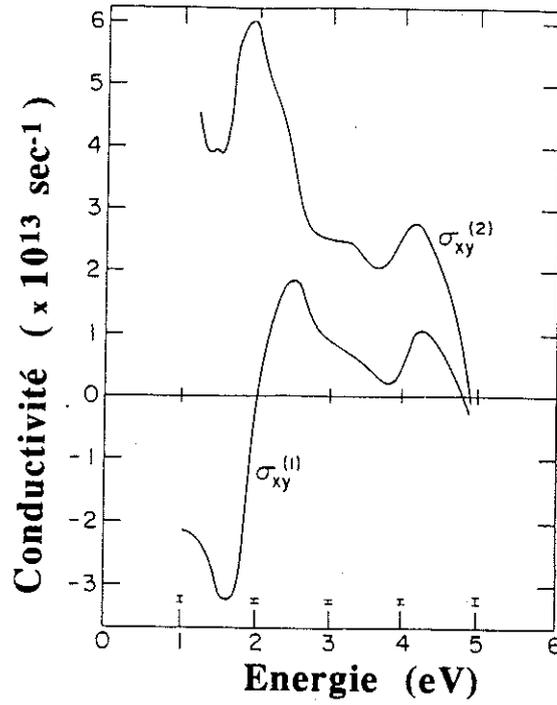


Figure III.4.a : Parties réelle  $\sigma_{xy}^{(1)}$  et imaginaire  $\sigma_{xy}^{(2)}$  de la composante non-diagonale  $\sigma_{xy}$  du tenseur de conductivité optique du gadolinium à 105 K [III.8]

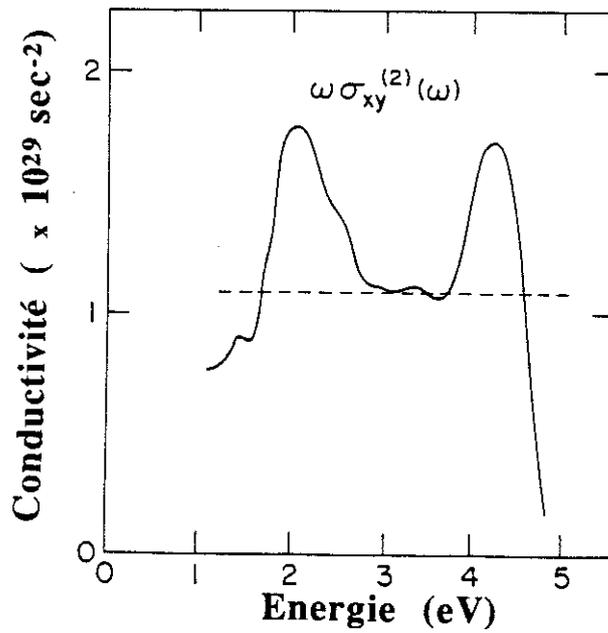


Figure III.4.b : Variation expérimentale de  $\omega\sigma_{xy}^{(2)}$  en fonction de l'énergie à  $T = 105$  K [III.8]

### III-4 HYSTERESIGRAPHE A EFFET KERR TRANSVERSE

#### *Principe*

D'un point de vue expérimental, l'effet Kerr transverse est détectable comme un changement de réflectivité lorsque l'aimantation perpendiculaire au plan d'incidence, tourne d'une direction à la direction opposée. Il n'est pas indispensable que la lumière incidente soit polarisée car, seule sa composante polarisée dans le plan d'incidence est affectée par le retournement de l'aimantation. Soit  $R_{//}$  le pouvoir réflecteur correspondant; la quantité significative est la variation relative  $\Delta R_{//}/R_{//}$ . Cette quantité est faible en général, typiquement de l'ordre de quelques pour mille. Les dispositifs expérimentaux utilisés habituellement effectuent la mesure de flux lumineux réfléchi par la surface au moyen d'un photodétecteur de dynamique suffisante. La mesure de la variation qui intervient quand l'aimantation change de sens nécessitant généralement une grande sensibilité, le dispositif expérimental comporte, outre un modulateur d'amplitude de la lumière, un système de compensation de la composante continue. Or toute mesure physique, en particulier une mesure de flux d'éclairement, est affectée par du bruit d'origines diverses (électronique, vibrations mécaniques, fluctuations d'intensité de la source, etc...). Le signal de compensation étant indépendant du signal de mesure, il n'est pas affecté par les mêmes causes de bruit que le signal principal et augmente le bruit sur la mesure. C'est pourquoi nous avons développé une méthode différentielle originale dont le schéma de principe est présenté sur la figure III.5 : le signal de mesure est la composante du faisceau lumineux polarisée dans le plan d'incidence, le signal de compensation est la composante du même faisceau polarisée perpendiculairement à ce plan. La séparation en deux faisceaux puis leur différence ne sont réalisées qu'à la fin de la chaîne expérimentale.  $S_{//}$  et  $S_{\perp}$  étant les signaux photoélectriques associés respectivement aux intensités lumineuses  $I_{//}$  et  $I_{\perp}$  qui arrivent sur les deux voies de mesure, le signal différentiel vaut dans le cas d'une aimantation dirigée selon une direction de référence notée  $\uparrow$  :

$$\Delta S_{\uparrow} = S_{//\uparrow} - S_{\perp\uparrow}$$

Lorsque l'aimantation est inversée par le champ appliqué, le signal différentiel devient :

$$\Delta S_{\downarrow} = S_{//\downarrow} - S_{\perp\downarrow}$$

or  $S_{\perp\uparrow} = S_{\perp\downarrow}$

la variation de  $\Delta S$  est donc :

$$\delta(\Delta S) = \Delta S_{\uparrow} - \Delta S_{\downarrow} = S_{//\uparrow} - S_{//\downarrow}$$

Dans la mesure où aucune modification expérimentale n'est intervenue entre les deux situations, en particulier aucune variation d'intensité de la source lumineuse,

$$\delta(\Delta S) = \alpha (R_{//\uparrow} - R_{//\downarrow})I$$

où  $\alpha$  exprime la proportionnalité et  $I$  le flux lumineux incident sur la surface de l'échantillon. A la mesure différentielle, on adjoint la mesure du signal photoélectrique élémentaire  $S_{//}$  de manière à déterminer la variation relative du pouvoir réflecteur :

$$\delta(\Delta S_{//})/S_{//} = \Delta R_{//}/R_{//}$$

Notons que  $R_{//}$  dépend des indices complexes des matériaux adjacents à l'interface, donc de la longueur d'onde de la radiation lumineuse utilisée, et de l'angle d'incidence.

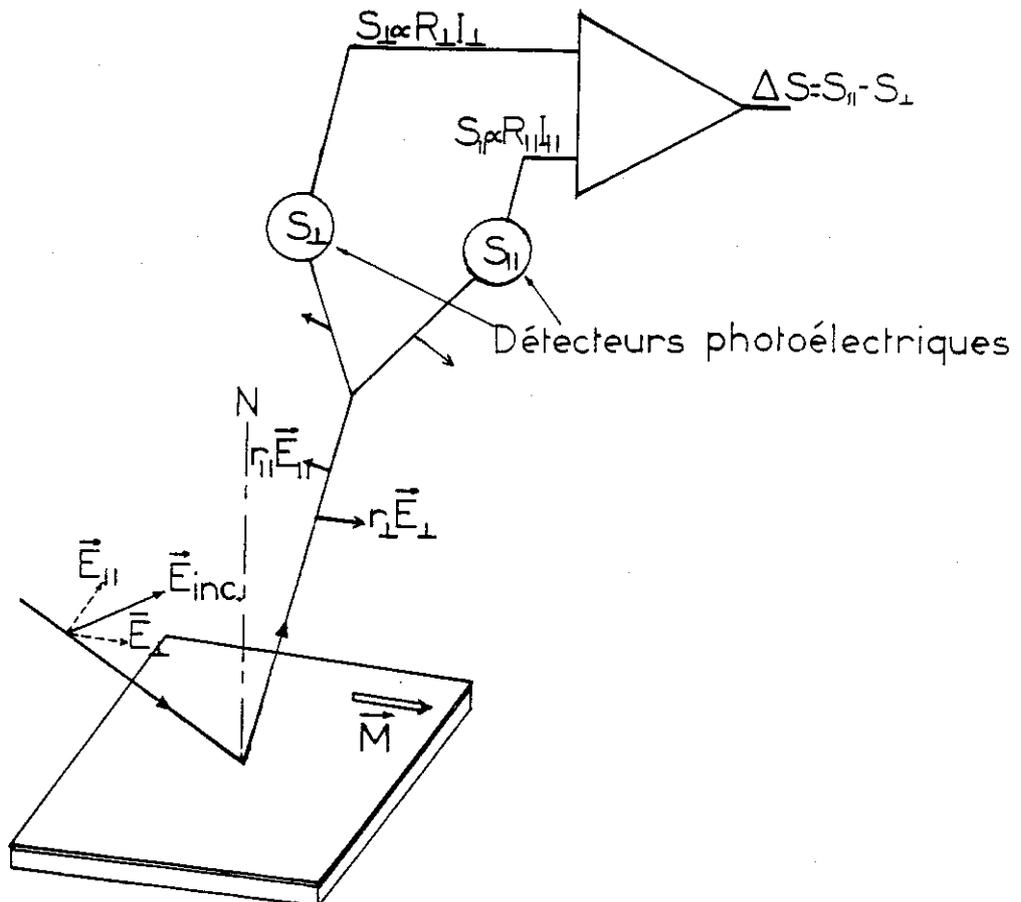


Figure III.5 : Schéma de principe de l'hystérésigraphe à effet Kerr transverse mis au point au laboratoire Louis Néel durant notre étude.

### *Dispositif expérimental*

Dans l'installation développée au laboratoire, un faisceau de lumière non polarisée est fourni par un laser hélium-néon de 5mW fonctionnant à 0.6  $\mu\text{m}$ . Il est modulé en amplitude par un chopper. Le faisceau traverse ensuite un polariseur linéaire dichroïque de bonne qualité (type Käsemann) ; l'angle de polarisation est voisin de 45°. Il est ensuite réfléchi, sous incidence de 60°, successivement par un miroir plan en aluminium protégé, par l'échantillon, puis par un second miroir. Le faisceau réfléchi par cet ensemble est polarisé elliptiquement du fait des réflexions métalliques. Il est à nouveau réfléchi par un ensemble biprisme de Wollaston-miroir plan qui sépare angulairement les composantes du champ électrique lumineux émergent. Couplé à un miroir plan, le prisme de Wollaston fonctionne en double transmission et multiplie ainsi par deux la séparation angulaire des deux composantes  $E_{//}$  et  $E_{\perp}$ . Les deux faisceaux provenant du Wollaston sont renvoyés par un diédre droit réfléchissant vers deux photodiodes dont les signaux respectifs entrent dans un amplificateur différentiel de gain 1. Le signal  $\Delta S$  issu de leur différence est mesuré au moyen d'un amplificateur à détection synchrone (EGG-PAR 5210) dont le signal de référence est fourni par le modulateur. En général on règle l'orientation du polariseur d'entrée de manière à évoluer autour d'une valeur moyenne nulle pour  $\Delta S$  et utiliser ainsi au mieux l'amplificateur à détection synchrone tout en restant proche de la compensation optimale.

La surface d'un échantillon caractéristique, d'environ 1cm<sup>2</sup> est plane et présente les qualités d'un poli optique. Le spot lumineux sur l'échantillon est de forme elliptique ; pour une incidence de 60°, ses dimensions sont de 4 et 2 mm, respectivement dans le plan d'incidence et perpendiculairement à celui-ci. L'échantillon est placé dans l'entrefer d'une bobine à noyau de fer doux. La bobine est alimentée en courant alternatif par un générateur basse fréquence dont le signal est amplifié par une alimentation de puissance annexe (KEPCO). Le champ fourni par la bobine varie entre +1.5 kOe et -1.5 kOe. Avant d'effectuer la mesure du signal Kerr, l'égalité en champ nul est obtenue en tournant le polariseur d'entrée. Le signal lui-même est mesuré en envoyant la tension aux bornes de la bobine sur la voie X et le signal de la détection synchrone sur la voie Y d'une table traçante. Afin d'obtenir la variation relative  $\Delta S_{//}/S_{//}$ , le signal  $S_{//}$  est mesuré lors de chaque tracé de cycle, à l'aide d'un commutateur qui permet de ne prendre en compte que le signal de l'une des deux photo-diodes.

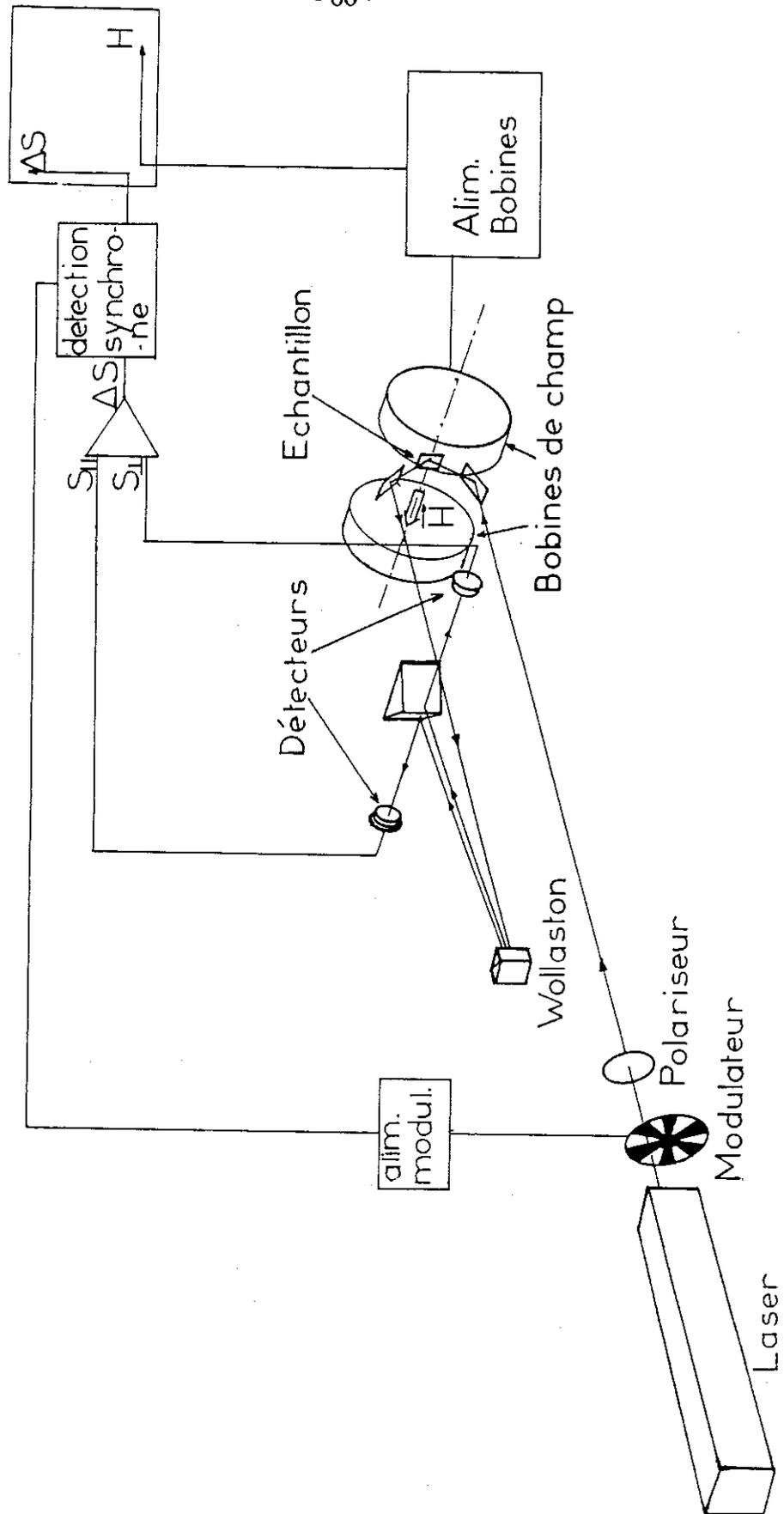


Figure III.6 : Schéma de l'hystérésigraphe à effet Kerr transverse mis au point au Laboratoire Louis Néel durant notre étude.

### III-5 EFFET KERR TRANSVERSE DANS LES ALLIAGES AMORPHES $R_{1-x}Co_x$ et $Y_{1-x}Ni_x$ .

Les différents alliages utilisés pour l'étude présente ont été déposés sur un substrat de verre transparent. Le signal Kerr a été mesuré du côté du verre. Un cycle d'hystérésis typique obtenu sur l'échantillon  $Y_{0.29}Co_{0.71}$  est présenté sur la figure III.7. On retrouve les caractéristiques essentielles observées sur les courbes d'aimantation. La coercitivité est très faible mais, un champ de 250 Oe est nécessaire pour saturer le signal dont l'augmentation avec le champ correspond à la saturation des domaines en bandes sous l'effet du champ appliqué. La valeur du rapport  $\Delta R_{//}/R_{//}$  mesuré entre les deux états d'aimantation saturée est présentée en fonction du pourcentage de terre rare alliée sur la figure III.8 pour les alliages  $Y_{1-x}Co_x$ ,  $La_{1-x}Co_x$  et  $Y_{1-x}Ni_x$ . Dans les alliages à base de Co, le signal  $\Delta R/R$  décroît de 1 % dans Co pur jusqu'à 0 dans l'alliage  $Y_{0.49}Co_{0.51}$ . Dans les alliages  $Y_{1-x}Ni_x$ ,  $\Delta R/R$  varie de 0,2 % dans Ni pur à 0 dans  $Y_{0.1}Ni_{0.9}$ . Ces variations sont réminiscentes de celles du moment magnétique. La figure III.9 montre que  $\Delta R/R$  est approximativement proportionnel au moment magnétique du métal de transition. La constante de proportionnalité est pratiquement la même des les alliages La-Co et Y-Co elle vaut 0,67 %par  $\mu_B$  ; elle est divisée par 2 dans les alliages Y-Ni.

Il n'existe à ce jour aucune évaluation théorique quantitative des effets magnéto-optiques à laquelle les résultats expérimentaux ci-dessus pourraient être comparés. Mais l'intérêt principal de ces mesures est dû au fait que les effets magnéto-optiques peuvent être évalués avec plus de précision que les moments magnétiques dans les matériaux sous forme de couches ultra-minces. Ainsi les valeurs obtenues ci-dessus fournissent-elles une calibration utile pour la caractérisation ultérieure de ce type de matériaux.

Le signal Kerr transverse a été également mesuré dans les alliages  $R_{0.32}Co_{0.68}$  où R = Nd, Gd, Er. Les valeurs de  $\Delta R/R$  obtenues sont comparées à celles mesurées dans l'alliage  $Y_{0.29}Co_{0.71}$  dans le tableau III.1. Dans tous ces alliages, l'amplitude du signal Kerr est très similaire; ce qui indique que la contribution due au cobalt est dominante. Cette propriété a déjà été notée dans des études précédentes des effets magnéto-optiques dans les alliages intermétalliques [III.13, III.15]. Une évaluation plus quantitative de ces phénomènes nécessiterait une étude de la variation thermique du rapport  $\Delta R/R$ . Celle-ci sera prochainement possible au Laboratoire grâce à la construction d'une bobine supraconductrice qui fournit un champ de 1.7 T à l'emplacement de l'échantillon, placé dans l'ultra-vide et soumis à un faisceau lumineux extérieur.

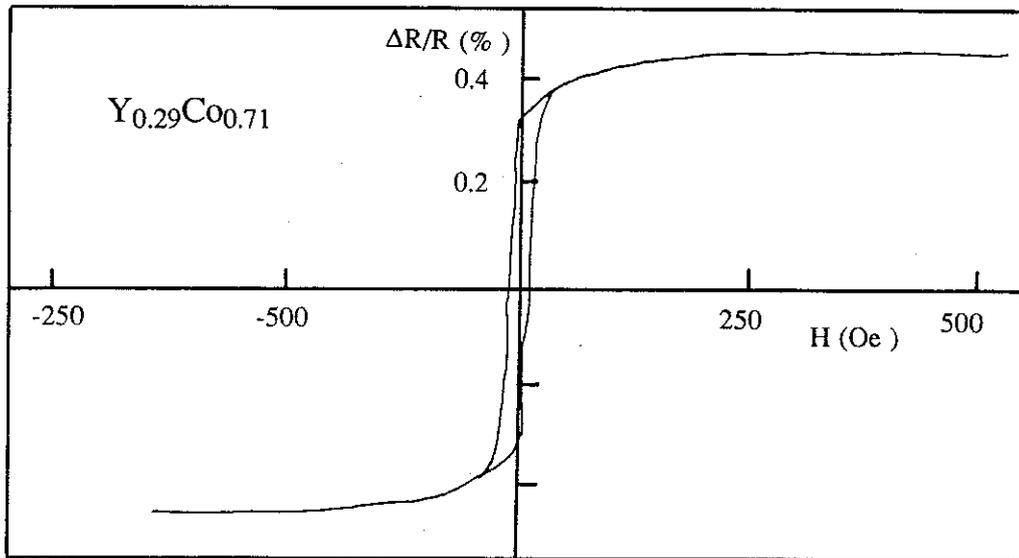


Figure III.7 : Effet Kerr transverse de l'alliage  $Y_{0.29}Co_{0.71}$  en fonction du champ magnétique appliqué.

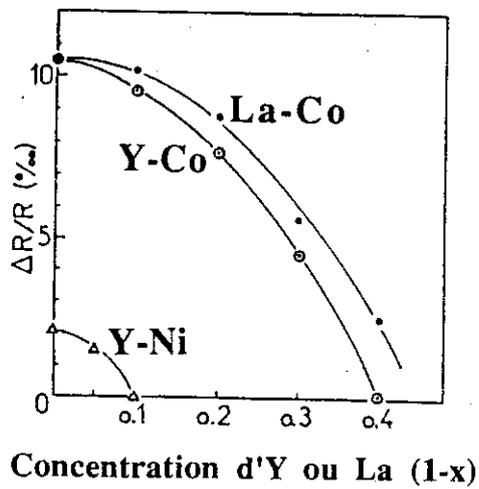


Figure III.8 : Variation du changement de réflectivité mesuré par effet Kerr transverse en fonction de la concentration atomique d'yttrium ou de lanthane dans les alliages amorphes Y-Co, La-Co et Y-Ni.

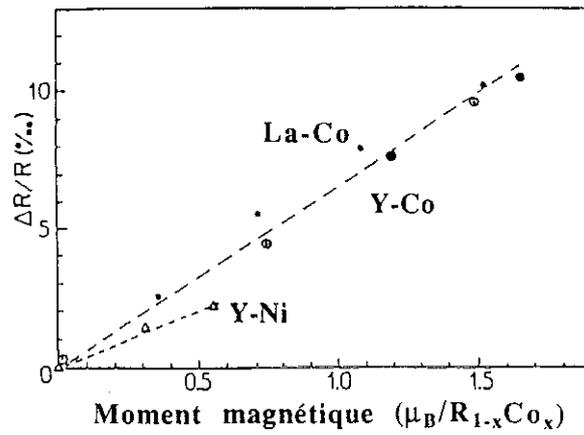


Figure III.9 : Variation du changement de réflectivité mesuré par effet Kerr transverse en fonction du moment 3d dans les alliages amorphes Y-Co, La-Co et Y-Ni.

Tableau III.1 : Valeurs expérimentales du signal Kerr transverse pour les alliages amorphes R-Co (R = Y, Nd, Gd, Er).

Echantillon	Signal Kerr (%)
$Y_{0.29}Co_{0.71}$	0.50
$Nd_{0.32}Co_{0.68}$	0.62
$Gd_{0.32}Co_{0.68}$	0.54
$Er_{0.32}Co_{0.68}$	0.55



CHAPITRE IV

*ANALYSE QUANTITATIVE DES  
PROPRIETES MAGNETIQUES DES  
SYSTEMES SANDWICHES*

*$Y_{0.29}Co_{0.71}/Gd_{0.32}Co_{0.68}/Y_{0.29}Co_{0.71}$  et  
 $Gd_{0.32}Co_{0.68}/Y_{0.29}Co_{0.71}/Gd_{0.32}Co_{0.68}$*



## IV-1 INTRODUCTION

Dans le second chapitre de ce mémoire, nous avons décrit les propriétés magnétiques des couches d'alliages amorphes terre rare-cobalt, homogènes à travers leur épaisseur. Or des études de plus en plus nombreuses apparaissent dans la littérature dans lesquelles les propriétés de systèmes en multicouches sont décrites. Le caractère artificiel de ces systèmes permet de faire apparaître des propriétés originales qui ne sont pas observées dans les alliages homogènes. Nous décrivons, dans ce chapitre et le suivant, les propriétés magnétiques de systèmes en multicouches formés à partir d'alliages terre rare-cobalt, dans lesquels la nature de l'atome de terre rare alterne d'une couche à l'autre. Pour les systèmes que nous avons étudiés (schématisés figure [IV.1]), la composition chimique de chaque couche est approximativement la même :  $R_{0,33}Co_{0,67}$  ; les interactions d'échange principales ont lieu entre atomes de cobalt, elles peuvent être considérées comme homogènes et conduisent au couplage parallèle des moments de cobalt dans toute l'épaisseur de l'échantillon. Au contraire, la nature des atomes de terre rare alternant, l'aimantation macroscopique, l'anisotropie magnétocristalline, la coercitivité peuvent varier fortement d'une couche à l'autre. Le retournement de l'aimantation des différentes couches peut alors se produire pour des valeurs différentes du champ magnétique appliqué. Nous avons analysé ces processus de façon quantitative dans les systèmes formés à partir d'alliages  $Y_{0,29}Co_{0,71}$  et  $Gd_{0,32}Co_{0,68}$  où cela est possible du fait de l'absence d'anisotropie magnétocristalline importante. Les propriétés plus complexes d'autres systèmes pour lesquels l'une au moins des couches présente une forte anisotropie d'origine magnétocristalline ont été également analysées, mais de façon moins approfondie. Afin de réduire les effets de largeur de transition associés à la disparité des interfaces, nous nous sommes limités à des systèmes formés de trois couches, la couche centrale étant prise en sandwich entre les deux couches extrêmes. Dans la suite de la description, les échantillons sont distingués sans préciser la composition chimique exacte des couches constitutives. Par exemple, Y-Co/Gd-Co/Y-Co représente le système sandwich  $Y_{0,29}Co_{0,71}/Gd_{0,32}Co_{0,68}/Y_{0,29}Co_{0,71}$  où l'on suppose que les compositions chimiques correspondent à celles déterminées par microanalyse X sur les couches individuelles de  $1\mu m$ .

Les échantillons ont été préparés par la méthode de pulvérisation cathodique, dans des conditions similaires à celle déjà décrites pour les couches homogènes. L'épaisseur des couches individuelles était de 1170 Å environ pour les alliages R-Co (R = Nd, Gd et Er) et de 1450 Å pour les couches Y-Co. Une couche protectrice de 1000 Å de molybdène a été déposée à la suite de la préparation du sandwich.

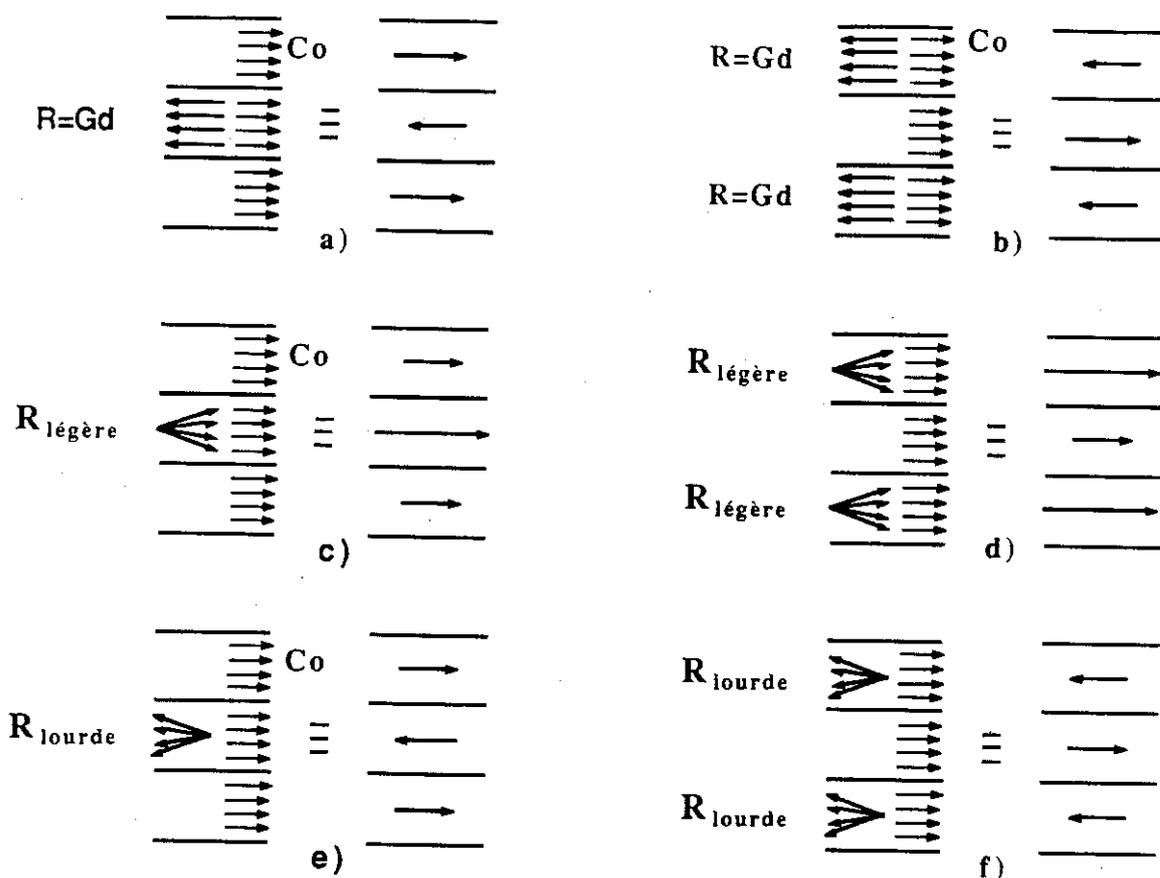


Figure IV.1 : Schémas représentatifs des différents systèmes sandwichs préparés : les systèmes a, b, e et f sont des ferrimagnétiques macroscopiques; c et d sont des ferromagnétiques.

## IV-2 PROPRIETES MAGNETIQUES DU SYSTEME SANDWICH Y-Co/Gd-Co/Y-Co

Le système sandwich Y-Co/Gd-Co/Y-Co correspond au schéma (a) de la figure IV.1. Les atomes d'yttrium n'étant pas magnétiques, l'aimantation spontanée dans les couches Y-Co est déterminée par les seuls atomes de cobalt. Dans la couche Gd-Co, les moments de gadolinium sont couplés antiparallèlement à ceux des atomes de cobalt ; en accord avec les mesures magnétiques sur les alliages Gd-Co décrites au chapitre II, l'aimantation du sous-réseau gadolinium est supérieure à celle du sous-réseau cobalt et détermine la direction de l'aimantation spontanée. Ainsi, la direction de l'aimantation spontanée alterne d'une couche à l'autre. Un tel système peut être décrit schématiquement comme de type ferrimagnétique à l'échelle macroscopique.

## IV-2-1 Mesures d'aimantation

Les mesures d'aimantation ont été effectuées selon la direction d'aimantation la plus facile dans le plan des couches. On a supposé que celle-ci correspondait à la direction d'aimantation rémanente maximum, qui a été déterminée par la méthode de l'échantillon tournant, après saturation dans un champ magnétique initial de 1kOe. Cette détermination a été obtenue en utilisant l'appareillage original mis au point au laboratoire par G.Fillion et M.Maeder.

La courbe  $M(H)$  mesurée à 4,2 K est représentée sur la figure IV.2. Elle présente un petit cycle d'hystérésis central caractérisé par un champ coercitif de 30 Oe et une aimantation spontanée de  $1,1 \cdot 10^{-3}$  uem/cm<sup>2</sup>. Cette faible valeur confirme le couplage antiparallèle des aimantations spontanées des couches Y-Co et Gd-Co. La susceptibilité observée en champ faible est nettement inférieure à celle que l'on peut déduire des mesures sur les couches individuelles Y-Co. Dans ces dernières, la susceptibilité correspond à la rotation des moments vers le plan des couches. Nous associons la faible susceptibilité observée dans les systèmes sandwichs à la valeur plus faible du couple exercé par le champ, l'aimantation spontanée étant réduite en raison du couplage antiparallèle entre aimantations spontanées dans les couches successives. Une transition brutale réversible se produit sous un champ appliqué de 53 Oe ; la discontinuité d'aimantation  $\Delta m_t$  correspondante est de  $12,9 \cdot 10^{-3}$  uem/cm<sup>2</sup>. Cette transition peut être attribuée au retournement de l'aimantation de la couche centrale Gd-Co dont l'aimantation initiale était antiparallèle au champ magnétique appliqué. Au-delà de 100 Oe, l'aimantation devrait être pratiquement saturée d'après les mesures sur les couches individuelles. Pourtant, elle ne se sature que progressivement ; elle atteint  $18,2 \cdot 10^{-3}$  uem/cm<sup>2</sup> à 600 Oe. Nous avons remarqué que sa variation obéissait à une loi en  $1/\sqrt{H}$  (figure IV.6) dont la validité est discutée dans le paragraphe IV-2-3. L'aimantation à saturation extrapolée en champ infini  $m_{sat}$  est de  $20,6 \cdot 10^{-3}$  uem/cm<sup>2</sup>.

Les courbes  $M(H)$  mesurées entre 4,2 et 300 K (figure IV.2) sont semblables à celle obtenue à 4,2 K. Le champ coercitif du petit cycle d'hystérésis central décroît régulièrement depuis 30 Oe à 4,2 K jusqu'à 15 Oe à 300 K ; Il est supérieur au champ coercitif des couches individuelles de Y-Co ou de Gd-Co. Cette augmentation peut être attribuée à la diminution du moment total et donc du couple Zeeman avec le champ appliqué. On observe également une augmentation de l'aimantation spontanée  $m_s$  (figure IV.3) ; ce phénomène est une autre conséquence du couplage antiparallèle des aimantations spontanées des couches Y-Co et Gd-Co. Il résulte de la variation plus rapide de l'aimantation spontanée de la couche centrale Gd-Co par rapport à celle des couches externes Y-Co. Le champ de transition associé au retournement de l'aimantation de la couche Gd-Co augmente depuis 53 Oe à 4,2 K jusqu'à 110 Oe à 300 K (figure IV.4).

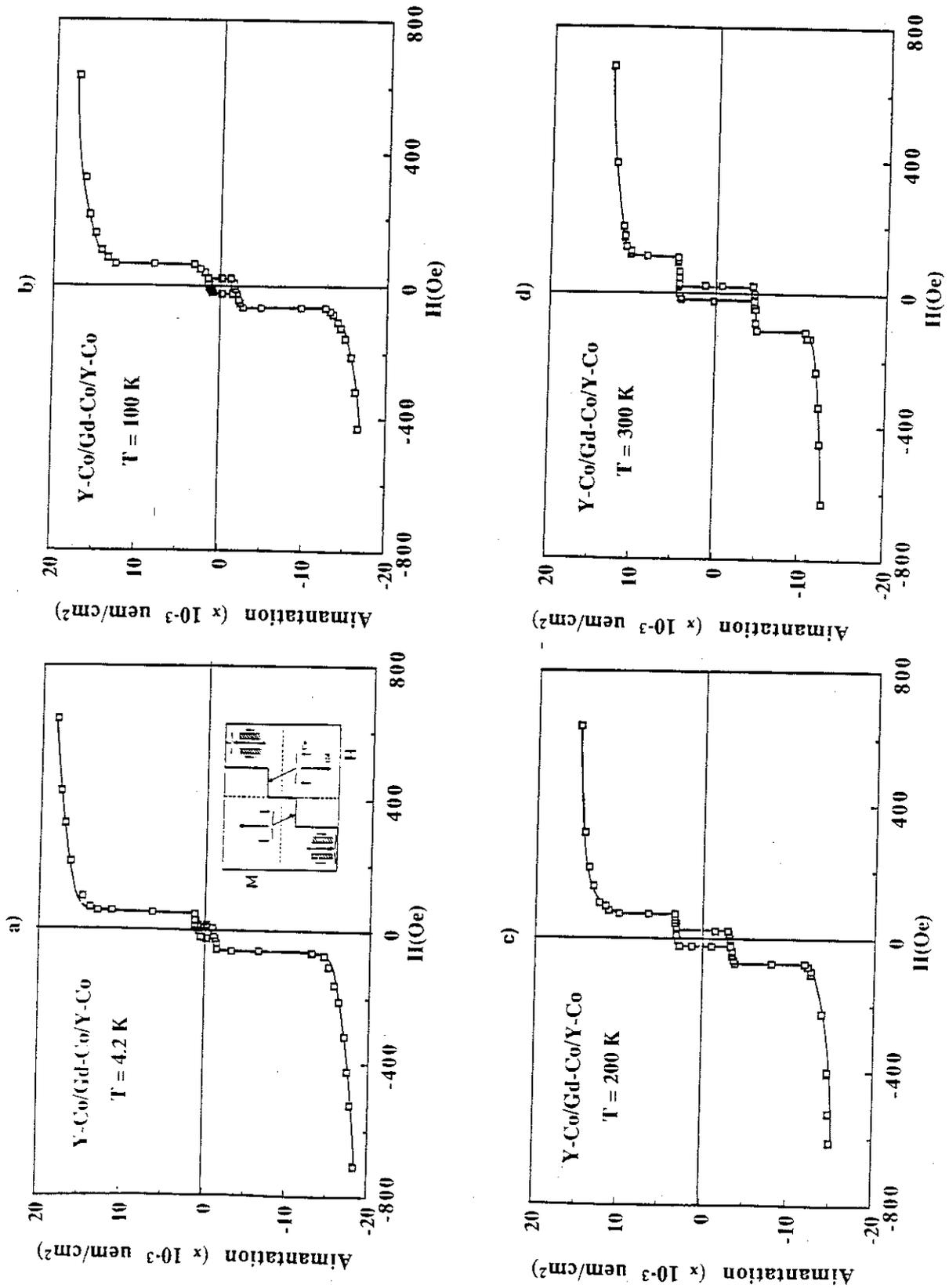


Figure IV.2 : Variations isothermes de l'aimantation du système sandwich Y-Co/Gd-Co/Y-Co en fonction du champ magnétique appliqué. L'encart représente les différentes configurations des moments magnétiques.

L'aimantation à saturation aux différentes températures a été déduite de la même façon qu'à 4,2 K (figure IV-6) ; sa variation thermique est présentée sur la figure IV.7. Les principaux paramètres physiques caractéristiques des mesures d'aimantation sont reportés dans le tableau IV.1.

Tableau IV.1 : Principaux paramètres physiques déduits des mesures d'aimantation effectuées sur le système sandwich Y-Co/Gd-Co/Y-Co.

Température T(K)	Aimantation spontanée $m_s$ ( $\times 10^{-3}$ uem/cm <sup>2</sup> )	Champ de transition $H_t$ (Oe)	Saut d'aimantation $\Delta m_t$ ( $\times 10^{-3}$ uem/cm <sup>2</sup> )	Energie de paroi $\gamma_t$ (erg/cm <sup>2</sup> )	Aimantation à saturation $m_{sat}$ ( $\times 10^{-3}$ uem/cm <sup>2</sup> )
4,2	1,0	53	10,8	0,29	20,60
100	1,5	63	9,6	0,30	19,13
150	2,1	74	8,6	0,32	18,25
200	3,1	74	7,5	0,28	17,31
250	3,9	85	6,6	0,28	16,01
300	4,2	110	5,8	0,31	14,94

#### IV-2-2 Analyse qualitative des courbes M(H)

##### *Aimantation spontanée*

Considérant le couplage antiparallèle entre les couches constituantes, l'aimantation spontanée  $m_s$  du système sandwich Y-Co/Gd-Co/Y-Co, s'exprime à priori sous la forme :

$$m_s(T) = 2 \alpha \cos\varphi_{Y-Co} m_s^{Y-Co}(T) - \beta \cos\varphi_{Gd-Co} m_s^{Gd-Co}(T) \quad (IV.1)$$

où  $\alpha$  et  $\beta$  représentent le rapport des épaisseurs des couches dans le système sandwich et dans les couches individuelles respectivement pour Y-Co et Gd-Co ;  $\varphi_{Y-Co}$  est l'angle des moments magnétiques du cobalt par rapport au plan de base dans les couches Y-Co dû à la structure de domaines en bandes (voir chapitre II). Du fait que les moments du cobalt des couches Y-Co et Gd-Co sont couplés par des interactions d'échange, il est logique de supposer que les moments du cobalt dans la couche Gd-Co ne sont pas exactement dans le plan des couches bien que ce soit le cas dans les couches individuelles. C'est pour cette raison que l'angle  $\varphi_{Gd-Co}$  est introduit dans la relation IV.1. La comparaison entre les valeurs expérimentales de  $m_s(T)$  et celles déduites de la relation IV.1 (figure IV.3) conduit aux valeurs :  $\alpha \cos\varphi_{Y-Co} = 0,76$  et  $\beta \cos\varphi_{Gd-Co} = 0,87$ .

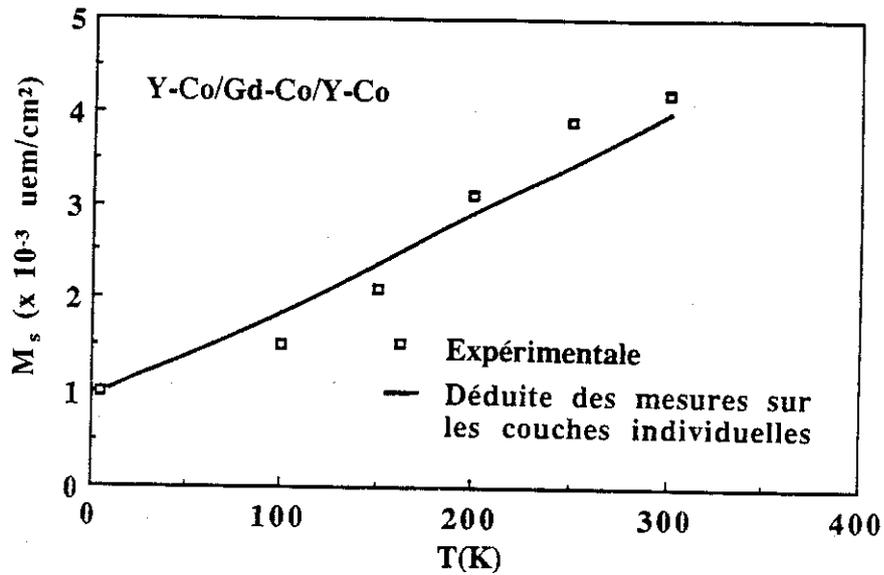


Figure IV.3. Variation thermique de l'aimantation spontanée du système sandwich Y-Co/Gd-Co/Y-Co.

### Champ de transition

Le retournement de l'aimantation de la couche Gd-Co dans le champ de transition  $H_t$  permet de réduire l'énergie Zeeman. Mais à la suite de cette transition, les moments magnétiques du sous-réseau Co de la couche centrale sont couplés antiparallèlement aux moments magnétiques Co des couches externes. Une paroi doit donc se former aux deux interfaces Y-Co/Gd-Co afin de réduire la perte d'énergie d'échange. L'énergie de paroi  $\gamma_t$  peut être évaluée en écrivant, du fait du caractère réversible de la transition :

$$2\gamma_t = H_t \Delta m_t \quad (\text{IV.2})$$

où le coefficient 2 correspond à la présence de deux interfaces ( $m_t$  est toujours un moment par unité de surface). La variation thermique de l'énergie de paroi déduite est présentée sur la figure IV.5.

La relation (IV.2) implique que le champ de transition  $H_t$  mesuré expérimentalement doit dépendre de l'épaisseur de la couche Gd-Co par l'intermédiaire du terme  $\Delta m_t$ . Cette propriété n'a pu être vérifiée expérimentalement durant le temps de notre étude ; elle est originale aux couches minces dans lesquelles interviennent souvent des compétitions entre termes d'énergie volumique et de surface. Au contraire, dans les systèmes macroscopiques, les champs de transition ne dépendent pas du volume de l'échantillon car les termes d'énergie en jeu sont proportionnels à ce volume. Un cas particulier est celui du retournement de l'aimantation au champ coercitif : l'énergie Zeeman

(terme de volume) est en compétition avec l'énergie de paroi (terme de surface) comme dans les multicouches étudiées ici. Mais le volume en jeu pour le retournement de l'aimantation est beaucoup plus petit que le volume de l'échantillon si bien que le champ coercitif ne dépend pas de ce dernier.

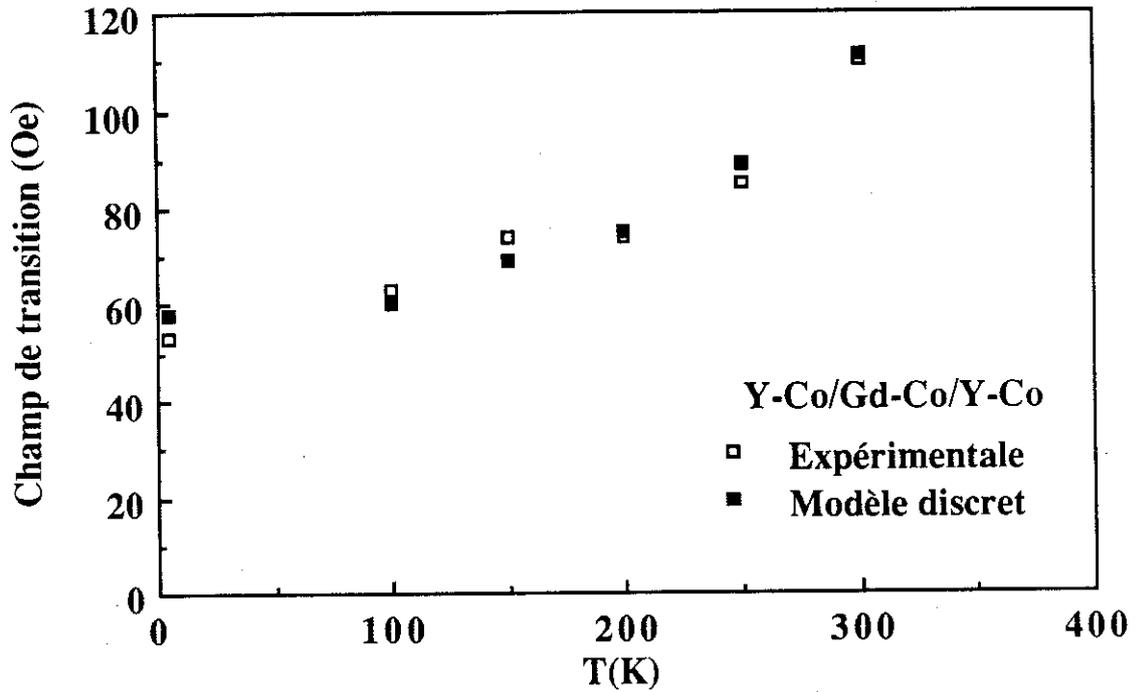


Figure IV.4. : Variation thermique du champ de transition dans le système sandwich Y-Co/Gd-Co/Y-Co.

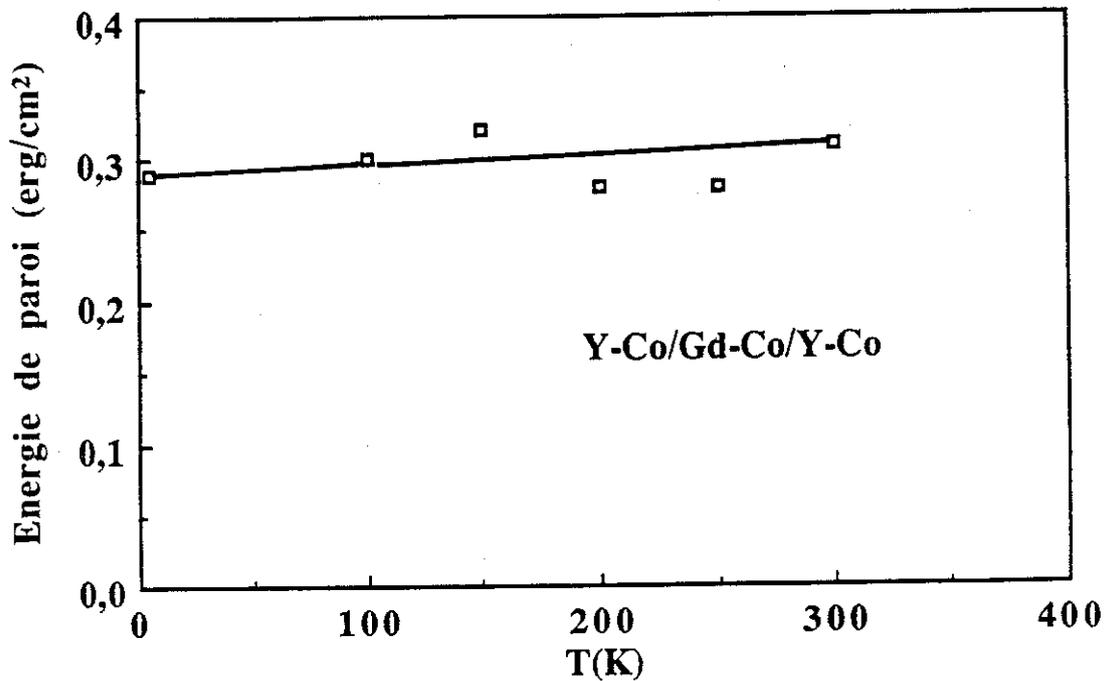


Figure IV.5. : Variation thermique de l'énergie de paroi à la transition ( $\gamma_t$ ) dans le système sandwich Y-Co/Gd-Co/Y-Co.

**APPROCHE A LA SATURATION ET AIMANTATION A SATURATION**

Au delà du champ de transition, l'approche à la saturation peut être discutée en considérant les mêmes termes d'énergie que précédemment. L'énergie d'échange favorise une rotation progressive de l'aimantation et l'énergie Zeeman, un alignement selon le champ de l'aimantation spontanée de chaque couche, c'est à dire une rotation brutale des moments du cobalt à l'interface. La variation expérimentale de l'aimantation plus progressive que dans les couches individuelles, correspond alors au retrécissement progressif de la paroi lorsque le champ magnétique appliqué augmente. L'aimantation à saturation  $m_{sat}$  déduite de l'extrapolation en  $1/\sqrt{H}$  doit donc correspondre à une paroi infiniment mince, et peut s'exprimer :

$$m_{sat}(T) = 2 \alpha m_{sat}^{Y-Co}(T) + \beta m_{sat}^{Gd-Co}(T) \quad (IV.3)$$

Utilisant les données expérimentales, on obtient  $\alpha = 1,23$  et  $\beta = 0,97$ . La variation alors calculée  $m_{sat}(T)$  est comparée à la variation expérimentale sur la figure IV.7. La valeur  $\alpha = 1,23$  est proche de la valeur 1,24 attendue pour le rapport entre les épaisseurs des couches Y-Co dans le sandwich (1450 Å) et dans la couche individuelle (1170 Å). De même la valeur de  $\beta$  est proche de la valeur 1 attendue. Des valeurs de  $\alpha \cos\varphi_{Y-Co}$  et  $\beta \cos\varphi_{Gd-Co}$  obtenues précédemment, on déduit  $\varphi_{Y-Co} = 52^\circ$  et  $\varphi_{Gd-Co} = 26^\circ$ .

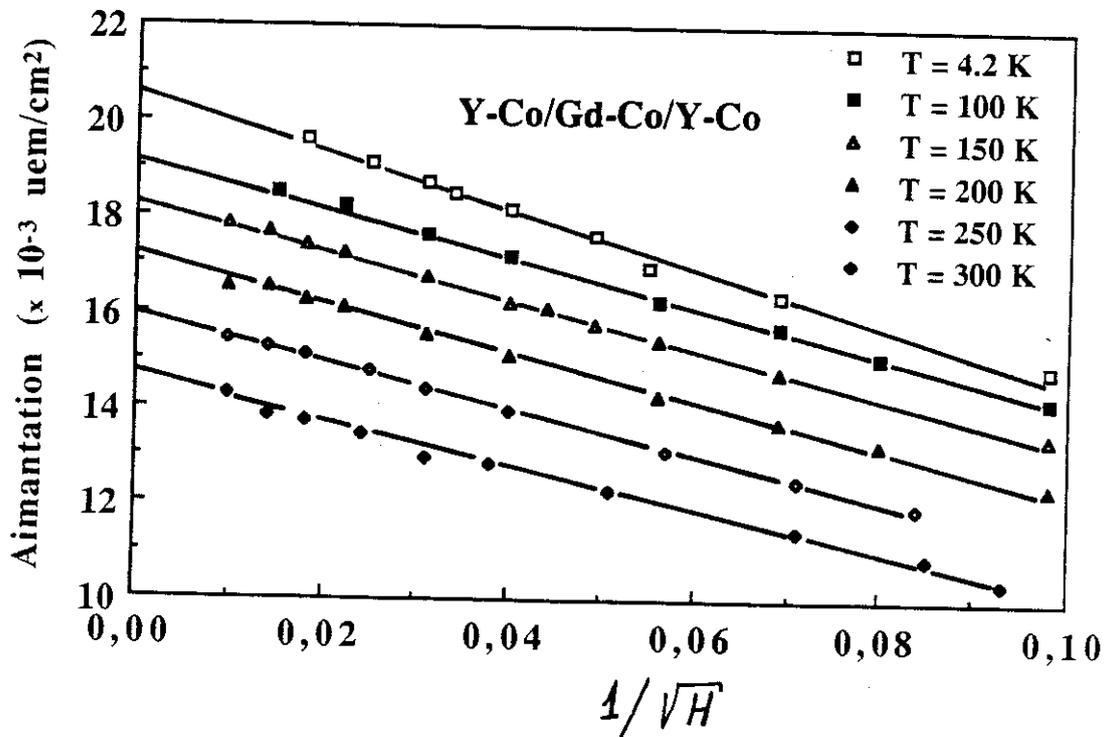


Figure IV. 6. : Variation isotherme de l'aimantation du système sandwich Y-Co/Gd-Co/Y-Co en fonction de  $1/\sqrt{H}$ .

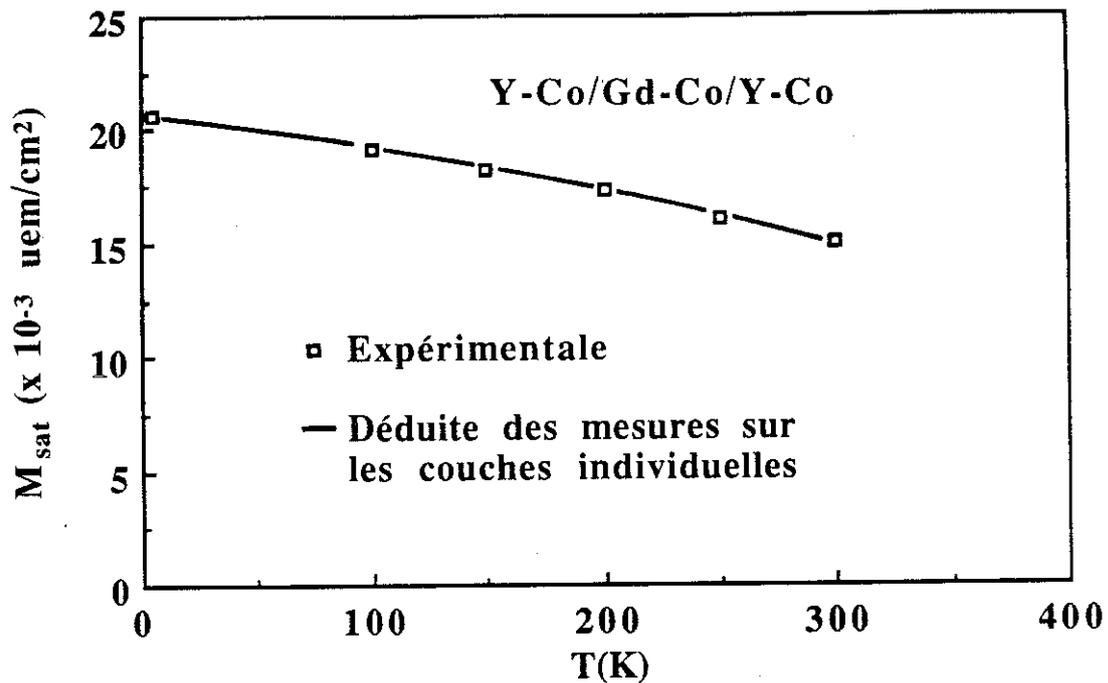


Figure IV.7. : Variation thermique de l'aimantation à saturation du système sandwich Y-Co/Gd-Co/Y-Co

#### IV-2-3 DESCRIPTION ANALYTIQUE DU COMPORTEMENT MAGNETIQUE DU SYSTEME SANDWICH Y-Co/Gd-Co/Y-Co

##### *Description du modèle*

A l'aide d'un modèle analytique simple, nous avons analysé le comportement magnétique du système Y-Co/Gd-Co/Y-Co au delà du champ de transition  $H_T$ . Dans un premier temps, nous considérons une seule interface séparant deux couches notées I et II, d'épaisseurs respectives  $e_1$  et  $e_2$  et d'aimantations spontanées par unité de volume  $M_1$  et  $M_2$  supposées positives et confinées dans le plan des couches. Dans le milieu I, l'aimantation spontanée  $M_1$  est parallèle à l'aimantation du sous-réseau Co ; dans le milieu II, en raison du couplage antiparallèle entre moments R et Co, l'aimantation spontanée  $M_2$  est au contraire antiparallèle à l'aimantation du sous-réseau Co. Le champ magnétique est appliqué dans le plan de l'interface entre les deux couches. La distance algébrique allant d'un plan atomique donné au centre de l'interface est caractérisée par l'abscisse  $x$  ;  $x = 0$  définit le centre de l'interface,  $x < 0$  (respectivement  $x > 0$ ) correspond au milieu I (respectivement II). Les propriétés magnétiques de chacune des couches sont invariantes dans le plan de l'interface, de sorte que le système peut être considéré comme unidimensionnel selon l'axe  $x$ . Afin d'évaluer les propriétés magnétiques, il est nécessaire d'exprimer l'énergie du système dans un champ  $H$  :

$$E = \int_{-e_1}^{e_2} A \left( \frac{\partial \theta}{\partial x} \right)^2 dx - M_1 H \int_{-e_1}^0 \text{Cos } \theta(x) dx + M_2 H \int_0^{e_2} \text{Cos } \theta(x) dx \quad (\text{IV.4})$$

où A est la constante d'échange et  $\theta(x)$  représente l'angle des moments de cobalt par rapport au champ appliqué. Dans la suite, on notera  $\theta_1(x)$  ou  $\theta_2(x)$  selon que l'on se trouve dans le milieu I ou II. Dans la relation (IV.4), le premier terme représente l'énergie de paroi dans la mesure où l'on a supposé l'énergie d'anisotropie négligeable. Les deux derniers termes représentent l'énergie Zeemann.

Nous supposons dans la suite que la zone de non colinéarité est limitée à l'interface et faible par rapport aux épaisseurs  $e_1$  et  $e_2$ . Dans ces conditions, les intégrales peuvent être étendues à l'infini. Afin de déterminer les valeurs de  $\theta(x)$ , on écrit que le couple agissant sur chaque moment magnétique est nul :

$$\frac{\partial E}{\partial \theta(x)} = 0 \quad \text{quel que soit } x \quad (\text{IV.5})$$

Il en découle que :

$$\text{Pour } x < 0, \quad 2A \frac{d^2 \theta_1(x)}{dx^2} = M_1 H \text{ Sin } \theta_1 \quad (\text{IV.6})$$

$$\text{Pour } x > 0, \quad 2A \frac{d^2 \theta_2(x)}{dx^2} = -M_2 H \text{ Sin } \theta_2 \quad (\text{IV.7})$$

L'intégration de ces équations conduit à :

$$A \left( \frac{\partial \theta_1}{\partial x} \right)^2 = -M_1 H \text{ Cos } \theta_1 + M_1 H \quad (\text{IV.8})$$

$$A \left( \frac{\partial \theta_2}{\partial x} \right)^2 = M_2 H \text{ Cos } \theta_2 + M_2 H \quad (\text{IV.9})$$

où les termes constants ont été obtenus en exprimant que loin de l'interface, les moments magnétiques sont pratiquement parallèles ou antiparallèles au champ. Soit :



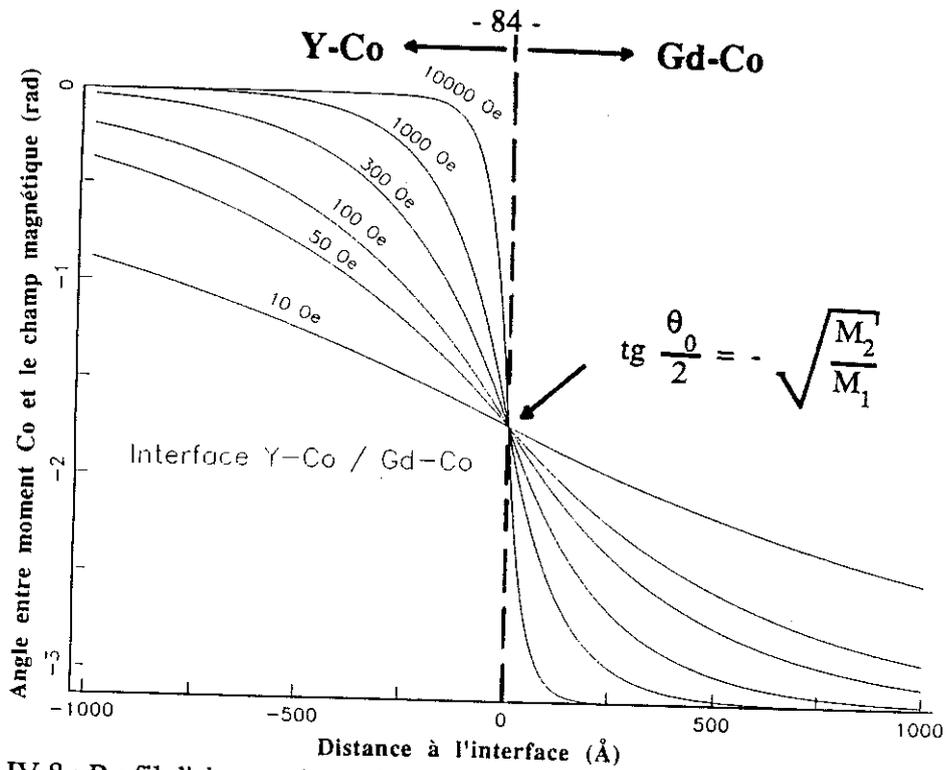


Figure IV.8 : Profil d'aimantation calculé à différentes valeurs du champ magnétique pour une interface Y-Co/Gd-Co.

### Energie de paroi

L'intégration des relations (IV.8) et (IV.9) indique qu'à l'équilibre, l'énergie de paroi est identique à l'énergie Zeeman perdue du fait que l'aimantation n'est pas saturée selon le champ. On a donc :

$$\gamma = \int_{-\infty}^{+\infty} A \left( \frac{\partial \theta}{\partial x} \right)^2 dx \quad (\text{IV.17a})$$

$$= \int_{-\infty}^0 M_1 H (1 - \cos \theta_1) dx + \int_0^{+\infty} M_2 H (1 + \cos \theta_2) dx \quad (\text{IV.17b})$$

A partir des relations (IV.13) et (IV.14), on calcule les contributions  $\gamma_1$  et  $\gamma_2$  des couches I et II à l'énergie de paroi  $\gamma$ . Soit :

$$\gamma_1 = 2 \sqrt{2 M_1 H A} \left[ 1 - \sqrt{\frac{M_1}{M_1 + M_2}} \right] \quad (\text{IV.18 a})$$

$$\gamma_2 = 2 \sqrt{2 M_2 H A} \left[ 1 - \sqrt{\frac{M_2}{M_1 + M_2}} \right] \quad (\text{IV.18 b})$$

$$\gamma = 2 \sqrt{2 A H} (\sqrt{M_1} + \sqrt{M_2} - \sqrt{M_1 + M_2}) \quad (IV.19)$$

Dans le système Y-Co/Gd-Co/Y-Co, la relation (IV.19) s'applique dans la mesure où l'aimantation de la couche Gd-Co s'est retournée pour s'aligner selon le champ magnétique appliqué. Cette relation peut en particulier être appliquée au champ de transition. A partir des valeurs expérimentales de  $M_1$  et  $M_2$  (tableau II.5) et  $\gamma$  (tableau IV.1), on obtient alors des valeurs de A qui varient de  $1,1 \cdot 10^{-6}$  erg/cm à  $0,9 \cdot 10^{-6}$  erg/cm entre 4,2 et 300 K (figure IV.9).

L'épaisseur de paroi s'exprime :

$$\delta = \frac{\pi}{\frac{d\theta}{dx}} \Big|_{x=0} = \pi \sqrt{\frac{(M_1 + M_2) A}{2M_1 M_2 H}} \quad (IV.20)$$

Pour l'interface Y-Co/Gd-Co, on obtient à 4,2 K :

$$\delta = \frac{8,3 \times 10^{-5}}{\sqrt{H}} \text{ cm} \quad (III.21)$$

$\delta$  varie de 37 Å à 50 kOe à 371 Å à 500 Oe. Pour des champs inférieurs à 500 Oe, l'épaisseur de paroi devient comparable à l'épaisseur des couches analysées dans notre étude.

### *Approche à la saturation*

Nous avons déjà indiqué que l'approche à la saturation dans le système sandwich Y-Co/Gd-Co/Y-Co est gouvernée par le rétrécissement progressif de la paroi située aux deux interfaces Y-Co/Gd-Co. Soit  $\Delta m'_{\text{sat}}$  l'écart à la saturation correspondant à une bicouche Y-Co/Gd-Co, il peut s'exprimer :

$$\begin{aligned} \Delta m'_{\text{Sat}} = m_{\text{Sat}} - m(H) &= M_1 \int_{-\infty}^0 [1 - \cos \theta(x)] dx \\ &+ M_2 \int_0^{\infty} [1 + \cos \theta(x)] dx \end{aligned} \quad (III.21)$$

De la relation (IV.17b), il découle immédiatement :

$$\Delta m'_{\text{sat}} = \gamma/H \quad (\text{IV.22})$$

d'où :

$$\Delta m'_{\text{sat}} = 2 \sqrt{\frac{2A}{H}} \left[ \sqrt{M_1} + \sqrt{M_2} - \sqrt{M_1 + M_2} \right] \quad (\text{IV.23})$$

L'écart à la saturation peut être relié à la largeur de paroi :

$$\frac{\Delta m'_{\text{sat}}}{d} = \frac{4}{\pi} \left[ \frac{M_1 \sqrt{M_2} + M_2 \sqrt{M_1}}{\sqrt{M_1 + M_2}} - 1 \right] \quad (\text{IV.24})$$

Pour le système sandwich Y-Co/Gd-Co/Y-Co, l'écart à la saturation s'écrit :

$$\Delta m_{\text{sat}} = 2 \Delta m'_{\text{sat}} = \frac{2\gamma}{H} \quad (\text{IV.25})$$

soit :

$$\Delta m_{\text{sat}} = 4 \sqrt{\frac{2A}{H}} \left[ \sqrt{M_1} + \sqrt{M_2} - \sqrt{M_1 + M_2} \right] \quad (\text{IV.26})$$

La relation (IV.26) a été utilisée pour déduire la valeur de la constante d'échange A au-delà du champ de transition à partir de la pente des droites représentant la variation de l'aimantation en fonction de  $1/\sqrt{H}$  (figure IV.9). Ces valeurs de A sont comparées à celles déduites de l'énergie de paroi analysée dans le paragraphe précédent (tableau IV.2 et figure IV.9). Les valeurs de A obtenues par les deux approches sont de l'ordre de  $8 \times 10^{-7}$  erg/cm<sup>2</sup>. Elles sont tout à fait comparables à celles attribuées habituellement aux alliages de métaux de transition pour lesquels la température de Curie  $T_c$  est d'environ 600 K. Mais, les valeurs de A déduites de l'énergie de paroi sont supérieures à celles déduites de la loi en  $1/\sqrt{H}$ . Ces différences peuvent être attribuées aux effets de taille finie qui sont importants en champs faibles puisque l'épaisseur de paroi  $\delta$  devient comparable aux épaisseurs des couches constituantes. Nous montrerons dans le paragraphe suivant que ces différences peuvent également résulter de la non prise en compte de l'anisotropie dans les analyses précédentes.

On note enfin, à partir des relations (IV.2) et (IV.25), que le saut d'aimantation et l'écart à la saturation devraient être égaux dans le champ  $H=H_t$ . Mais on

a supposé que les moments magnétiques étaient confinés dans le plan des couches, or ce n'est pas le cas du système Y-Co/Gd-Co/Y-Co en champ faible. C'est pourquoi le saut d'aimantation observé expérimentalement à la transition est plus important que l'écart à la saturation correspondant.

Tableau IV.2 : valeurs de la constante d'échange A déduites des valeurs de l'énergie de paroi à la transition et de la loi en  $1/\sqrt{H}$ .

Température T (K)	Aimantation spontanée $M_s$ (uem/cm <sup>3</sup> )		Constante d'échange A (x 10 <sup>-7</sup> uem/cm)	
	$M_s^{Y-Co}$	$M_s^{Gd-Co}$	déduite de la valeur de l'énergie de paroi $\gamma_t$	déduite de la loi en $1/\sqrt{H}$
4,2	477	677	10,7	6,6
100	433	575	10,5	6,1
150	426	510	10,8	5,2
200	415	440	9,0	5,9
250	405	371	8,7	5,9
300	398	303	9,2	5,7

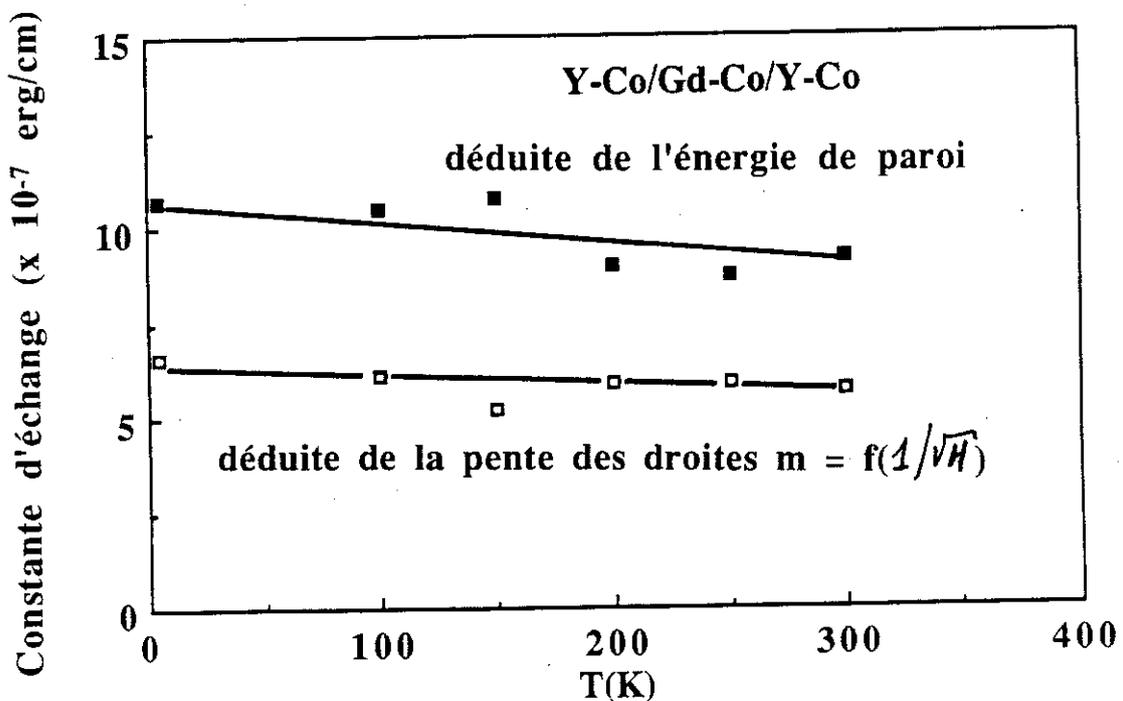


Figure IV.9 : Variation thermique de la constante d'échange A déterminée à partir de la pente des droites  $M = f(1/\sqrt{H})$  et de la valeur de l'énergie de paroi à la saturation  $\gamma_t$ .

#### IV-2-4 MODELE DISCRET DU COMPORTEMENT MAGNETIQUE DU SYSTEME SANDWICH Y-Co/Gd-Co/Y-Co.

Une des conditions de validité du modèle analytique développé dans le paragraphe précédent est que l'épaisseur de la paroi qui se forme à l'interface entre deux couches soit inférieure à celle de chacune des couches individuelles. Or les valeurs de  $\delta$  pour des champs inférieurs à 500 Oe sont comparables à celles des épaisseurs des couches analysées dans notre étude. Aussi avons-nous développé un modèle numérique discret permettant de tenir compte des effets de taille finie, importants en champ faibles. Une telle approche permet également d'introduire une anisotropie magnétocristalline dans le modèle alors que celle-ci ne peut pas être traitée simplement dans l'approche analytique.

##### *Description du modèle*

Comme dans l'approche analytique, les propriétés magnétiques de chacune des couches sont supposées invariantes dans un plan atomique parallèle au plan de l'interface. La distance moyenne entre plans atomiques a été prise comme  $a = (V_{at})^{1/3}$  où  $V_{at}$  est le volume atomique moyen de l'état amorphe. Considérant que la densité de l'état amorphe est de 8% inférieure à celle de l'état cristallisé (voir chapitre II.), on déduit  $a = 2,55 \text{ \AA}$ . Le plan atomique central du système sandwich est considéré comme un plan de symétrie pour l'aimantation, de sorte que le comportement magnétique peut être analysé en considérant une chaîne représentant la moitié de l'épaisseur.

L'énergie totale par unité de surface est :

$$E = 2 \left[ \sum_{i=1}^{N-1} \frac{A}{a} (\theta_i - \theta_{i-1})^2 - \sum_{i=0}^{N_1-1} M_1 H a \cos \theta_i + \sum_{i=N_1}^{N-1} M_2 H a \cos \theta_i \right] \quad (IV.27)$$

où  $N_1$  est le nombre d'atomes de la couche 1 et  $N$  le nombre d'atomes de la moitié du système sandwich. Cette relation est, pour le cas discret l'équivalent, de la relation (IV.4) pour le cas continu. Le profil d'aimantation s'obtient en minimisant l'énergie avec la condition de symétrie  $\theta_N = \theta_{N-1}$ . L'aimantation  $m(H)$  du système est donnée par la relation :

$$m(H) = 2 \left[ \sum_{i=0}^{N_1-1} M_1 a \cos \theta_i - \sum_{i=N_1}^{N-1} M_2 a \cos \theta_i \right] \quad (IV.28)$$

et l'énergie de paroi par :

$$\gamma(H) = \frac{A}{a} \sum_{i=1}^{N-1} [\theta_i - \theta_{i-1}]^2 \quad (IV.29)$$

Puisque l'énergie de paroi est égale à l'énergie Zeeman perdue, on a également :

$$\gamma(H) = \sum_{i=0}^{N_1-1} H M_1 a (1 - \text{Cos}\theta_i) + \sum_{i=N_1}^{N-1} H M_2 a (1 + \text{Cos}\theta_i) \quad (IV.30)$$

Pour chaque valeur de  $\theta_N$ ,  $\theta_{N-1}$  est fixé par  $\theta_{N-1} = \theta_N$ . Il est alors possible de calculer par récurrence tous les  $\theta_i$  de  $N$  à 0 et d'en déduire l'énergie  $E(\theta_N)$  correspondante. Les angles  $\theta_i$  sont reliés par :

$$\frac{\partial E}{\partial \theta_i} = 0 \quad \text{quel que soit } \theta_i \quad (IV.31)$$

Soit :

$$\text{De } i = 0 \text{ à } N_1-1, \quad \frac{2A}{a} (2\theta_i - \theta_{i-1} - \theta_{i+1}) + M_1 H a \text{Sin } \theta_i = 0 \quad (IV.32)$$

$$\text{De } i = N_1 \text{ à } N-1, \quad \frac{2A}{a} (2\theta_i - \theta_{i-1} - \theta_{i+1}) - M_2 H a \text{Sin } \theta_i = 0 \quad (IV.33)$$

$\theta_N$  est alors varié jusqu'à minimisation de l'énergie  $E(\theta_N)$ . En prenant les valeurs  $M_1$  et  $M_2$  obtenues dans les couches individuelles, ainsi que celle de  $A$  obtenue à partir de la pente des courbes  $m = f(1/\sqrt{H})$  [figure IV.6], on obtient les courbes  $m(H)$  représentées sur la figure IV.11. L'accord avec les valeurs expérimentales est très bon en champ fort ( $H > 2$  kOe), mais en champ faible la variation en fonction du champ de l'aimantation calculée est plus progressive que celle observée expérimentalement. Nous avons attribué cet effet à l'existence d'une anisotropie uniaxiale dans le plan des couches. Pour des raisons de simplicité, nous avons supposé que la valeur de l'anisotropie est la même dans les deux matériaux constituant le système sandwich. Elle s'exprime :

$$E_a = -2D \sum_{i=1}^{N-1} \text{Cos}^2 \theta_i \quad (IV.34)$$

La valeur du coefficient d'anisotropie  $D$  a été ajustée par comparaison de la variation d'aimantation calculée à la variation expérimentale (figure IV.11). La valeur de  $D$  correspondante est  $0,8 \times 10^4 \text{ erg/cm}^3$ . Les profils d'aimantation associés à cette valeur de  $D$  pour différentes valeurs de  $H$  sont présentés sur la figure IV.10. Les figures IV.12 et IV.13 représentent les variations respectives de l'épaisseur et de l'énergie de paroi à différentes températures entre 4,2 et 300 K.

En-dessous du champ de transition, l'aimantation calculée ne correspond pas à l'aimantation expérimentale. Nous avons montré en effet (voir paragraphe II-4-1) que dans les alliages Y-Co amorphes, l'aimantation spontanée n'est pas parfaitement dans le plan des couches. Au-contre, la valeur du champ de transition et la variation de l'aimantation au-delà sont en accord satisfaisant avec l'expérience. Ainsi, le désaccord précédemment observé dans cette gamme de champ est effectivement dû aux effets de taille finie et à l'influence de l'anisotropie. Ceux-ci n'affectent pas le comportement magnétique du système au-dessus d'un champ de 1 kOe environ car, l'épaisseur de paroi est alors inférieure à l'épaisseur des couches individuelles et l'énergie Zeeman bien supérieure à l'énergie d'anisotropie. Le comportement magnétique calculé est alors identique à celui déjà calculé au paragraphe précédent comme le montre la similitude entre les profils d'aimantation (figures IV.8 et 10).

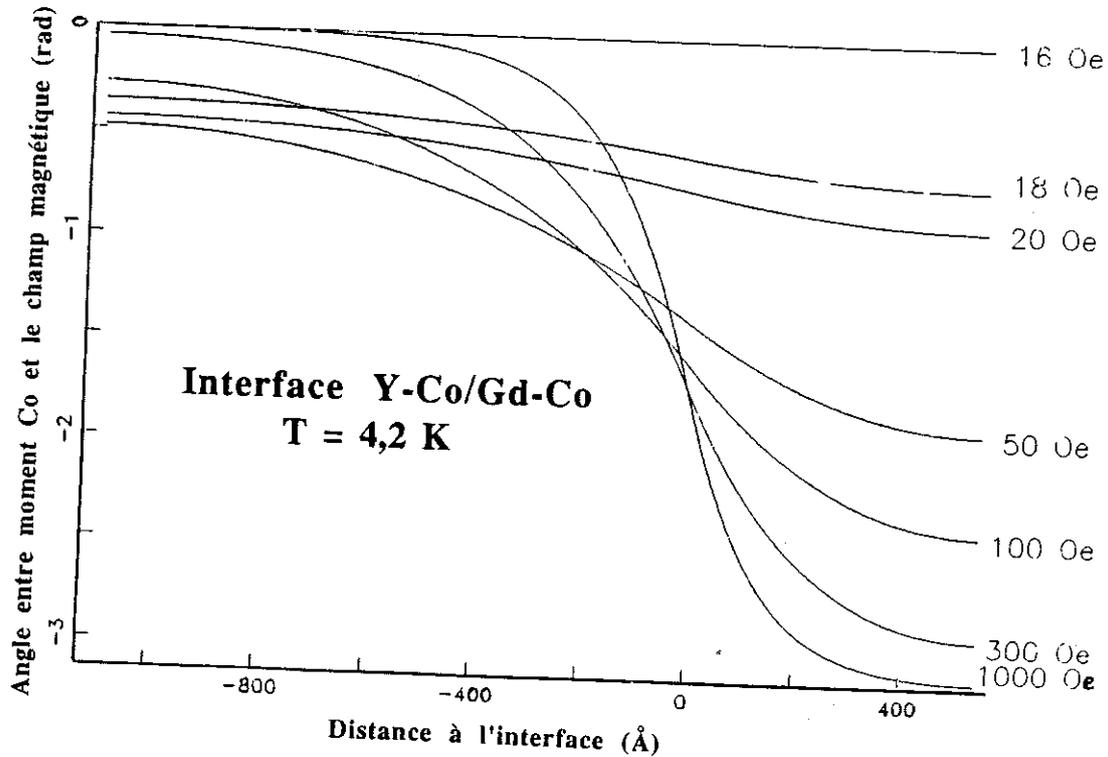


Figure IV.10 : Profil d'aimantation calculé à 4,2 K selon l'approche numérique pour une interface Y-Co/Gd-Co.

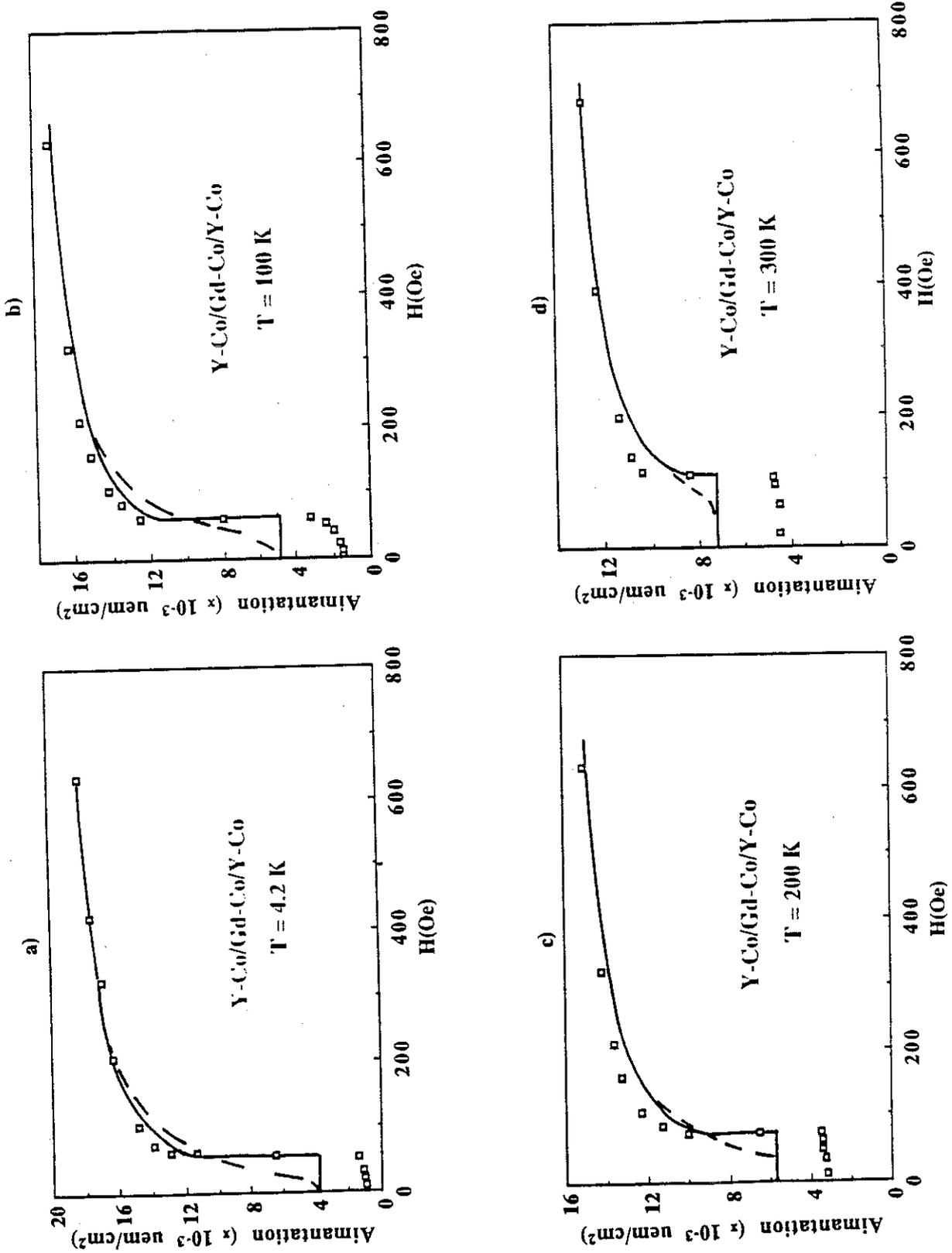


Figure IV.11 : Courbes d'aimantation à différentes températures pour le système sandwich Y-Co/Gd-Co/Y-Co. Les carrés représentent la courbe  $m(H)$  expérimentale ; les courbes obtenues à partir du modèle discret avec (respectivement sans) anisotropie sont représentées par une ligne continue (respectivement en traits discontinus).

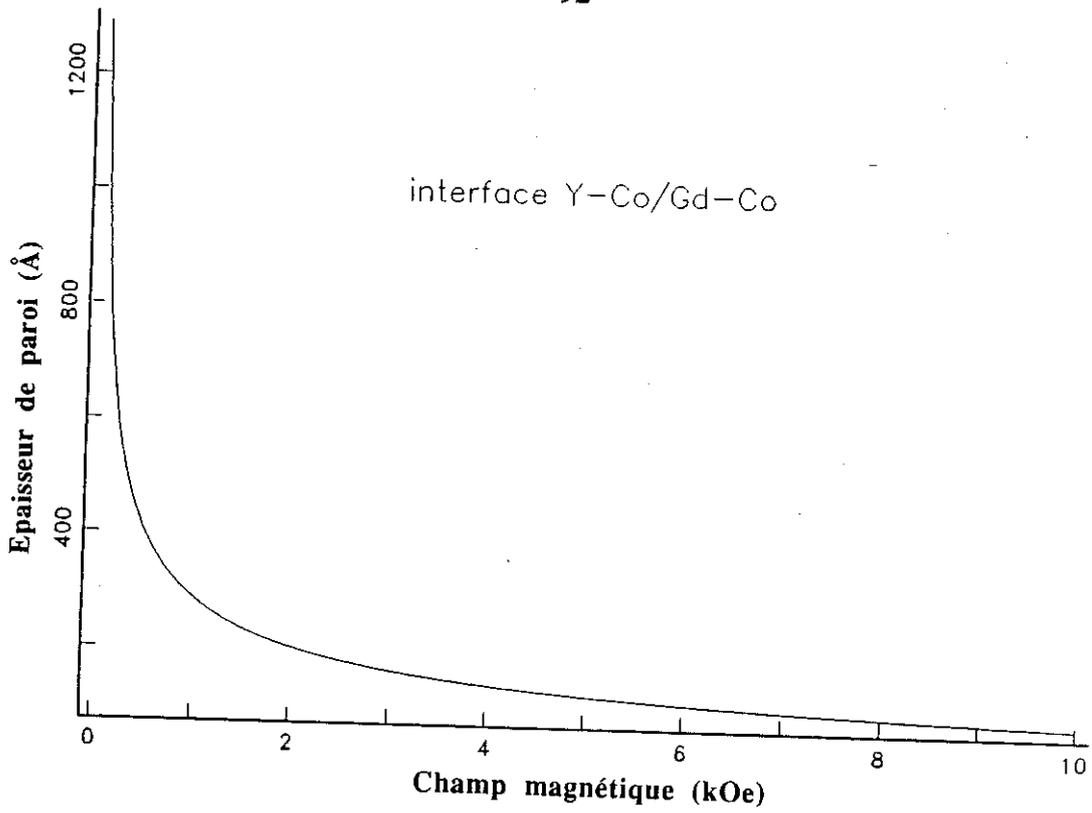


Figure IV.12 : Variation de l'épaisseur de paroi en fonction du champ appliqué pour une interface Y-Co/Gd-Co.

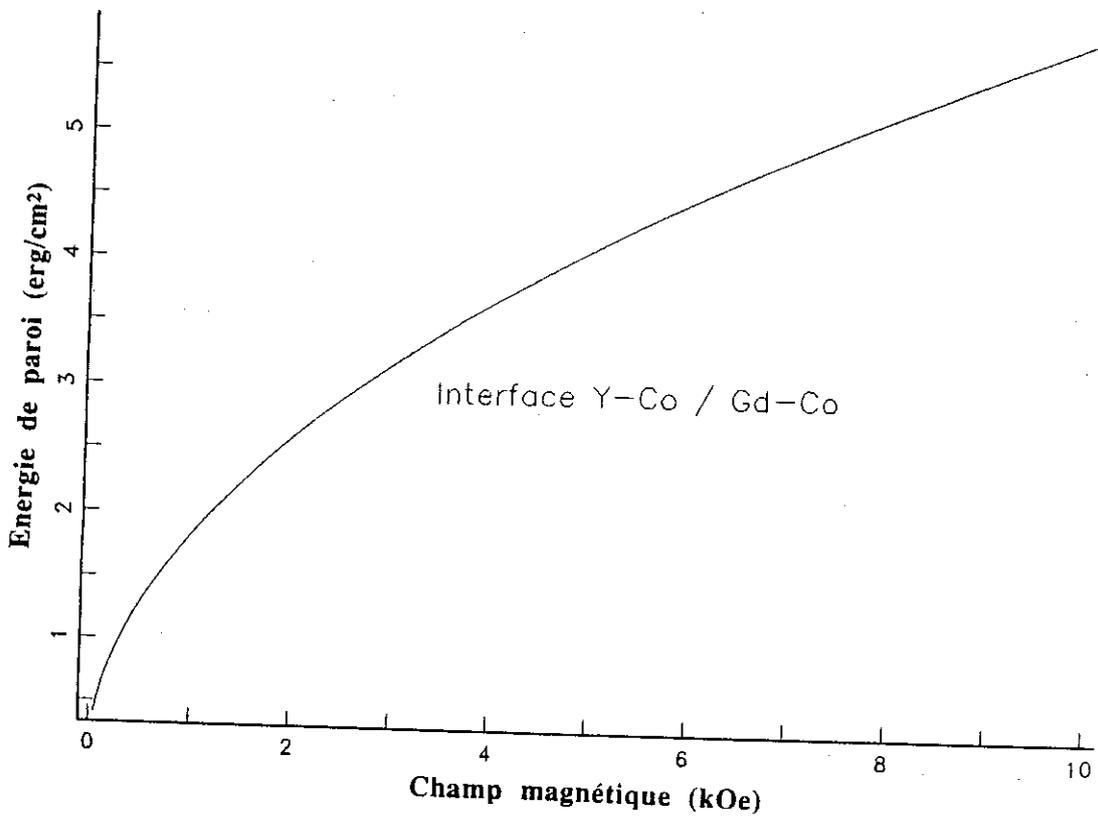


Figure IV.13 : Variation de l'énergie de paroi en fonction du champ appliqué pour une interface Y-Co/Gd-Co.

### IV-3 PROPRIETES MAGNETIQUES DU SYSTEME SANDWICH Gd-Co/Y-Co/Gd-Co.

#### *Mesure d'aimantation*

Comme le système Y-Co/Gd-Co/Y-Co, le système sandwich Gd-Co/Y-Co/Gd-Co est un ferrimagnétique macroscopique, mais l'aimantation des couches Gd-Co est dans ce cas dominante. Les courbes d'aimantation, mesurées selon la direction de facile aimantation entre 4,2 K et 300 K, sont présentées sur la figure IV.14. Elles présentent qualitativement les mêmes propriétés caractéristiques que celles décrites dans la section précédente. Mais le champ coercitif associé au petit cycle d'hystérésis central est très faible, inférieur à 5 Oe dès 4,2 K. Dans le système Y-Co/Gd-Co/Y-Co, le champ coercitif à la même température est de 30 Oe. Cette différence entre les valeurs des champs coercitifs peut être attribuée, au moins en partie, à la différence entre les aimantations spontanées. L'aimantation spontanée du système Gd-Co/Y-Co/Gd-Co décroît de  $13,5 \cdot 10^{-3}$  uem/cm<sup>2</sup> à  $4,1 \cdot 10^{-3}$  uem/cm<sup>2</sup> entre 4,2 K et 300 K (figure IV.15) ; ce phénomène doit être associé à la décroissance rapide de l'aimantation des couches Gd-Co qui représente le terme prépondérant dans la variation observée. La transition observée dans un champ d'environ 100 Oe est associée dans ce cas au retournement de l'aimantation de la couche centrale Y-Co. La variation thermique du champ de transition est représentée sur la figure IV.16 ; contrairement au système Y-Co/Gd-Co/Y-Co, le champ de transition diminue de 155 Oe à 115 Oe lorsque la température augmente de 4,2 K à 300 K. Au-delà du champ de transition, l'approche à la saturation obéit à une loi en  $1/\sqrt{H}$  (figure IV.17). Tel que le prévoyait la relation (IV.26), on note que les pentes des droites obtenues aux différentes températures sont proches de celles mesurées sur le système Y-Co/Gd-Co/Y-Co. Les valeurs de l'aimantation à la saturation déduites de la loi en  $1/\sqrt{H}$  sont représentées sur la figure IV.18.

Afin d'évaluer l'influence de l'anisotropie planaire sur les processus d'aimantation, nous avons également effectué des mesures en appliquant le champ magnétique perpendiculairement à la direction de facile aimantation. Une courbe typique obtenue à 4,2 K est présentée sur la figure IV.14 (schéma a). L'aimantation varie progressivement en champ faible, aucune transition n'apparaît. Au-delà de 400 Oe, la variation d'aimantation est identique à celle mesurée selon l'axe de facile aimantation ; l'énergie d'anisotropie peut alors être négligée par rapport à l'énergie Zeeman.

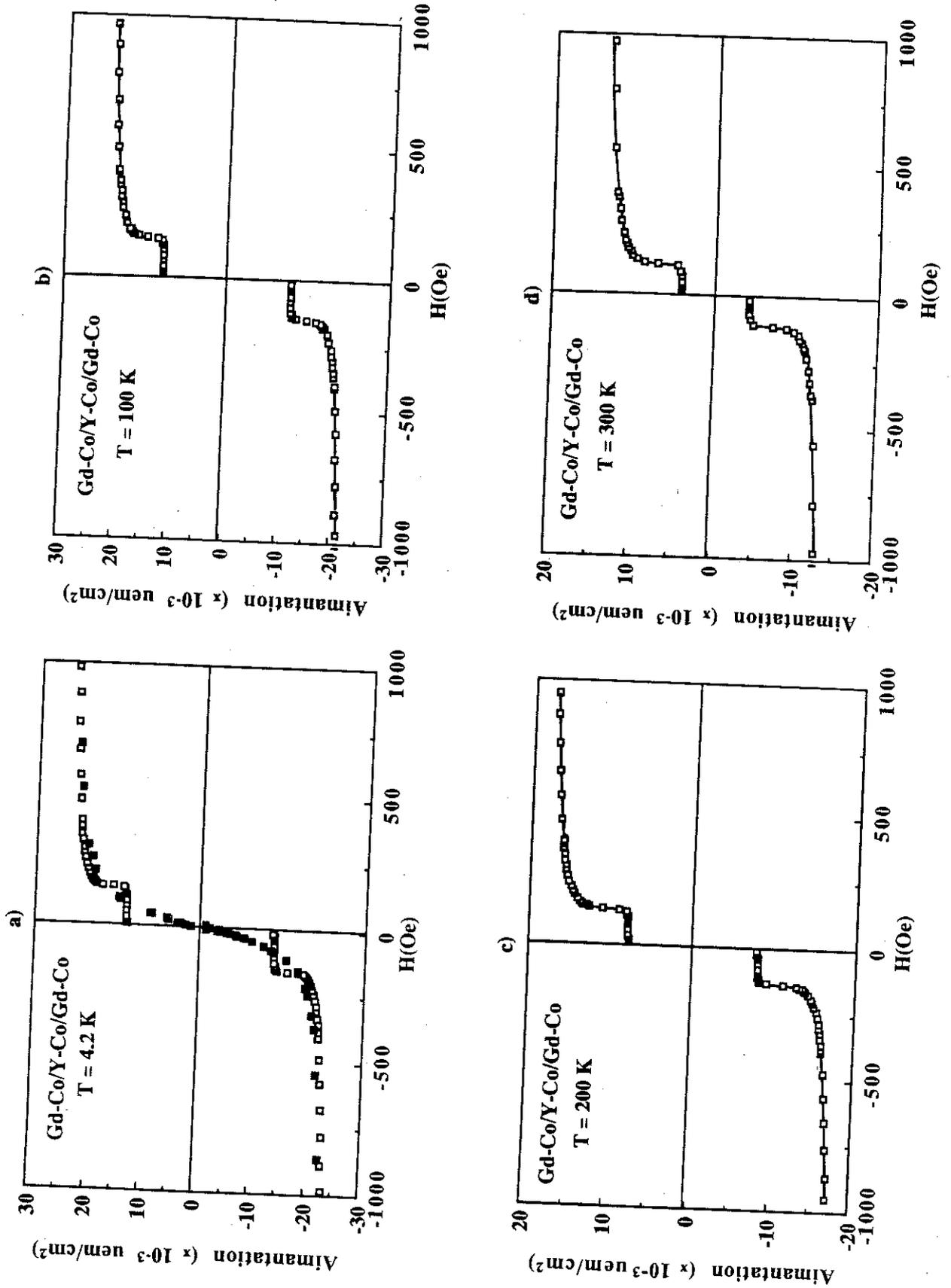


Figure IV.14 : Variations isothermes de l'aimantation du système sandwich Gd-Co/Y-Co/Gd-Co en fonction du champ magnétique appliqué. La courbe  $m(H)$  mesurée à 4.2 K selon la direction de difficile aimantation est représentée par des carrés pleins sur le schéma a.

**Analyse**

L'analyse de ces mesures d'aimantation peut se faire en utilisant la même approche que dans le cas du système Y-Co/Gd-Co/Y-Co. Les variations thermiques de l'aimantation spontanée et de l'aimantation à saturation ont été analysées en utilisant des relations similaires aux relations (IV.1) et (IV.3) modifiées pour tenir compte de la présence de deux couches Gd-Co et d'une seule couche Y-Co. De la variation expérimentale de  $m_s(T)$ , on déduit :

$$\alpha \cos\varphi_{Y-Co} = 0,84 \quad \text{et} \quad \beta \cos\varphi_{Gd-Co} = 1,33$$

et de la variation de  $m_{sat}(T)$  :  $\alpha = 1,3$  ,  $\beta = 1,13$  ,  $\varphi_{Y-Co} = 50^\circ$  ,  $\varphi_{Gd-Co} \sim 0$ . Ces valeurs indiquent que l'aimantation des couches Gd-Co est pratiquement dans le plan de l'échantillon. Un tel résultat n'est pas surprenant puisque cette propriété est observée dans les couches de l'alliage Gd-Co qui constitue l'élément prépondérant du système sandwich considéré. Les variations de  $m_s(T)$  et  $m_{sat}(T)$  calculées à partir des paramètres ci-dessus sont comparées aux variations expérimentales sur les figures IV.15 et IV.18.

L'énergie de paroi et la valeur du coefficient d'échange A ont été déduits de la valeur du champ de transition et du saut d'aimantation à la transition  $\Delta m_t$  [relation (IV.19)]. La valeur de A a été également déduite de la loi d'approche à la saturation [relation (IV.26)]. Les valeurs de ces deux paramètres sont reportées dans le tableau IV.3.

Tableau IV.3 : Principaux paramètres expérimentaux déduits des mesures d'aimantation sur le système sandwich Gd-Co/Y-Co/Gd-Co.

T(K)	Champ de transition (Oe)	Saut d'aimantation $\Delta m_t \times 10^{-3}$ uem/cm <sup>2</sup>	Energie de paroi $\gamma$ (erg/cm <sup>2</sup> )	Constante d'échange	
				A (erg/cm) déduit de $\gamma$	A (erg/cm) déduit de la loi en $1/\sqrt{H}$
4,2	155	5,0	0,39	$6,6 \times 10^{-7}$	$8,4 \times 10^{-7}$
100	145	4,5	0,33	$5,5 \times 10^{-7}$	$6,6 \times 10^{-7}$
200	130	4,8	0,32	$6,7 \times 10^{-7}$	$6,3 \times 10^{-7}$
300	115	4,8	0,28	$7,2 \times 10^{-7}$	$6,2 \times 10^{-7}$

L'approche numérique a été utilisée afin d'évaluer les processus d'aimantation en champ faible, car il est alors nécessaire de tenir compte de l'anisotropie. Les variations d'aimantation ont été calculées pour un champ magnétique appliqué respectivement parallèlement et perpendiculairement à la direction de facile aimantation. A partir de la

valeur de A déduite de l'approche à la saturation, un bon accord avec les valeurs expérimentales a été obtenu pour une valeur d'anisotropie qui à 4.2 K vaut  $D = 1,8 \cdot 10^4 \text{ erg/cm}^3$ . Les variations calculées de l'aimantation sont comparées aux variations expérimentales sur la figure IV.19.

Il apparaît que dans ce système, au-delà du champ de transition, l'approche numérique et l'approche analytique donnent des résultats comparables. En effet, la valeur du champ de transition étant plus élevée, les effets de taille finie et l'anisotropie jouent un rôle moindre. C'est pourquoi les valeurs de A déduites de la valeur de  $\gamma$  et de la loi d'approche à la saturation en  $1/\sqrt{H}$  (tableau IV.3) sont plus proches l'une de l'autre que dans le système Y-Co/Gd-Co/Y-Co (tableau IV.2).

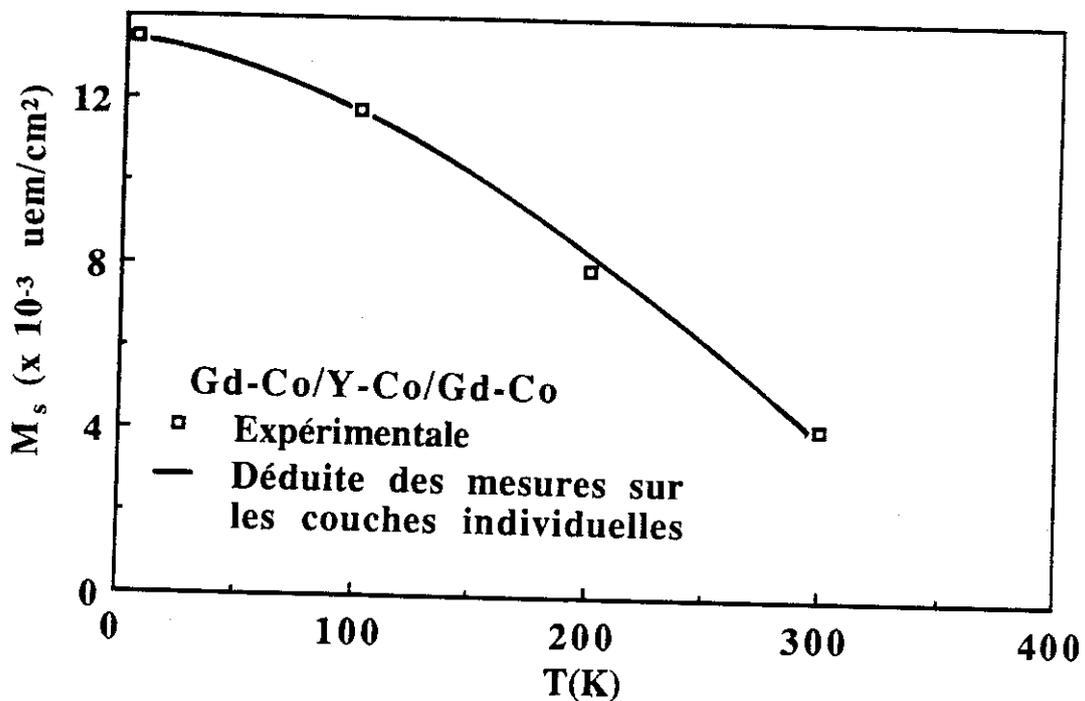


Figure IV.15 : Variation thermique de l'aimantation spontanée du système sandwich Gd-Co/Y-Co/Gd-Co.

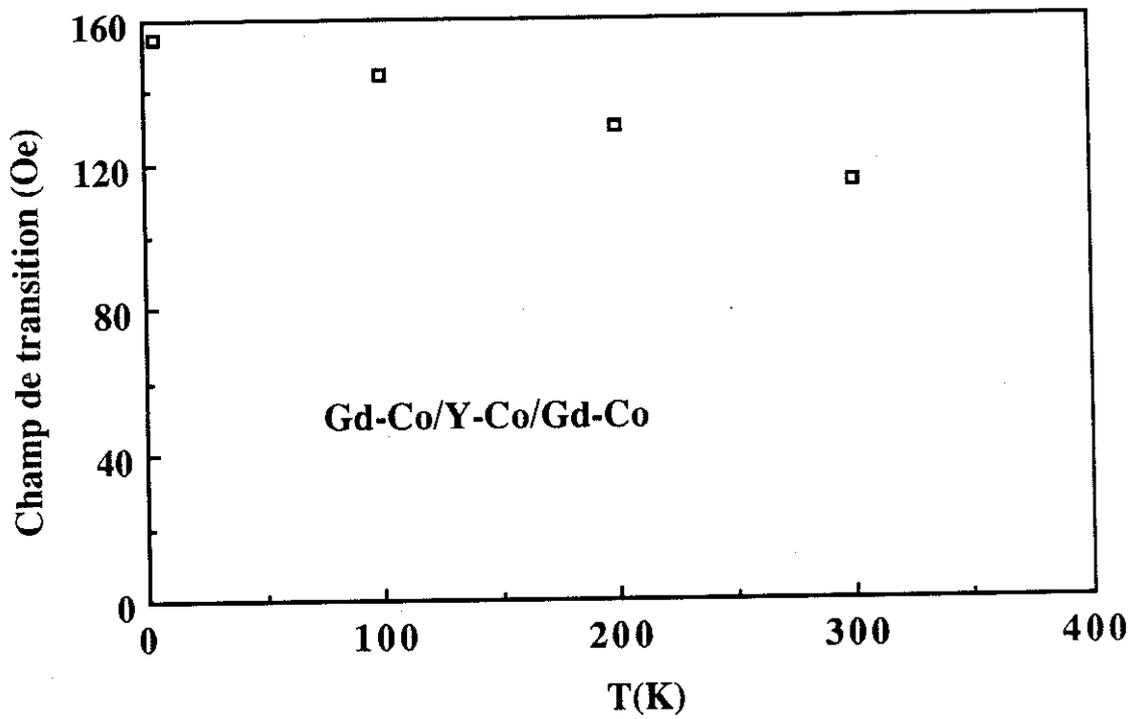


Figure IV.16 : Variation thermique du champ de transition dans le système sandwich Gd-Co/Y-Co/Gd-Co.

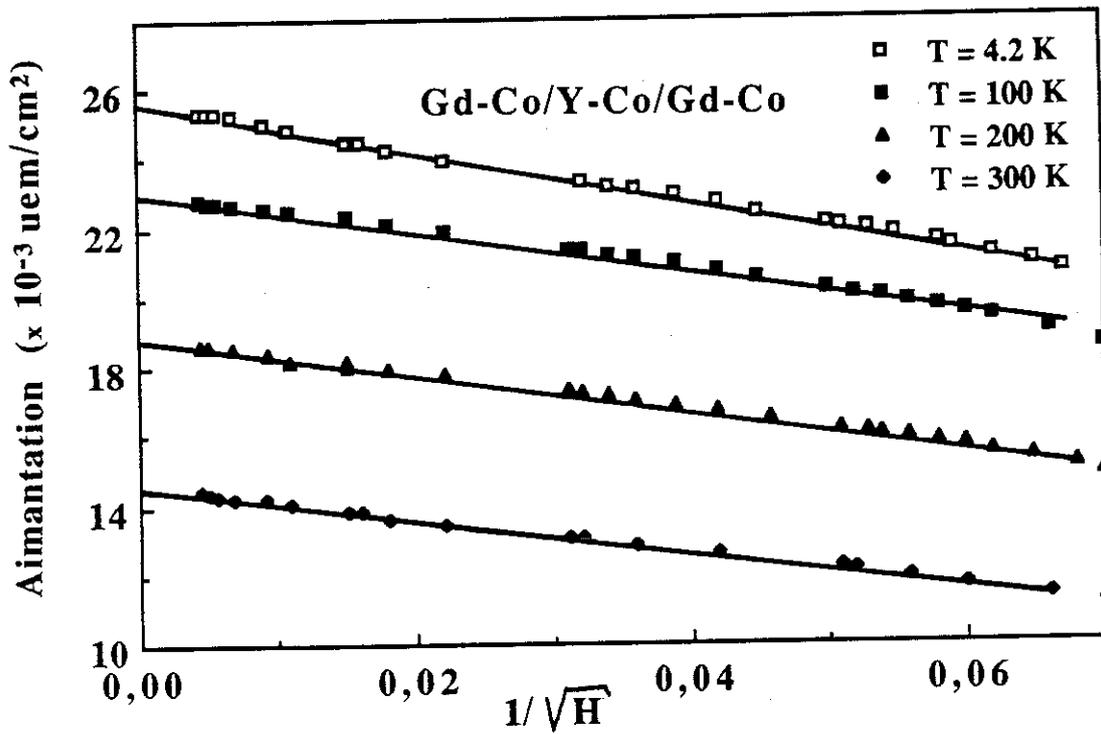


Figure IV.17 : Variation isotherme de l'aimantation du système sandwich Gd-Co/Y-Co/Gd-Co en fonction de  $1/\sqrt{H}$ .

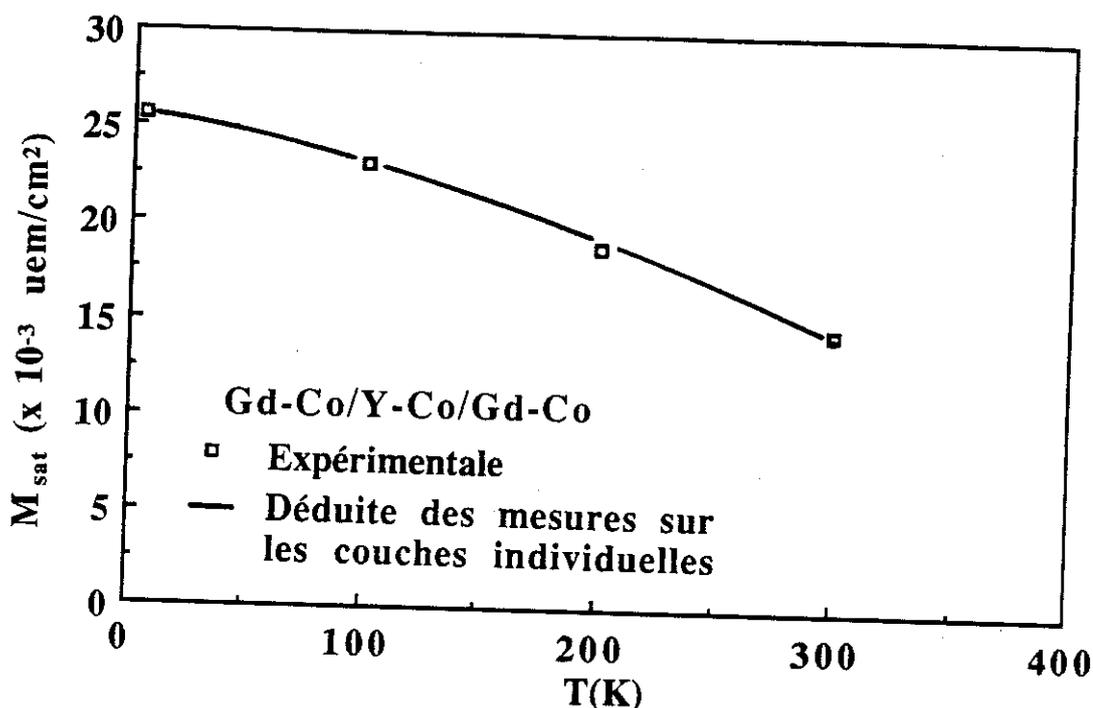


Figure IV.18 : Variation thermique de l'aimantation à saturation obtenue par extrapolation en champ infini pour le système sandwich Gd-Co/Y-Co/Gd-Co.

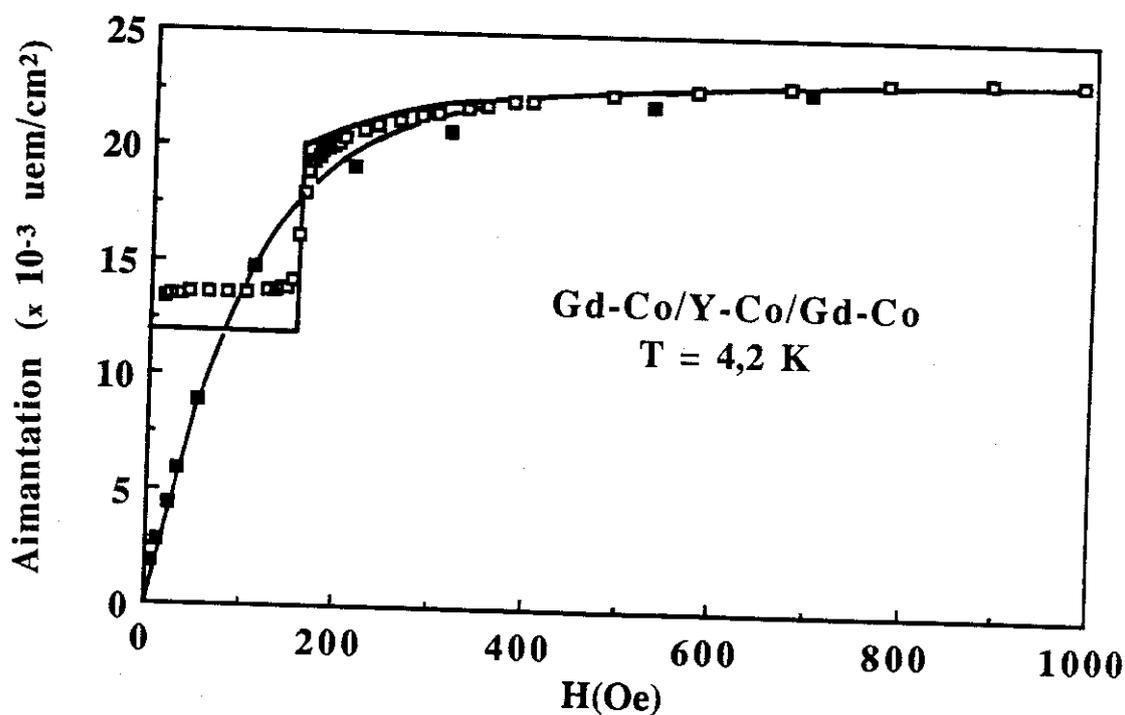


Figure IV.19 : Courbes  $m(H)$  mesurées à 4.2 K sur le système sandwich Gd-Co/Y-Co/Gd-Co. Les courbes mesurées selon la direction de facile (respectivement difficile) aimantation sont représentées par des carrés vides (respectivement pleins) ; la ligne continue représente la courbe obtenue à partir du modèle discret.

**C H A P I T R E    V**

***PROPRIETES MAGNETIQUES DE SYSTEMES  
SANDWICHES R-Co/R'-Co/R-Co  
EN PRESENCE D'ANISOTROPIE  
MAGNETOCRISTALLINE***



Dans ce chapitre, nous décrivons les propriétés magnétiques de systèmes sandwichs dans lesquels l'un des éléments R ou R' est un ion terre rare présentant un moment orbital. Les interactions entre couches d'anisotropie et coercivité différentes conduisent à des propriétés originales, mais celles-ci n'ont pu être décrites de façon quantitative. En effet des processus d'aimantation complexes résultent de la distribution aléatoire des directions de facile aimantation et, en tout état de cause, les processus coercitifs ne sont pas faciles à modéliser.

## V-1 PROPRIETES MAGNETIQUES DE SYSTEMES SANDWICHES ENTRE Y-Co et Nd-Co

### V-1-1 Système sandwich Y-Co/Nd-Co/Y-Co

Le système sandwich Y-Co/Nd-Co/Y-Co est constitué de deux types de matériaux ferromagnétiques (schéma c de la figure IV.1). Dans l'un, Y-Co, l'anisotropie magnétocristalline qui résulte des seuls atomes de Co est relativement faible. Dans l'autre, Nd-Co, une anisotropie importante est associée aux moments orbitaux des ions  $Nd^{3+}$  et donne lieu à une coercitivité qui atteint 300 Oe à 4,2 K (voir chapitre II). Les mesures d'aimantation effectuées à 4,2 K sur les systèmes sandwichs, sont présentées sur la figure V.1. Le cycle d'hystérésis est caractérisé par deux transitions magnétiques irréversibles. La première se produit sous un champ appliqué  $H_{t,1} = 45$  Oe, la seconde sous un champ  $H_{t,2} = 83$  Oe. En champ plus intense, l'aimantation est pratiquement saturée. Lorsque l'on fait décroître le champ magnétique à partir de la saturation, on observe une faible variation d'aimantation jusqu'en champ nul (l'aimantation rémanente vaut alors  $24 \cdot 10^{-3}$  uem/cm<sup>2</sup>). Ce phénomène indique que dans les couches Y-Co comme dans celles de Nd-Co, les moments magnétiques des atomes de cobalt sont confinés dans le plan des couches. Ainsi, les interactions d'échange entre couches détruisent dans ce cas la structure de domaines en bandes caractéristiques des alliages Y-Co.

Les mesures d'aimantation à plus haute température montrent une décroissance rapide du champ coercitif. A titre d'exemple, la courbe M(H) obtenue à

150K est présentée sur la figure V.2. Le retournement de l'aimantation du système sandwich s'effectue de façon globale comme dans les systèmes homogènes. La variation thermique de l'aimantation spontanée est présentée sur l'encart de la figure V.2. Les épaisseurs des couches constitutives déduites sont : 1550 Å pour Y-Co et 1450 Å pour Nd-Co.

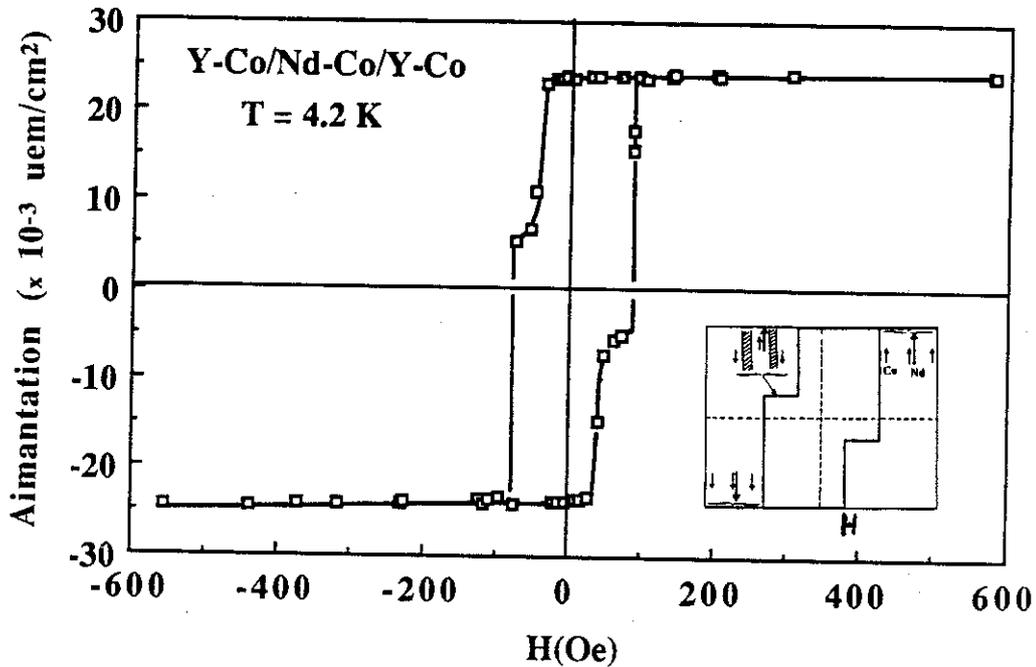


Figure V.1 : Variation de l'aimantation du système sandwich Y-Co/Nd-Co/Y-Co en fonction du champ magnétique appliqué à 4.2 K. L'encart représente les différentes configurations des moments magnétiques.

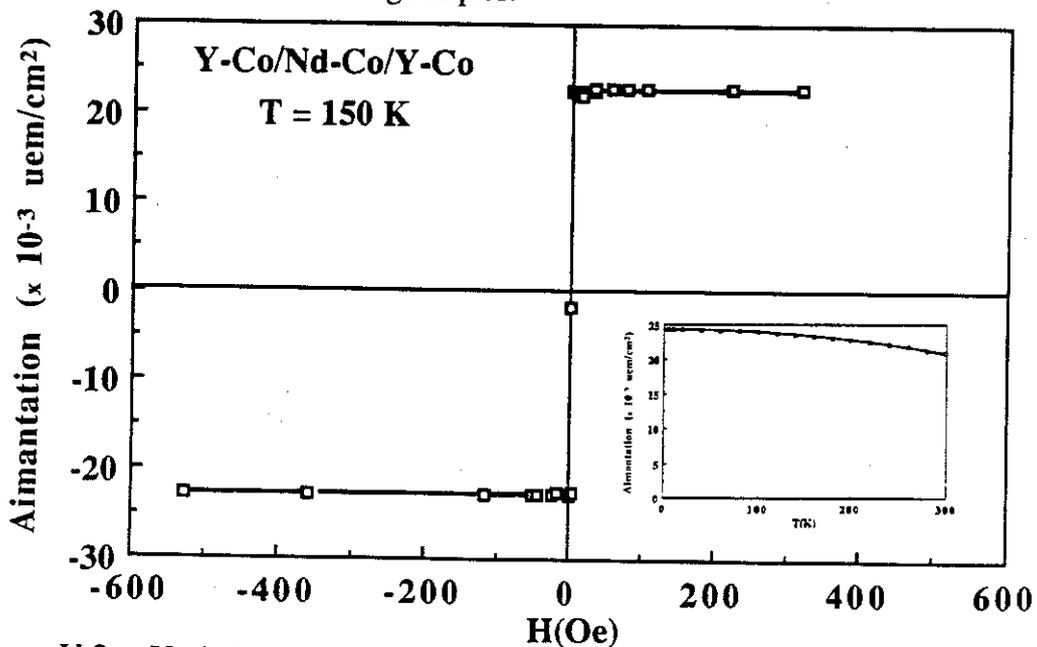


Figure V.2 : Variation de l'aimantation du système sandwich Y-Co/Nd-Co/Y-Co en fonction du champ magnétique appliqué à 150 K. L'encart représente la variation thermique de l'aimantation spontanée.

Les particularités du cycle d'hystérésis obtenu à 4,2 K s'interprètent en tenant compte des propriétés magnétiques des couches constituantes. La première transition qui se produit sous 45 Oe peut être attribuée au renversement de l'aimantation des couches Y-Co. Ce champ de transition est bien supérieur au champ coercitif des couches Y-Co prises individuellement. En effet, les interactions d'échange avec la couche Nd-Co tendent à s'opposer au renversement de l'aimantation, une paroi doit donc se former aux interfaces entre couches lors du retournement de l'aimantation. Son énergie peut être obtenue à partir de la relation (IV.2), elle vaut  $\gamma_{t,1} = 0,45 \text{ erg/cm}^2$ . Cette valeur peut être comparée à  $\gamma = 0,29 \text{ erg/cm}^2$  déduite du champ de transition  $H_t = 53 \text{ Oe}$  dans le système sandwich Y-Co/Gd-Co/Y-Co. Dans ces deux systèmes, la paroi s'étend principalement dans la couche Y-Co. En effet, dans le système Y-Co/Gd-Co/Y-Co, l'aimantation de la couche Y-Co est inférieure à celle de la couche Gd-Co ; et dans le système Y-Co/Nd-Co/Y-Co, l'anisotropie de la couche Nd-Co est bien supérieure à celle de la couche Y-Co. Les énergies de paroi devraient donc approximativement obéir à la relation  $\gamma \propto \sqrt{H}$  et l'énergie de la paroi au champ de transition dans le système Y-Co/Nd-Co/Y-Co vaudrait  $0,27 \text{ erg/cm}^2$ . Nous attribuons la valeur supérieure obtenue à l'imperfection des interfaces entre couches. Il en résulte qu'une certaine contribution associée à l'anisotropie du néodyme doit être prise en compte dans l'énergie de paroi.

La seconde transition, observée sous  $H_{t,2} = 83 \text{ Oe}$ , correspond au retournement de l'aimantation dans la couche centrale Nd-Co qui se produit dans un champ inférieur au champ coercitif d'une couche Nd-Co prise individuellement ( $H_c = 300 \text{ Oe}$ ). Ce phénomène était prévisible puisque le retournement de l'aimantation de la couche Nd-Co dans le système sandwich permet l'annihilation des parois formées lors du retournement des couches externes Y-Co. Si l'on considère que le retournement de l'aimantation d'une couche Nd-Co correspond au franchissement d'une barrière de potentiel indépendante du champ appliqué, on a :

$$\Delta m_{\text{Nd-Co}} H_c = \Delta m_{\text{Nd-Co}} H_{t,2} + 2\gamma_{t,2} \quad (\text{V.1})$$

Dans cette relation le premier terme exprime la variation d'énergie lors du retournement d'aimantation pour une couche individuelle Nd-Co, le second exprime cette variation dans un système sandwich. Tenant compte de la différence d'épaisseurs entre la couche Nd-Co individuelle et dans le système sandwich, on obtient :

$$m_{\text{Nd-Co}} \left[ H_c - \alpha H_{t,2} \right] = 2 \gamma_{t,1} \times \sqrt{\frac{H_{t,2}}{H_{t,1}}} \quad (\text{V.2})$$

La valeur de  $H_{t,2}$  ainsi calculée est de 160 Oe, elle est deux fois supérieure à la valeur expérimentale. Ce désaccord suggère que les mécanismes de retournement d'aimantation mis en jeu ne sont pas les mêmes. En effet, dans une couche individuelle saturée le retournement d'aimantation est déterminé par la formation initiale d'un petit noyau d'aimantation inverse ; dans le système sandwich où une paroi existe déjà, il est associé au dépiégeage de la paroi située à l'interface entre deux milieux dont les propriétés magnétiques diffèrent.

La variation thermique importante des phénomènes décrits ci-dessus est une propriété générale des phénomènes coercitifs. Le retournement global de l'aimantation observé au-dessus de 100 K s'interprète simplement en considérant, du fait de la forte diminution de la coercitivité de la couche Nd-Co, que la formation d'une paroi à l'interface entre les deux milieux coûterait trop d'énergie.

### V-1-2 Système sandwich Nd-Co/Y-Co/Nd-Co

Le système sandwich Nd-Co/Y-Co/Nd-Co est le symétrique de celui étudié dans la section V.1.1, la couche ferromagnétique de faible anisotropie Y-Co étant prise en sandwich entre deux couches Nd-Co. La variation thermique de l'aimantation spontanée est présentée dans l'encart de la figure V.3, les épaisseurs des couches constitutives déduites sont : 1500 Å pour Y-Co et 1400 Å pour Nd-Co. Le cycle d'hystérésis mesuré à 4,2 K est présenté sur la figure V.3. Il est caractérisé par deux transitions irréversibles de même origine que celles observées dans le système Y-Co/Nd-Co/Y-Co. Le champ  $H_{t,1}$  sous lequel se produit la première transition est de 100 Oe environ. La valeur de  $\gamma_{t,1}$  obtenue, déduite du champ de transition, à partir de la loi de variation en  $\sqrt{H}$  (relation (IV.2)) est de 0,64 erg/cm<sup>2</sup>. On remarque que le champ de transition est plus étalé que dans le système précédent. Ceci peut être attribué à la présence d'une interface à chaque extrémité de la couche Y-Co. Les configurations non uniformes de l'aimantation qui se forment lors du retournement de l'aimantation ne peuvent s'adapter aux inhomogénéités magnétiques de façon aussi efficace qu'en présence d'une interface unique.

Le champ de transition  $H_{t,2}$  est de 160 Oe alors que la valeur calculée à partir de la relation (V.2), modifiée pour tenir compte de la présence d'une seule paroi par couche Nd-Co, est de 200 Oe. Ainsi, comme dans le système sandwich Y-Co/Nd-Co/Y-Co, le retournement de l'aimantation doit se produire par un mécanisme de dépiégeage de paroi. Supposons alors celui-ci identique dans les deux systèmes, dans ce cas on aurait :

$$(\Delta m_{\text{Nd-Co}} H_{t,2} + 2\gamma_{t,2}) = (\Delta m'_{\text{Nd-Co}} H_{t,2} + \gamma_{t,2}) \quad (\text{V.3})$$

où le premier terme correspond au système Y-Co/Nd-Co/Y-Co et le second, au système Nd-Co/Y-Co/Nd-Co. La valeur prédite de  $H'_{1,2}$  est de 130 Oe, elle est légèrement inférieure à la valeur expérimentale 160 Oe. Ce décalage indique que l'énergie stockée dans une paroi à l'interface entre une couche Y-Co et une couche Nd-Co est plus faible dans le système NdCo/Y-Co/Nd-Co que dans le système Y-Co/Nd-Co/Y-Co. Ce phénomène, de même que la largeur de transition discutée précédemment, peut-être attribuée à la minimisation d'énergie plus facile pour une couche contenant une seule interface Y-Co/Nd-Co que pour une couche limitée par deux interfaces.

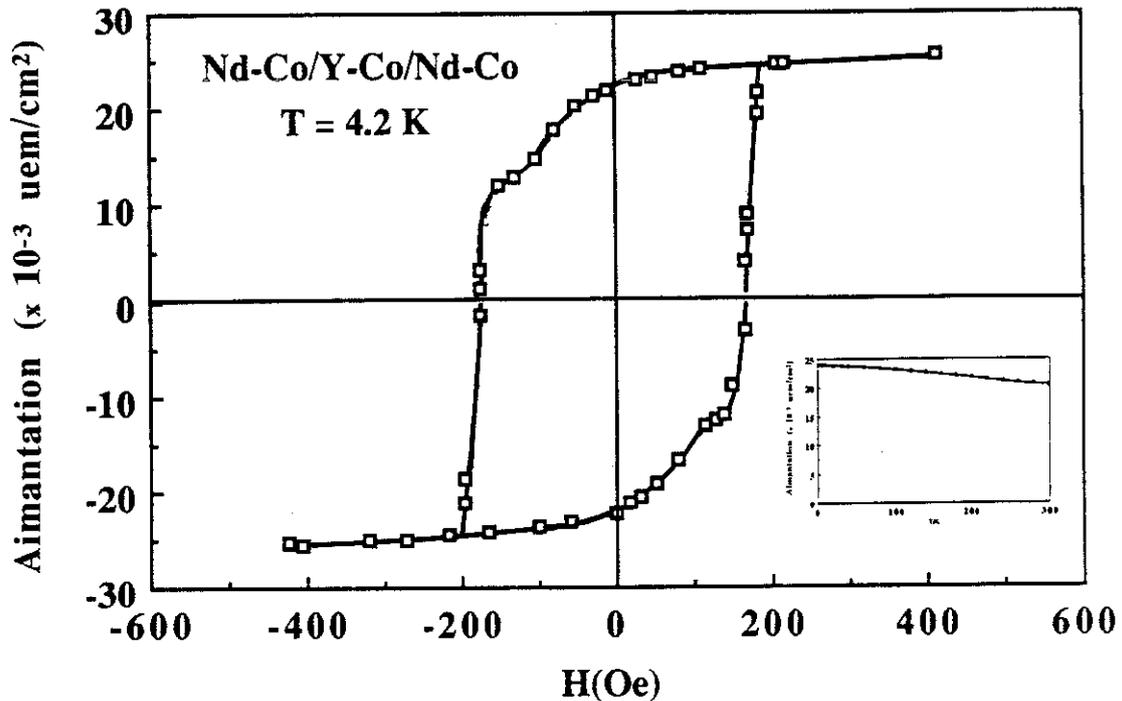


Figure V.3 : Variation de l'aimantation du système sandwich Nd-Co/Y-Co/Nd-Co en fonction du champ magnétique appliqué à 4.2 K.

### V-1-3 Systèmes sandwiches Y-Co/Nd-Co/Y-Co et Nd-Co/Y-Co/Nd-Co formés de couches de 100 Å d'épaisseur.

Les mesures d'aimantation à 4,2 K effectuées sur les systèmes sandwiches Y-Co/Nd-Co/Y-Co et Nd-Co/Y-Co/Nd-Co où les couches individuelles ont 100 Å d'épaisseur, sont présentées sur les figures V.4 et V.5. Les cycles d'hystérésis sont similaires à celui d'un matériau ferromagnétique homogène. Les deux transitions présentes dans les systèmes formés de couches de 1000 Å d'épaisseur ne sont pas observées. En effet, à ces valeurs du champ appliqué, l'épaisseur de la paroi qui devrait se former dans les couches Y-Co serait de 500 Å environ. En raison des épaisseurs très faibles des couches constitutives l'épaisseur disponible n'est que de 50 Å et l'énergie de paroi correspondante est 10 fois supérieure à l'énergie optimale. Le champ nécessaire au

retournement d'aimantation de la couche Y-Co est donc dix fois supérieure environ au champ  $H_{c1}$  mesuré sur les couches de 1000 Å d'épaisseur, soit 500 Oe, il est supérieur au champ coercitif du système global.

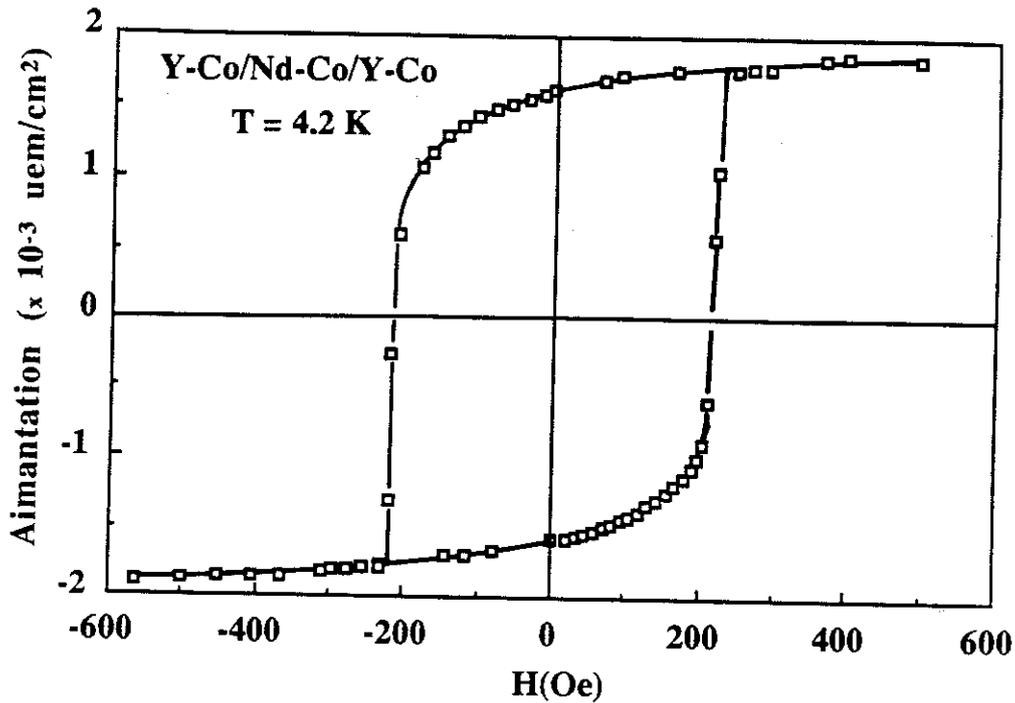


Figure V.4 : Variation de l'aimantation en fonction du champ magnétique appliqué à 4.2 K pour un système sandwich Y-Co/Nd-Co/Y-Co constitué de couches d'environ 100 Å d'épaisseur.

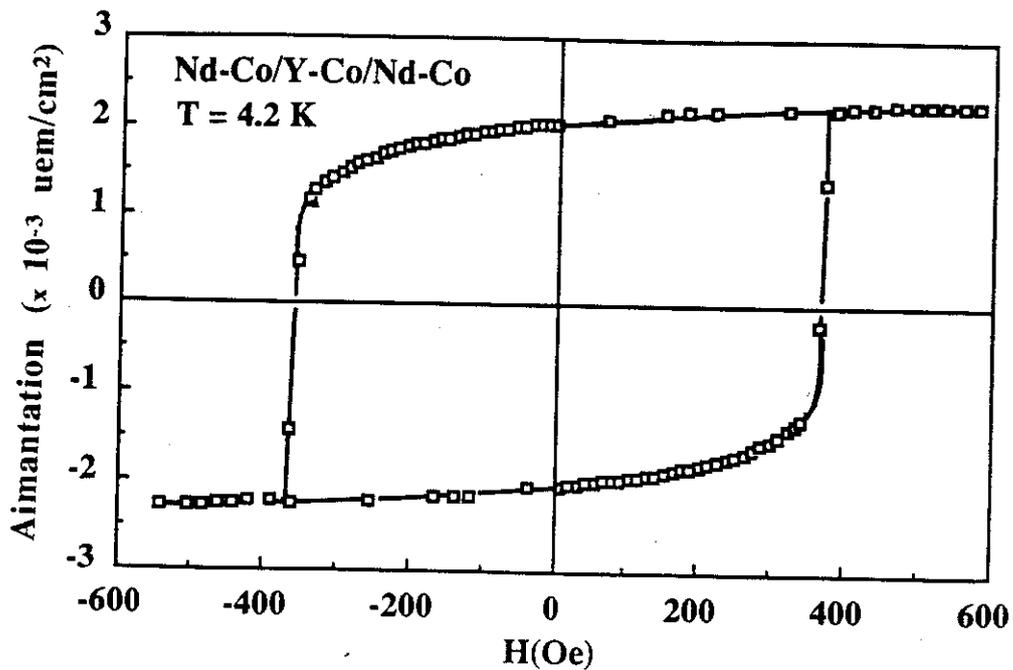


Figure V.5 : Variation de l'aimantation en fonction du champ magnétique appliqué à 4.2 K pour un système sandwich Nd-Co/Y-Co/Nd-Co constitué de couches d'environ 100 Å d'épaisseur.

On sait que dans un matériau homogène, le retournement d'aimantation devrait se produire selon un processus de rotation cohérente ; le champ coercitif étant égal au champ d'anisotropie [ V.1 ] :

$$H_c = H_A = 2K/M_s \quad (V.3)$$

où K est l'énergie d'anisotropie et  $M_s$  l'aimantation spontanée. Dans les systèmes physiques habituelles, le retournement d'aimantation met en jeu la nucléation - propagation de parois, mais on observe en général que le champ coercitif est encore proportionnel au champ d'anisotropie [V.2]. Pour un système sandwich, on attend donc que  $H_c$  soit proportionnel à l'anisotropie.

$$H_c = \frac{2 K e_{Nd-Co}}{e_{Nd-Co} M_{Nd-Co} + e_{Y-Co} M_{Y-Co}} \quad (V.4)$$

où  $e_{Nd-Co}$  et  $e_{Y-Co}$  représentent respectivement les épaisseurs des couches Nd-Co et Y-Co du système sandwich considéré. Le rapport calculé des champs coercitifs dans les deux systèmes étudiés est de 1,8 alors que le rapport expérimental est de 1,7.

## V-2 PROPRIETES MAGNETIQUES DE SYSTEMES SANDWICHES ENTRE COUCHES Y-Co ET Er-Co

### V-2-1 Système sandwich Y-Co/Er-Co/Y-Co

Le système sandwich Y-Co/Er-Co/Y-Co est un système ferrimagnétique macroscopique dans lequel une couche ferrimagnétique dure (Er-Co) est prise en sandwich entre deux couches ferromagnétiques douces de même nature (Y-Co). Le cycle d'hystérésis mesuré à 4.2 K pour ce système est représenté sur la figure V.6. En champ intense, l'aimantation de chacune des couches constitutives est dirigée selon le champ et des parois sont donc présentes aux deux interfaces. Nous avons comparé le cycle d'hystérésis expérimental à celui déduit des mesures sur les couches individuelles et qu'on devrait observer en l'absence de couplage entre couches. La variation d'aimantation lorsque le champ appliqué décroît est plus importante que celle déduite des mesures sur les couches individuelles. En effet, à la rotation des moments dans la couche Er-Co s'ajoute l'élargissement des parois situées aux interfaces. Une décroissance rapide se produit dans un champ faible positif (entre 30 Oe et 0); elle est due au retournement de l'aimantation dans les couches Y-Co bien que celles-ci représentent la contribution dominante à l'aimantation du système sandwich. Ce retournement est favorisé par l'annihilation des parois existant aux interfaces. Ce comportement diffère de celui observé

dans le système Y-Co/Gd-Co/Y-Co. Il est dû au fait que, la coercitivité de la couche Er-Co empêchant son retournement en champ faible, c'est le retournement de l'aimantation des couches Y-Co qui permet d'annuler l'énergie stockée dans les parois aux deux interfaces. Le retournement de l'aimantation de la couche Er-Co se produit ensuite de façon progressive selon un processus similaire à celui observé sur les couches Er-Co individuelles, mais le champ moyen de retournement, qui vaut 1,1 kOe, est supérieur de 350 Oe à celui observé dans ces dernières car le retournement de l'aimantation de la couche Er-Co nécessite la création d'une paroi aux deux interfaces.

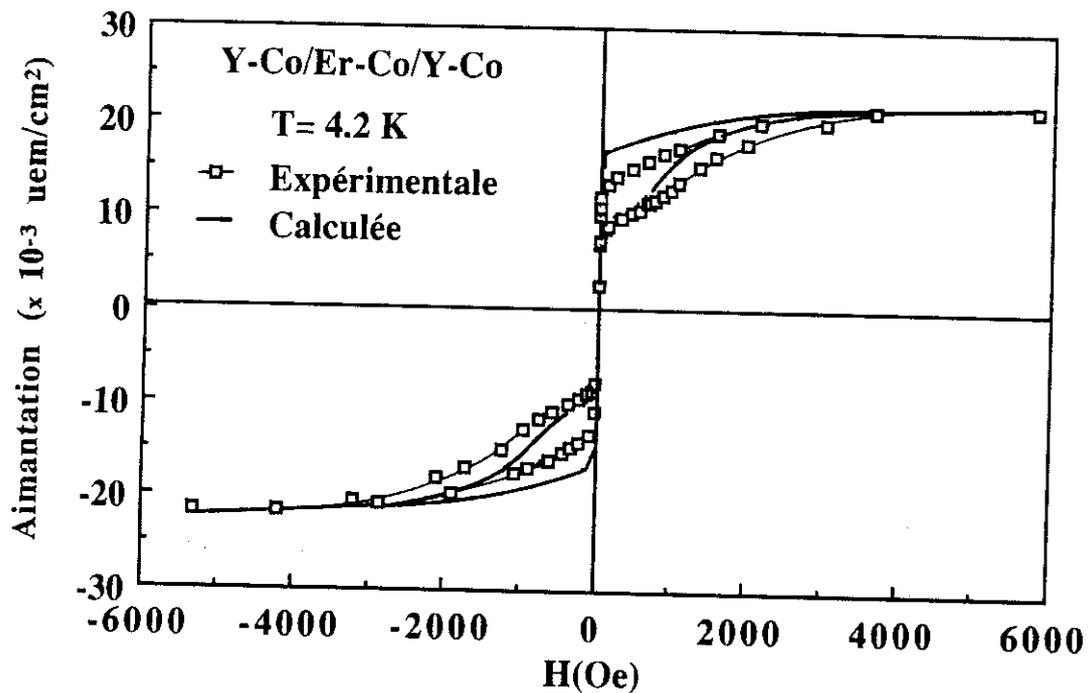


Figure V.6 : Variation de l'aimantation du système sandwich Y-Co/Er-Co/Y-Co en fonction du champ magnétique appliqué à 4.2 K .

La variation thermique de l'aimantation mesurée sous 70 kOe est représentée sur la figure V.7. Elle peut être considérée comme représentant l'aimantation à saturation et découle directement de celles des couches Y-Co et Er-Co représentées sur les figures II.17 et II.23. La décroissance rapide de l'aimantation jusque vers 200 K est due presque entièrement à celle de l'aimantation de l'alliage Er-Co. La décroissance devient faible entre 200 K et 300 K en raison de la proximité du point de compensation de l'alliage Er-Co.

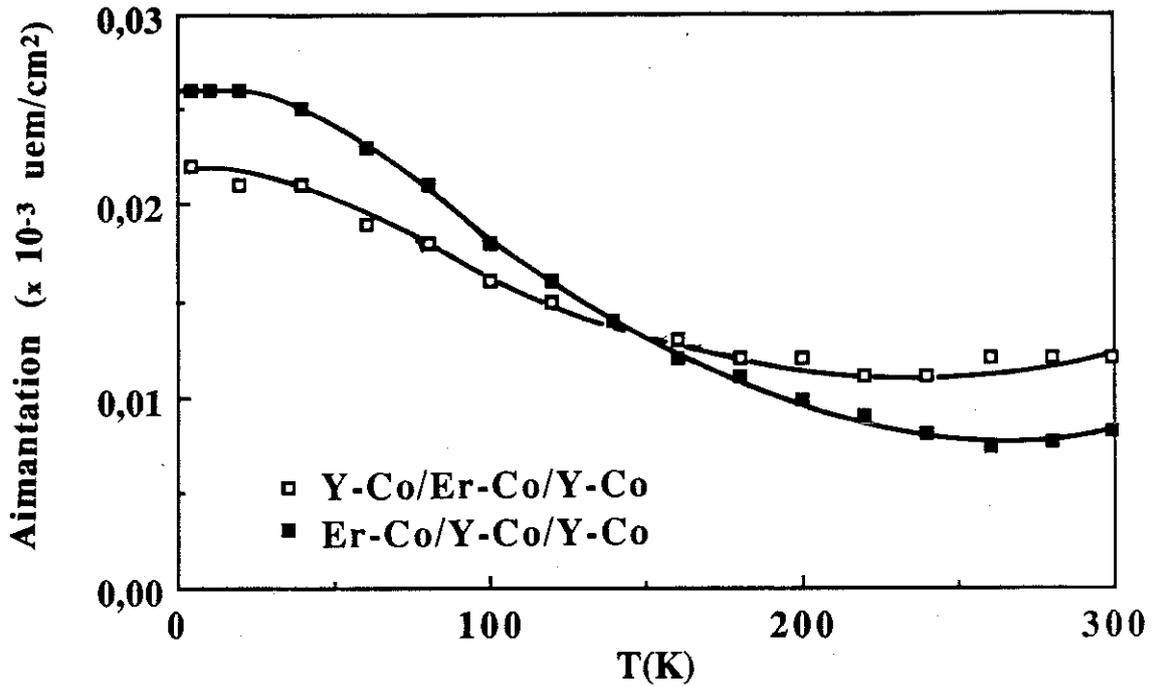


Figure V.7 : Variation thermique de l'aimantation à saturation des systèmes sandwiches Y-Co/Er-Co/Y-Co et Er-Co/Y-Co/Er-Co.

### V-2-2 Système sandwich Er-Co/Y-Co/Er-Co

Par rapport au système sandwich Y-Co/Er-Co/Y-Co, la contribution dominante à l'aimantation du système Er-Co/Y-Co/Er-Co résulte des couches Er-Co. Le cycle d'hystérésis mesuré à 4,2 K est présenté sur la figure V.8. Il peut être analysé qualitativement de façon similaire à celui obtenu pour le système Y-Co/Er-Co/Y-Co. On remarque sur l'encart de la figure V.8 que le retournement de l'aimantation de la couche Y-Co se produit dans un champ positif d'environ 20 Oe, supérieur au champ de retournement observé dans le système Y-Co/Er-Co/Y-Co. Cette propriété découle directement du fait que le retournement de l'aimantation de la couche Y-Co permet l'annihilation des deux parois situées aux interfaces au lieu d'une seule dans le système Y-Co/Er-Co/Y-Co. Par ailleurs, le champ de retournement de l'aimantation des couches Er-Co est de 1 kOe environ, légèrement inférieur à celui observé dans le système Y-Co/Er-Co/Y-Co (1,1 kOe). Cette différence entre champs coercitifs est de signe contraire à celle observée dans les systèmes Y-Co/Nd-Co/Y-Co et Nd-Co/Y-Co/Nd-Co. Mais l'origine de ces phénomènes est la même. En effet, l'énergie perdue dans une paroi est légèrement supérieure pour une couche Er-Co ou Nd-Co située entre deux couches Y-Co que pour une couche externe. Mais dans les systèmes avec l'erbium, le retournement de la couche Er-Co correspond à la formation d'une paroi alors que dans les systèmes avec Nd-Co, il correspond à son annihilation. Il en découle directement les différents signes

des décalages observés entre champs coercitifs. La variation thermique de l'aimantation à saturation obtenue comme pour le système précédent est présentée sur la figure V.7. Elle s'interprète aussi à partir de celle des couches Y-Co et Er-Co.

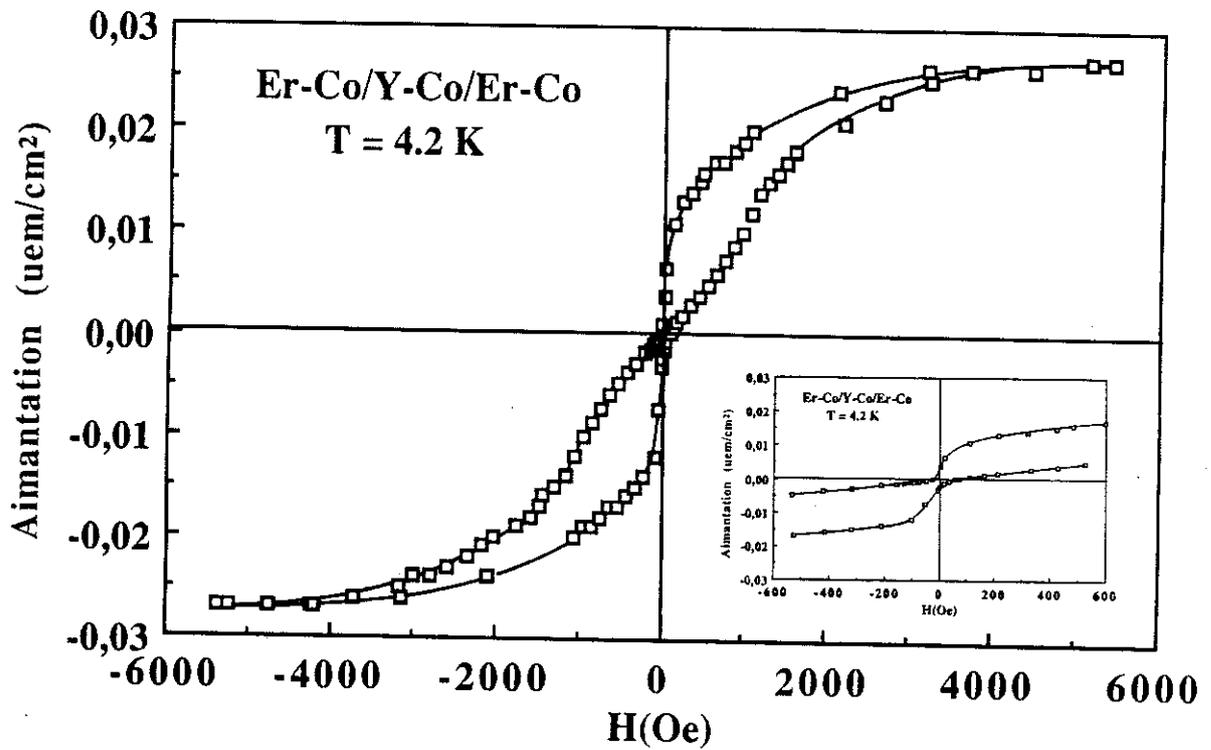


Figure V.8 : Variation de l'aimantation du système sandwich Er-Co/Y-Co/Er-Co en fonction du champ magnétique appliqué à 4.2 K . L'encart représente la variation de l'aimantation pour des valeurs de champ comprises entre - 600 Oe et + 600 Oe.

*C O N C L U S I O N*



Dans ce mémoire, nous avons décrit les propriétés magnétiques et magnéto-optiques d'alliages amorphes terre rare-métal de transition, sous la forme de couches minces et de multicouches. Les mesures magnétiques sur les couches Y-Co, La-Co et Y-Ni ont montré une décroissance du moment magnétique du métal de transition en accord avec les mesures antérieures d'autres auteurs. Considérant que les éléments de terre rare sont, du point de vue des électrons d, des éléments de transition de début de série, cette décroissance a été discutée selon un modèle simple dû à Friedel, où le nombre total d'électrons d est le seul paramètre important.

L'analyse des courbes d'aimantation dans les systèmes Y-Co a révélé une structure de domaines en bandes, impliquant l'existence d'une anisotropie perpendiculaire au plan des couches. Cette anisotropie est pratiquement indépendante de la température jusqu'à 300 K. Elle a été attribuée soit à la formation de paires atomiques, soit à une microstructure de type colonnaire. Dans les alliages La-Co, le terme d'anisotropie perpendiculaire est encore plus important. Il suggère la possibilité d'utiliser ce type de couches comme support pour l'enregistrement magnétique perpendiculaire.

Un dispositif de caractérisation magnéto-optique des couches a été développé. Il utilise l'effet Kerr transverse dont la mise en œuvre peut permettre d'obtenir de façon simple le tenseur de conductivité optique. Une méthode différentielle originale a permis d'obtenir une très grande sensibilité ; elle repose sur la séparation en deux faisceaux correspondant respectivement aux deux composantes de polarisation du faisceau lumineux incident sur l'échantillon. Nous avons montré sur les alliages Y-Co, La-Co et Y-Ni, que le signal magnéto-optique est en première approximation proportionnel au moment magnétique du métal de transition. La constante de proportionnalité est la même pour les deux alliages du cobalt, elle est réduite de moitié pour les alliages Y-Ni. Ces résultats indiquent que les mesures magnéto-optiques devraient permettre dans le futur une caractérisation magnétique simple de couches ultra-minces pour lesquelles les mesures d'aimantation même avec un magnétomètre à SQUID ne sont pas précises. Le développement actuel au Laboratoire Louis Néel d'un magnétomètre équipé d'un

anticryostat permettra très prochainement d'étudier les effets magnéto-optiques à des températures comprises entre 15 et 300 K.

Une partie importante de notre travail a été consacrée à l'étude des propriétés magnétiques de systèmes sandwiches Y-Co/R-Co/Y-Co et R-Co/Y-Co/R-Co. Les systèmes obtenus ont été analysés de façon quantitative pour  $R = \text{Gd}$ . Dans ce cas, la direction de l'aimantation en l'absence de champ magnétique appliqué alterne d'une couche à l'autre ; l'arrangement des moments magnétiques est de type ferrimagnétique à l'échelle macroscopique. Sous l'effet d'un champ appliqué, l'aimantation de la couche centrale, initialement antiparallèle au champ, se retourne. En raison du couplage entre couches, ce phénomène s'accompagne de la formation d'une paroi aux interfaces entre couches. Du fait que le processus de retournement de l'aimantation est collectif, le champ de transition calculé a la particularité d'être inversement proportionnel à l'épaisseur des couches. Au-delà du champ de transition, la variation d'aimantation observée est due au rétrécissement progressif de la paroi, elle obéit à une loi en  $1/\sqrt{H}$ . La constante d'échange  $A$  a été évaluée à partir de ces mesures. Cette méthode de détermination de la constante d'échange est originale puisque celle-ci est déduite d'ordinaire de la largeur de paroi observée et non pas de son énergie.

Pour  $R = \text{Nd}$ , les systèmes sandwiches sont constitués d'alliages ferromagnétiques dont les coercitivités diffèrent. En raison du couplage entre couches, le retournement de l'aimantation des couches Y-Co se produit dans un champ supérieur au champ coercitif d'une couche individuelle. Il est associé à la formation d'une paroi aux interfaces. Au contraire, celui des couches Nd-Co se produit sous un champ inférieur au champ coercitif d'une couche individuelle ; il est associé à l'annihilation des parois formées précédemment. L'épaisseur des parois est de l'ordre de 500 Å. Dans les systèmes sandwiches formés de couches individuelles de 100 Å d'épaisseur, leur formation coûterait trop d'énergie ; on observe dans ce cas un retournement collectif de l'aimantation. Une analyse plus détaillée des mécanismes en jeu pourrait montrer si ceux-ci correspondent à un processus de rotation cohérente.

Les propriétés de systèmes où  $R = \text{Er}$  ont été aussi étudiées. Le même type d'analyse que pour les systèmes précédents a permis de comprendre les processus d'aimantation, considérant que l'arrangement des moments est de type ferrimagnétique macroscopique et que les coercitivités des couches sont différentes.

Ces études sur les systèmes en multi-couches suggèrent que des propriétés intéressantes pour des applications pourraient exister dans ce type de systèmes. En particulier, la formation d'une paroi devrait être accompagnée d'une anomalie de résistivité électrique. Par ailleurs, le confinement d'une paroi dans un matériau

magnétique doux pris en sandwich entre deux matériaux durs pourrait permettre d'obtenir une très grande perméabilité magnétique associée à la propagation de la paroi sous un champ très faible.



## REFERENCES



- [I.1] R.B. Pond, U.S. Patent N°2, 825,105 (1958).
- [I.2] W. Klement, R.H. Willens et P. Duwez, Nature 187, 869, (1960).
- [I.3] H.J. Güntherodt et H. Beck ,Eds., Glassy Metals I. Springer-Verlag, Berlin, Chap.2, P.19, (1981).
- [I.4] R.B. Pond, R.E. Maringer et C.E. Mobley, B.H. Kear Ed., New Trends in Materials Fabrication, American Society of Metals (1974) ; R.B. Pond et T.M. Winter, Jr., A.I.Ch.E. Symp. Series n° 180, 74 (1978) ; H. Jones, Rapid Solidification of Metals and alloys Institut of Metallurgists, London, 1980 ; Rapidly Quenched Metals III, the Metals Society, London (1978).
- [I.5] R. Kumar et A.N. Sinha, Trans. Ind. Inst. Met., 21, 9 (1968).
- [I.6] R.Pond. Jr., et R. Maddin, Trans. Met. Soc. AIME, 245, 2475 (1969).
- [I.7] F. Moret, Thèse I.N.P.G. Grenoble (1987).
- [I.8] R. Glang, L.I. Maissel et R. Glang Eds., Handbook of Thin Film Technology, McGraw Hill, New York, Chap. 1., (1970).
- [I.9] G. Marchal, P. Mangin et C. Jannot, Solid Stat. Com. 18, 739 (1976).
- [I.10] D. Teirlink, Thèse Nancy (1981).

- [I.11] J.L. Vossen et W. Kern (Eds.), *Thin Film Processes*, Academic Press, New York, 1978 ; J.M. Seeman, *Vacuum*, 17, 129 (1966).
- [I.12] L'appareillage de pulvérisation cathodique du Laboratoire Louis Néel est décrit dans la thèse de A. Lienard, Université de Grenoble (1981).
- [II.1] S.J. Pickart, J.J. Rhyne, H.A. Alperin et H. Savage, *Phys. Rev. Lett.* 33, 424 (1974).
- [II.2] S.J. Pickart, J.J. Rhyne, H.A. Alperin and H. Savage, *Phys. Lett.* 64A, 337 (1977).
- [II.3] H.A. Alperin, J.R. Cullen et A.E. Clark, *A.I.P. Conf. Proc. Series* 29, 186 (1976).
- [II.4] D. Givord, A. Liénard, J.P. Rebouillat et J.F. Sadoc, *J. Phys., Coll. C* 5, Suppl. n°5, t40, C 5-237 (1979).
- [II.5] H. Cyrot et M. Lavagna, *J. Appl. Phys.* 50, 2333 (1979).
- [II.6] A.R. Williams, V.L. Moruzzi, A.P. Malozemoff et K. Terakura, *IEEE Trans. Magn. Mag.* 19, n°5, 1983 (1983).
- [II.7] J. Friedel, *Nuovo Cim. Suppl.* n°2, 287 (1958).
- [II.8] S. Chikazumi, *Physics of Magnetism*, ED. J. Wiley et Sons, Inc., New York, 73 (1964)
- [II.9] J.P. Gavigan, D. Givord, H.S. Li et J. Voiron, *Physica B* 149, 345-351 (1988).
- [II.10] A.P. Malozemoff, A.R. Williams, K. Terakura, V.L. Moruzzi et K. Fukamichi, *J. Magn. Magn. Mat.* 35, 192 (1983).
- [II.11] A.R. Williams, V.L. Moruzzi, D.C. Gellatt, J.R. et S. Kübler, *J. Magn. Magn. Mat.* 31-34, 88 (1983).

- [II.12] D. Givord et R. Lemaire, IEEE Trans. Magn. Magn.-10, 109 (1974).
- [II.13] J. Kübler, Phys. Lett. A 81 (1981).
  
- [II.14] J.M.D. Coey, J. Chappert, J.P. Rebouillat et T.S. Wang, Phys.Rev. Lett.36, 1061 (1976) ; J.M.D. Coey, J. Appl. Phys. 49 (3), 1646 (1978).
  
- [II.15] K. Moorjani et J.M.D. Coey, Magnetic glass, Methods and phenomena 6, S.Eds. S.P. Wolsky et A.W. Czanderna, Elsevier (1984).
- [II.16] I.A. Campbell, J. Phys. F. (Met. Phys.), n°2, L47 (1972).
  
- [II.17] K.H.J. Buschow, Rep. Prog. Phys., 42, 1973 (1979).
  
- [II.18] R.J. Spain, Appl. Phys. Letters 3, 208 (1963).
  
- [II.19] N. Saito, H. Fujiuara and Y. Sugita, J. Phys. Soc. Japan 19, 421, 1116, (1964).
  
- [II.20] Y. Murayama, J. Phys. Soc. Japan 21, 2253 (1966).
  
- [II.21] A. Holz and H. Kronmüller, Phys. Stat. Sol. 31, 787 (1969).
  
- [II.22] A. Hubert, Phys. Stat. Sol. 32, 519 (1969).
  
- [II.23] P. Chaudhari, J.J. Cuomo and R.J. Gambino, IBM J. Res. & Dev. 17, 66 (1973) ; Appl. Phys. Letters 22, 337 (1973).
  
- [II.24] E. Belorizky, M.A. Fremy, J.P. Gavigan, D. Givord and H.S. Li, J. Appl. Phys. 61 (8), 3971 (1987).
  
- [II.25] J.M. Alameda, D. Givord, R. Lemaire, Q. Lu, S.B. Palmer et F. Tasset J. Phys., Coll. C7, Suppl. n° 12, t.43, C7-133 (1982).
  
- [II.26] Y. Imry et S. Ma, Phys. Rev. Lett. 35, 1399 (1975).
  
- [II.27] D. Givord, A. Liénard, J.P. Rebouillat et J. Schweizer, Physica 130 B, 351-354 (1985).

- [II.28] D. Gignoux, R. Lemaire, P. Molho et F. Tasset, *J. Appl. Phys.* 52 (3), 2087 (1981).
- [III.1] P.N. Argyres, *Phys. Rev.*, Vol. 97, n°2, 334 (1955).
- [III.2] P.S. Pershan, *J. Appl. Phys.* Vol. 38, n°3, 1482 (1967).
- [III.3] M.J. Freiser, *I.E.E. Trans. Mag.*, Vol Mag.4, n°2, 152 (1968).
- [III.4] L.L. Landau and E.M. Lifschitz, *Electrodynamics of continuous Media*. Reading, Mass. Addison-Wesley (1960).
- [III.5] W. Reim and J. Schoenes, *Handbook of ferromagnetic materials* Vol.4, Eds. E.P. Wohlfarth and K.H.J. Buschow.
- [III.6] J.L. Erskine and E.A. Stern, *Phys. Rev. Let.*, Vol. 30, n°26, 1329 (1973).
- [III.7] M. Parker Givens, *Solid State Physics*, Vol. 6, 313-352 (1958).
- [III.8] J.L. Erskine and E.A. Stern, *Phys. Rev. B*, Vol.8, n°3, 1329 (1973).
- [III.9] G.S. Krinchik and V.A. Artem'ev, *Sov. Phys. JETP*, Vol.26, n°6, 1080 (1968).
- [III.10] G.S. Krinchik and V.S. Guschin, *Sov. Phys. JETP*, Vol.29, n°6, 984 (1969).
- [III.11] E.A. Gan'shina, G.S. Krinchik, L.S. Mironova et A.S. Tablin *Sov. Phys. JETP*, Vol 51, n°2, 369 (1980).
- [III.12] W.E. Spicer, *Phys. Rev.*, 154, 385, (1967).
- [III.13] P. Hansen, C. Clausen, G. Much, M. Rosenkranz et K. Witter, *J. Appl. Phys.* Vol. 66, n°2, 756 (1989).

- [III.14] M. Stoffel, J. Appl. Phys. Vol 39, n°2, 563 (1968).
  
- [III.15] T. Katayama et K. Hasegawa, Rapidly Quenches Metals IV, eds. T. Masumoto et K. Suzuki (The Japan Metal Society, Sendai, 915 (1982).
  
- [III.16] P.P.J. Van Engelen and K.H.J. Buschow. J. Magn. Magn. Mat. 66, 291-293 (1987)
  
- [V.1] E.C. Stoner et E.P. Wohlfarth, Phil. Trans. Roy. Soc. (London), A 240 , 599 (1948).
  
- [V.2] D. Givord, Q. Lu, P. Tenaud et T. Viadieu, Rare earth - Iron Permanent Magnets, O.U.P., J.M.D. Coey (éditeur), à paraître.



***TABLE DES MATIERES***

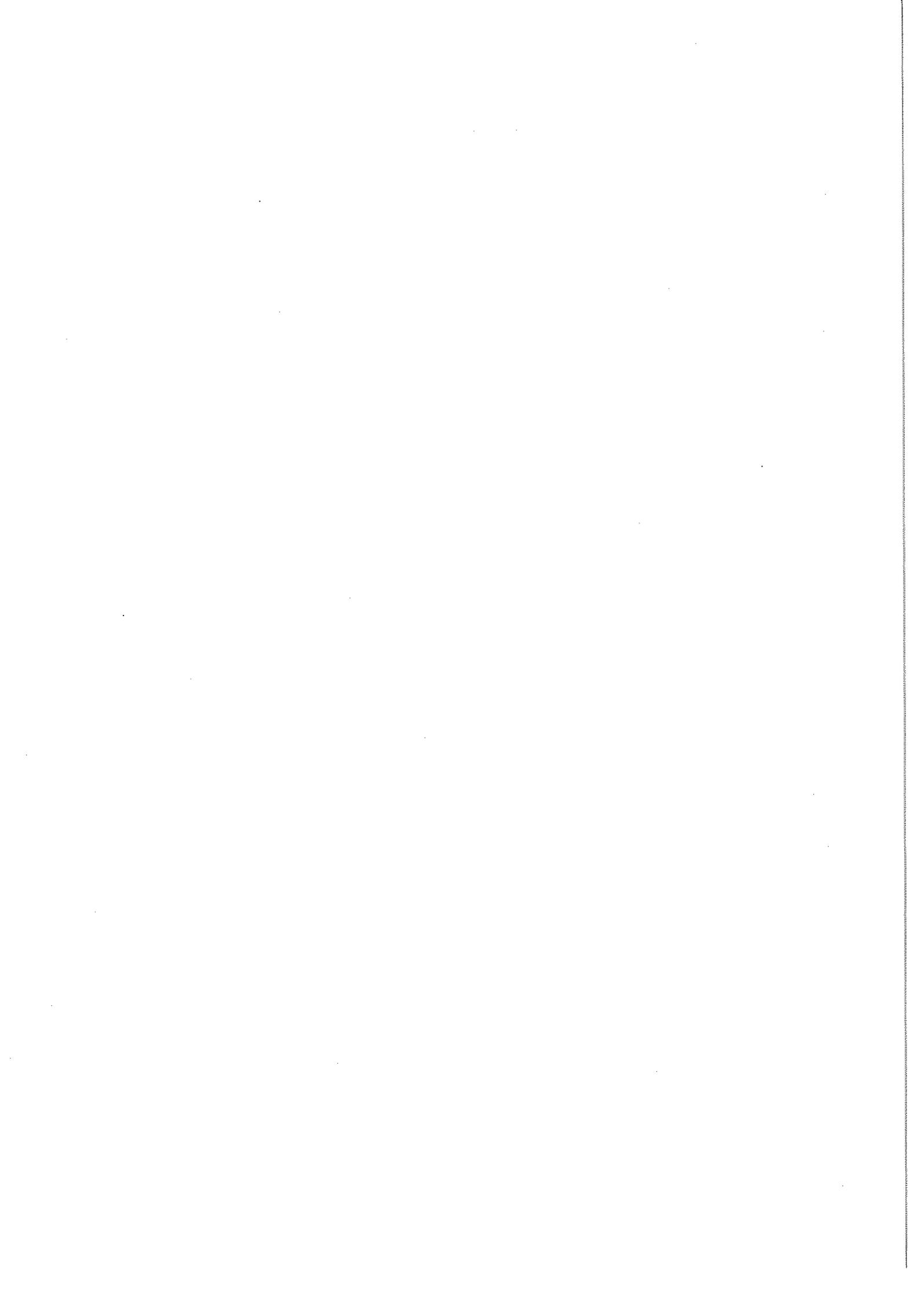


<b>INTRODUCTION</b>	<b>1</b>
<b>CHAPITRE I</b>	<b>7</b>
<b>I      TECHNIQUES EXPERIMENTALES</b>	<b>7</b>
I-1 <b>PREPARATION DES COUCHES</b>	9
I-1-1    Les différentes techniques de préparation des couches minces amorphes d'alliages terre rare-métal de transition	9
I-1-2    Préparation des couches au Laboratoire Louis Néel	14
I-2 <b>CARACTERISATION DES ECHANTILLONS</b>	16
I-2-1    Caractérisation structurale et chimique	16
I-2-2    Mesures d'aimantation	16
<b>CHAPITRE II</b>	<b>19</b>
<b>MAGNETISME DANS LES ALLIAGES AMORPHES TERRE RARE-METAL DE TRANSITION</b>	<b>19</b>
II-1 <b>ARRANGEMENT ATOMIQUE</b>	21
II-2 <b>MAGNETISME d DANS LES ALLIAGES INTERMETALIQUES</b>	22
II-2-1    Moment magnétique	22
II-2-2    Interactions d'échange	28
II-3 <b>MAGNETISME 3d ET 4f DANS LES ALLIAGES INTERMETALLIQUES</b>	31

II-4	MESURES D'AIMANTATION	34
II-4-1	Alliages Amorphes $Y_{1-x}Co_x$ , $La_{1-x}Co_x$ et $Y_{1-x}Ni_x$	34
II-4-2	Alliages amorphes $R_{0.33}Co_{0.67}$ (R = Nd, Gd et Er)	43
<b>CHAPITRE III</b>		<b>49</b>
<b>PROPRIETES MAGNETO-OPTIQUES DES ALLIAGES AMORPHES R-Co</b>		<b>49</b>
III-1	ORIGINE DES EFFETS MAGNETO-OPTIQUES	51
III-2	DESCRIPTION PHENOMENOLOGIQUE DES EFFETS MAGNETO-OPTIQUES EN TRANSMISSION ET EN REFLEXION	53
III-3	LES EFFETS MAGNETO-OPTIQUES DANS LES METAUX	57
III-4	HYSTERESIGRAPHE A EFFET KERR TRANSVERSE	63
III-5	EFFET KERR TRANSVERSE DANS LES ALLIAGES AMORPHES $R_{1-x}Co_x$ et $Y_{1-x}Ni_x$	67
<b>CHAPITRE IV</b>		<b>71</b>
<b>ANALYSE QUANTITATIVE DES PROPRIETES MAGNETIQUES DES SYSTEMES SANDWICHES</b>		
$Y_{0.29}Co_{0.71}/Gd_{0.32}Co_{0.68}/Y_{0.29}Co_{0.71}$		71
IV-1	INTRODUCTION	73
IV-2	PROPRIETES MAGNETIQUES DU SYSTEME SANDWICH Y-Co/Gd-Co/Y-Co	74
IV-2-1	Mesures d'aimantation	75
IV-2-2	Analyse qualitative de courbes M(H)	77
IV-2-3	description analytique du comportement magnétique du système sandwich Y-Co/Gd-Co/Y-Co	81
IV-2-4	Modèle discret du comportement magnétique du système sandwich Y-Co/Gd-Co/Y-Co	88

IV-3	PROPRIETES MAGNETIQUES DU SYSTEME SANDWICH Gd/Y-Co/Gd-Co	93
<b>CHAPITRE V</b>		<b>99</b>
PROPRIETES MAGNETIQUES DE SYSTEMES SANDWICHES R-Co/R'-Co/R-Co EN PRESENCE D'ANISOTROPIE MAGNETOCHRISTALINE		99
V-1	PROPRIETES MAGNETIQUES DE SYSTEMES SANDWICHES ENTRE COUCHES Y-Co ET Nd-Co	101
V-1-1	Système sandwich Y-Co/Nd-Co/Y-Co	101
V-1-2	Système sandwich Nd-Co/Y-Co/Nd-Co	104
V-1-3	Systèmes sandwiches Y-Co/Nd-Co/Y-Co et Nd-Co/Y-Co/Nd-Co formés de couches de 100 Å d'épaisseur	105
V-2	PROPRIETES MAGNETIQUES DES SYSTEMES SANDWICHES ENTRE COUCHES Y-Co ET Er-Co	107
V-2-1	Système sandwich Y-Co/Er-Co/Y-Co	107
V-2-2	Système sandwich Er-Co/Y-Co/Er-Co	109
<b>CONCLUSION</b>		<b>111</b>
<b>REFERENCES</b>		<b>117</b>







## RESUME

La décroissance du moment magnétique du métal de transition en fonction du pourcentage de terre rare alliée, est discutée dans les alliages amorphes terre rare (R) - métal de transition (M) selon un modèle simple dû à Friedel, où le nombre total d'électrons  $d$  est le seul paramètre important. Les mesures d'aimantation sur les systèmes Y-Co et La-Co révèlent l'existence d'une certaine anisotropie perpendiculaire au plan des couches.

Un dispositif de caractérisation magnéto-optique utilisant l'effet Kerr transverse a été développé. Il utilise une méthode différentielle originale qui permet d'obtenir une grande sensibilité. Le signal magnéto-optique mesuré sur les alliages amorphes Y-Co, La-Co et Y-Ni est en première approximation proportionnel au moment du métal de transition.

Les propriétés magnétiques originales de systèmes sandwiches Y-Co/R-Co/Y-Co et R-Co/Y-Co/R-Co sont décrites. Pour  $R = \text{Gd}$ , la direction de l'aimantation alterne d'une couche à l'autre ; l'arrangement des moments est de type ferrimagnétique à l'échelle macroscopique. Sous l'effet d'un champ appliqué, l'aimantation de la couche centrale, initialement antiparallèle au champ, se retourne et une paroi se forme alors à l'interface entre deux couches. L'énergie de paroi et la constante d'échange  $A$  ont été évaluées à partir de l'analyse quantitative des mesures.

Pour  $R = \text{Nd}$ , les systèmes sandwiches sont formés d'alliages ferromagnétiques dont les coercitivités diffèrent. Les retournements de l'aimantation des différentes couches ne se produisent pas sous le même champ.

## MOTS CLES

Alliages amorphes terres rares-métaux de transition, Processus d'aimantation, Effets magnéto-optiques, Effet Kerr transverse, Systèmes Sandwiches, Energie de paroi, couplage ferrimagnétique entre couches minces, coercitivité de couches minces.

