

# **THÈSE**

présentée par

**Sibylle WÜCHNER**

pour obtenir le titre de

**DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ JOSEPH FOURIER-GRENOBLE I**

(arrêtés ministériels du 5 juillet 1984 et du 30 mars 1992)

(Spécialité: Physique)

---

## **ÉTUDE DES PROCESSUS D'AIMANTATION DE TRI-COUCHES MAGNÉTIQUES À BASE D'ALLIAGES AMORPHES DE TERRES RARES ET DE COBALT**

---

Soutenue le 16 Juin 1995

Composition du Jury:

|              |  |
|--------------|--|
| Président:   | B. Castaing  |
| Rapporteurs: | J. Miltat<br>M. Picuch                                   |
| Examineurs:  | B. Dieny<br>H. Kronmüller<br>J.C. Toussaint<br>J. Voiron |

Thèse préparée au sein du Laboratoire de Magnétisme Louis NÉEL, C.N.R.S. - Grenoble



*meinen Eltern*



## Remerciements

Cette thèse a été préparée au Laboratoire de Magnétisme Louis Néel sous la responsabilité de Jean VOIRON. Je profite de cette opportunité pour lui exprimer ma reconnaissance pour son aide, son soutien et sa disponibilité.

Je remercie Monsieur B. Castaing d'avoir accepté la présidence du jury de cette thèse. Je remercie également les rapporteurs MM. J. Miltat, M. Piecuch et les examinateurs B. Dieny, H. Kronmüller et J.C. Toussaint d'avoir accepté de participer au jury de thèse.

Je remercie Monsieur D. Givord, directeur du Laboratoire Louis Néel, de m'avoir accueillie au laboratoire et dans le groupe couches minces et de l'intérêt qu'il a porté à ce travail.

Je tiens à remercier chaleureusement R. Raphel pour son aide lors de la préparation des cibles, A.D. Santos et J.P. Nozières de m'avoir initiée à la préparation des échantillons, P. David pour le four à recuit et la douche d'huile, A. Liénard pour le MEB, A.D. Santos et Y. Souche pour les effets Kerr, J.C. Toussaint pour le programme de simulation, C. Lacroix pour les discussions et R. Ferré, J.J. Préjean et J.P. Rebouillat pour la lecture critique du manuscrit.

Le travail que nous présentons a bénéficié de diverses collaborations dont le rôle a été fondamental tout au long de ces trois années. Je tiens particulièrement à remercier:

L'équipe de Virgil S. Speriosu et Dennis R. Wilhoit, qui nous ont donné accès à leur appareil de pulvérisation cathodique avec lequel une grande partie de nos échantillons ont été préparés.

J.J. Préjean et L. Perli, grâce à qui les mesures d'aimantation et de susceptibilité en champ faible ont pu être réalisées.

D. Boursier, qui nous a donné accès à son magnétomètre à échantillon vibrant.

C. Fermon pour les expériences de réflectométrie de neutrons au Laboratoire Léon Brillouin.

J.C. Peuzin pour les mesures de susceptibilité à haute fréquence, les discussions et les suggestions.

Je suis très reconnaissante de l'initiative de messieurs M. Soutif et D. Engelhardt auxquels je dois mon premier contact avec les laboratoires à Grenoble.



## Table des matières

|  |           |
|--|-----------|
| <b>INTRODUCTION .....</b>  | <b>13</b> |
| <br><b>CHAPITRE I: Méthodes expérimentales</b>                               |           |
| I.A. Préparation de couches minces par pulvérisation cathodique .....        | 17        |
| I.A.1. Techniques de dépôt .....   | 17        |
| A.1.a. Évaporation .....   | 18        |
| A.1.b. Pulvérisation cathodique .....  | 19        |
| i. Principe .....  | 19        |
| ii. Rendement .....  | 20        |
| iii. Comparaison de procédés d'évaporation et de pulvérisation.....          | 21        |
| iv. Les différents types d'appareillages de pulvérisation<br>cathodique..... | 22        |
| A.2. Appareillages utilisés .....  | 25        |
| A.2.a. Appareil à pulvérisation triode .....                                 | 26        |
| A.2.b. Appareil à pulvérisation magnétron.....                               | 28        |
| A.2.c. Appareil à pulvérisation magnétron avec cibles face-à-face .....      | 30        |
| I.B. Caractérisation structurale .....                                       | 33        |
| B.1. Rétrodiffusion de particules chargées.....                              | 33        |
| B.1.a. Dispositif expérimental .....   | 34        |
| B.1.b. Principe .....  | 35        |
| B.1.c. Interprétation des données .....                                      | 37        |
| i. Difficultés dues au support .....   | 38        |
| ii. Densité .....  | 39        |
| iii. Identification des éléments .....                                       | 39        |
| B.1.d. Champ d'application.....  | 40        |
| B.2. Spectrométrie de masses d'ions secondaires.....                         | 41        |
| B.3. Rayons X .....  | 43        |
| B.4. Mesure d'épaisseur .....  | 43        |
| B.5. Microscope électronique à balayage.....                                 | 44        |
| B.6. Recuit.....   | 44        |
| I.C. Caractérisation magnétique.....   | 45        |
| C.1. Mesures d'aimantation.....  | 45        |

|  |    |
|--|----|
| C.1.a. Magnétomètre à squid .....  | 45 |
| C.1.b. Magnétomètre à échantillon vibrant (VSM).....                         | 46 |
| C.1.c. Mesures d'aimantation et de susceptibilité en champ faible .....      | 47 |
| C.2. Mesure d'effets magnéto-optiques .....                                  | 49 |
| C.3. Réflectométrie de neutrons polarisés avec analyse de polarisation ..... | 53 |
| C.3.a. Principe.....   | 53 |
| C.3.b. Dispositif expérimental.....  | 55 |
| C.3.c. Traitement des données.....   | 55 |

## CHAPITRE II:

### Couches minces d'alliages amorphes terres rares - cobalt

|  |    |
|--|----|
| II.A. Alliages intermétalliques terre rare - cobalt .....                | 59 |
| A.1.a. Moments magnétiques.....  | 59 |
| i. Terres rares.....   | 59 |
| ii. Métaux 3d.....   | 59 |
| iii. Alliages terres rares - métaux de transition .....                  | 60 |
| A.1.b. Interactions d'échange.....                                       | 61 |
| A.1.c. Couplage entre moments 4f et moments 3d.....                      | 61 |
| A.1.d. Anisotropie .....   | 62 |
| A.2. Alliages terre rare - cobalt amorphes.....                          | 63 |
| A.2.a. Structure.....  | 63 |
| A.2.b. Propriétés magnétiques.....                                       | 64 |
| i. Interactions d'échange .....  | 65 |
| ii. Anisotropie .....  | 65 |
| iii. Structures de composés binaires .....                               | 66 |
| II.B. Résultats expérimentaux sur les couches simples .....              | 68 |
| B.1. Couches minces amorphes d'Y-Co .....                                | 68 |
| B.2. Couches minces amorphes de Gd-Co .....                              | 69 |
| B.2.a. Gd-Co déposé par pulvérisation cathodique triode.....             | 69 |
| B.2.b. Gd-Co déposé par pulvérisation cathodique magnétron.....          | 71 |
| B.3. Couches minces amorphes de Sm-Co .....                              | 72 |
| B.4. Couches minces amorphes de Tb-Co.....                               | 77 |
| B.5. Couches minces de Co et de $\text{Co}_{0,95}\text{Zr}_{0,05}$ ..... | 79 |
| Conclusion du chapitre II .....  | 82 |

## CHAPITRE III: Tricouches couplées par l'échange

|  |     |
|--|-----|
| III.A. Rappels sur les domaines et les parois .....  | 85  |
| III.A.1. Domaines.....   | 85  |
| III.A.2. Parois.....   | 86  |
| III.B. Rappel des études antérieures.....  | 88  |
| III.C. Description des systèmes expérimentaux.....   | 89  |
| C.1. Différents types d'empilement.....  | 89  |
| C.1.a. Système ferrimagnétique Y-Co/Gd-Co/Y-Co.....  | 89  |
| C.1.b. Système ferrimagnétique Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co' .....  | 90  |
| C.1.c. Système ferromagnétique Sm-Co/X/Sm-Co' (X=Co, Co-Zr).....   | 91  |
| C.2. Cycles d'hystérésis .....   | 92  |
| C.2.a. Processus d'aimantation dans le système ferrimagnétique .....   | 92  |
| Y-Co/Gd-Co/Y-Co .....  | 92  |
| C.2.b. Processus d'aimantation dans le système ferrimagnétique.....  | 95  |
| Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co' .....   | 95  |
| C.2.c. Processus d'aimantation dans les systèmes ferromagnétiques.....   | 98  |
| Sm-Co/X/Sm-Co' (X=Co, Co-Zr).....  | 98  |
| C.3. Géométrie des parois dans les systèmes sandwich.....  | 99  |
| III.D. Transition liée au retournement d'aimantation dans une couche en<br>matériau doux couplée par l'échange ..... | 100 |
| D.1. Observations expérimentales.....  | 100 |
| D.1.a. Effet de l'épaisseur.....   | 102 |
| D.1.b. Effet de la température.....  | 105 |
| D.2. Explication qualitative .....   | 106 |
| D.3. Modèle analytique de paroi sans anisotropie.....  | 108 |
| III.E. Renversement d'aimantation des couches coercitives dans des tri-<br>couches couplées par l'échange .....      | 112 |
| E.1.a. Systèmes ferrimagnétiques.....  | 112 |
| E.1.b. Systèmes ferromagnétiques.....  | 112 |
| E.1.c. Discussion.....   | 114 |
| E.2. Renversement de la couche coercitive dans un cycle mineur.....  | 116 |
| E.2.a. Description expérimentale .....   | 116 |
| E.2.b. Analyse de ces résultats .....  | 117 |

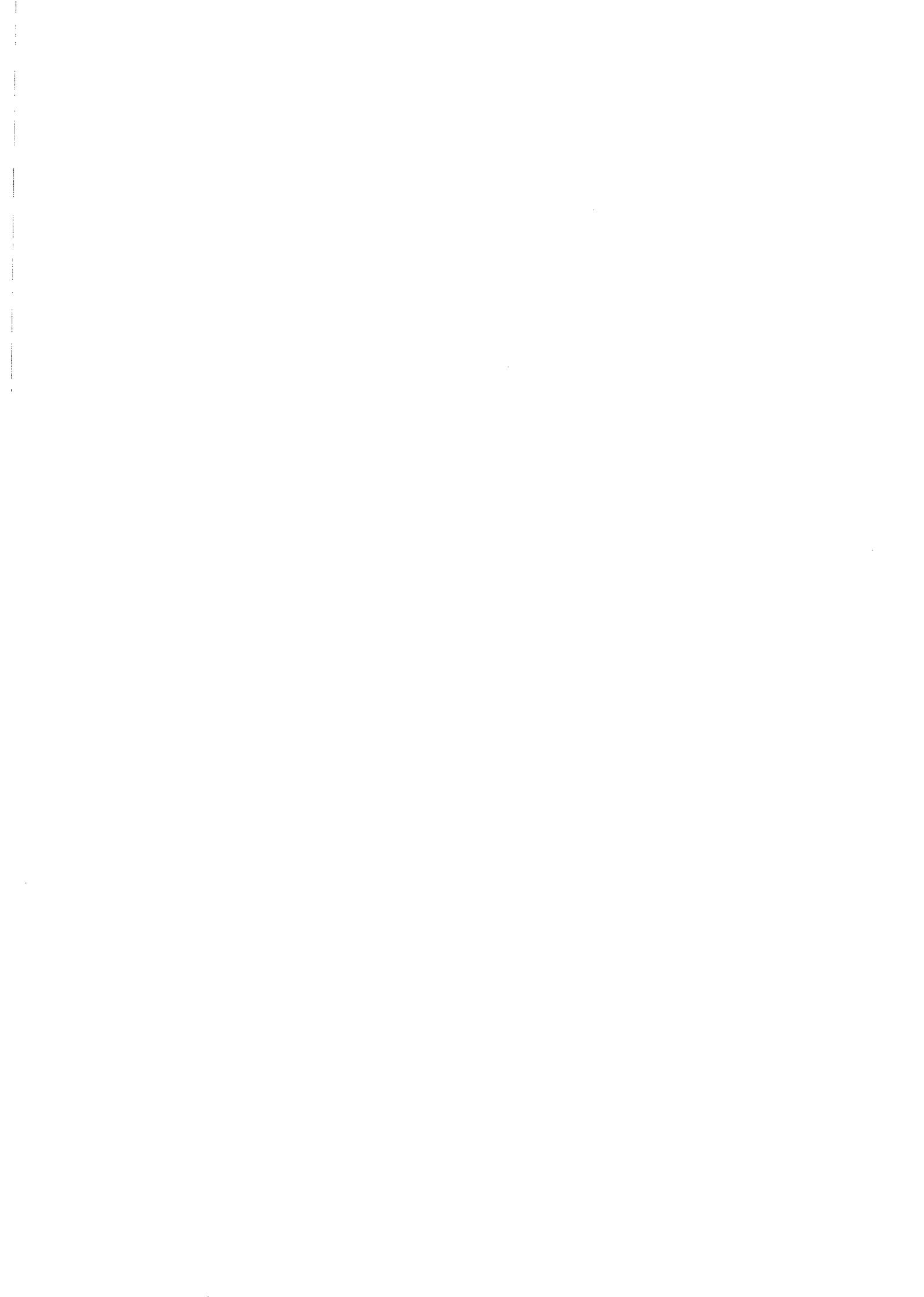
|  |     |
|--|-----|
| III.F. Processus d'aimantation dans l'état à une paroi.....  | 121 |
| F.1. Création de l'état à une paroi.....   | 121 |
| F.2. Processus d'aimantation dans l'état à une paroi .....   | 123 |
| F.3. Etude de la susceptibilité en fonction de l'épaisseur.....  | 128 |
| F.4. Méthodes d'observation directe de la paroi: réflectométrie de<br>neutrons polarisés avec analyse de polarisation..... | 129 |
| Conclusion du chapitre III .....   | 132 |

#### **CHAPITRE IV: Description des processus d'aimantation au moyen de simulations numériques**

|   |     |
|---|-----|
| IV.A. Technique de calculs .....  | 135 |
| A.1. Modèle à une dimension.....  | 135 |
| A.2. Méthode.....   | 136 |
| IV.B. Simulation de systèmes expérimentaux.....                               | 138 |
| B.1. Sm-Co/Co-Zr/Sm-Co'.....  | 138 |
| B.1.a. Simulation des processus d'aimantation dans l'état à une<br>paroi..... | 138 |
| B.1.b Transition liée à la couche douce.....                                  | 141 |
| B.1.c. Renversement d'une couche coercitive .....                             | 145 |
| B.2 Sm-Co/Co/Sm-Co' .....   | 148 |
| B.3. Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co'.....  | 150 |
| B.2.a. Simulation des processus d'aimantation dans l'état à une<br>paroi..... | 150 |
| B.2.b Transition liée au renversement de la couche douce .....                | 153 |
| B.4 Y-Co/Gd-Co/Y-Co.....  | 155 |
| IV.C. Discussion.....   | 157 |
| C.1. Température de Curie.....  | 157 |
| C.2. Echange à l'interface.....   | 158 |
| C.3. Influence de l'anisotropie .....   | 159 |
| Conclusion du chapitre IV .....   | 161 |

**CHAPITRE V: Propriétés dynamiques**

|  |            |
|--|------------|
| V.A. Technique expérimentale .....   | 165        |
| V.B. Résultats expérimentaux .....   | 166        |
| V.C. Analyse des résultats.....  | 168        |
| Conclusion.....  | 171        |
| <b>CONCLUSION GÉNÉRALE.....</b>  | <b>173</b> |
| <b>ANNEXES</b>   |            |
| Annexe III: Susceptibilité d'une paroi sans anisotropie de largeur définie ..... | 179        |
| Annexe IV: Minimisation d'une fonctionnelle .....                                | 181        |
| Annexe V: Mesures haute fréquence: Détermination de la self .....                | 184        |
| Annexe VI: Tableau de conversion d'unités .....                                  | 185        |
| <b>RÉFÉRENCES.....</b>   | <b>187</b> |



# Introduction

A partir des techniques actuelles de dépôts (MBE, pulvérisation cathodique), qui se sont considérablement développées pendant les vingt dernières années, il est possible de fabriquer des matériaux artificiels aux propriétés nouvelles différentes de celles que l'on observe dans les matériaux massifs. Par exemple dans les systèmes de multicouches ultra-minces composés de couches de quelques distances interatomiques d'épaisseur, ont été mis en évidence une anisotropie de surface conduisant à une anisotropie perpendiculaire ainsi que des effets de magnétorésistance géante: ces propriétés jouent un rôle important dans les applications.

Dans ce travail, nous nous sommes intéressés à des systèmes en couches minces ayant une autre échelle caractéristique, l'échelle des parois, typiquement quelques dizaines à quelques centaines de nanomètres. Une couche pourra alors aussi bien délimiter un domaine magnétique, qu'une paroi séparant deux domaines. C'est dans les processus d'aimantation que l'on peut mettre en évidence les propriétés liées à cette échelle d'épaisseur.

Autre paramètre important dans les systèmes à plusieurs couches: le couplage d'échange aux interfaces entre entités macroscopiques que sont les couches, qui va conduire à des structures ferrimagnétiques ou ferromagnétiques à l'échelle de l'ensemble d'un échantillon.

On peut concevoir à partir de ces concepts très simples des systèmes d'une grande variété structurale et donc des propriétés variées. On peut alors envisager de fabriquer des systèmes artificiels ayant des propriétés sur mesure adaptées à des applications particulières.

Le premier chapitre de ce mémoire décrit les méthodes expérimentales utilisées. La fabrication des échantillons par différentes méthodes de pulvérisation cathodique est comparée et différentes techniques de caractérisation structurale, chimique et magnétique sont décrites.

Au chapitre deux, les couches simples amorphes d'alliages de terre rare et de cobalt, fabriquées dans ce travail, du type Gd-Co, Y-Co, Co-Zr et Sm-Co, sont caractérisées.

Par empilement de ces couches simples on obtient des tri-couches couplées magnétiquement dont les processus d'aimantation sont analysés en détail au chapitre III.

Le chapitre IV présente les simulations numériques effectuées pour décrire les processus d'aimantation expérimentaux observés dans les tri-couches.

Enfin, dans le chapitre V nous présentons les premiers résultats du comportement haute fréquence de ces matériaux.

# CHAPITRE I: Méthodes expérimentales

|   |    |
|---|----|
| I.A. Préparation de couches minces par pulvérisation cathodique .....       | 17 |
| I.A.1. Techniques de dépôt.....   | 17 |
| A.1.a. Évaporation.....   | 18 |
| A.1.b. Pulvérisation cathodique.....  | 19 |
| i. Principe.....  | 19 |
| ii. Rendement.....  | 20 |
| iii. Comparaison de procédés d'évaporation et de pulvérisation .....        | 21 |
| iv. Les différents types d'appareillages de pulvérisation cathodique .      | 22 |
| A.2. Appareillages utilisés .....   | 25 |
| A.2.a. Appareil à pulvérisation triode.....                                 | 26 |
| A.2.b. Appareil à pulvérisation magnétron.....                              | 28 |
| A.2.c. Appareil à pulvérisation magnétron avec cibles face-à-face.....      | 30 |
| I.B. Caractérisation structurale .....                                      | 33 |
| B.1. Rétrodiffusion de particules chargées .....                            | 33 |
| B.1.a. Dispositif expérimental.....   | 34 |
| B.1.b. Principe .....   | 35 |
| B.1.c. Interprétation des données .....                                     | 37 |
| i. Difficultés dues au support.....   | 38 |
| ii. Densité .....   | 39 |
| iii. Identification des éléments.....                                       | 39 |
| B.1.d. Champ d'application .....  | 40 |
| B.2. Spectrométrie de masses d'ions secondaires .....                       | 41 |
| B.3. Rayons X.....  | 43 |
| B.4. Mesure d'épaisseur.....  | 43 |
| B.5. Microscope électronique à balayage .....                               | 44 |
| B.6. Recuit.....  | 44 |
| I.C. Caractérisation magnétique.....  | 45 |
| C.1. Mesures d'aimantation .....  | 45 |
| C.1.a. Magnétomètre à squid.....  | 45 |
| C.1.b. Magnétomètre à échantillon vibrant (VSM).....                        | 46 |
| C.1.c. Mesures d'aimantation et de susceptibilité en champ faible.....      | 47 |
| C.2. Mesure d'effets magnéto-optiques.....                                  | 49 |
| C.3. Réflectométrie de neutrons polarisés avec analyse de polarisation..... | 53 |

|                                     |    |
|-------------------------------------|----|
| C.3.a. Principe .....               | 53 |
| C.3.b. Dispositif expérimental..... | 55 |
| C.3.c. Traitement des données ..... | 55 |

# CHAPITRE I

## Méthodes expérimentales

L'obtention de couches minces d'alliages amorphes terre rare - cobalt exige des conditions de fabrication particulières. Les différentes techniques de pulvérisation cathodique décrites dans ce chapitre (triode, magnétron, face-à-face) sont adaptées pour obtenir des alliages amorphes de composition contrôlée et permettent de travailler avec des éléments très réactifs tels que les terres rares. Avec ces techniques, il est également possible d'obtenir des multicouches magnétiques avec des interfaces très propres permettant d'étudier le couplage magnétique entre couches.

Des méthodes de caractérisation telles que la rétrodiffusion de particules chargées, la spectroscopie de masses d'ions secondaires, la diffraction de rayons X, la mesure d'épaisseur et la microscopie électronique sont des méthodes complémentaires pour analyser la structure et la composition chimique des échantillons, ce qui est essentiel avant toute étude des propriétés magnétiques.

Un magnétomètre à squid, un magnétomètre à échantillon vibrant et un magnétomètre à extraction fonctionnant en champ faible ont servi pour la caractérisation magnétique des matériaux en couches simples (courbes d'aimantation en fonction du champ appliqué et de la température).

Le magnétomètre à effet Kerr permet de mesurer la variation de la composante de l'aimantation parallèle à la surface réfléchissante en fonction d'un champ appliqué.

La réflectométrie de neutrons polarisés avec analyse de polarisation est un outil particulièrement bien adapté à la caractérisation des structures magnétiques des parois existant dans nos tri-couches.

### **I.A. Préparation de couches minces par pulvérisation cathodique**

#### **I.A.1. Techniques de dépôt**

Pour l'étude expérimentale des propriétés magnétiques des systèmes sandwich, il faut trouver une méthode qui permette d'élaborer des échantillons amorphes d'alliages TR-Co (TR=terre rare) sous forme de couches minces magnétiques et de multicouches couplées magnétiquement.

Depuis le développement des technologies de dépôt, et la fabrication de matériaux solides à partir de la phase vapeur, une grande variété de matériaux sont devenus réalisables. Les propriétés des solides obtenus à partir de la phase vapeur peuvent être beaucoup plus variées que les propriétés des solides obtenus à partir de la phase liquide: les techniques de fusion produisent des matériaux solides aux propriétés proches de l'équilibre - avec des sources de vapeur, on obtient une variété beaucoup plus importante de microstructures. Avec des techniques de dépôt, on peut donc fabriquer des couches présentant des propriétés indépendantes des contraintes thermodynamiques et donc dans un état thermodynamique métastable, en particulier pour la composition. En outre, ces procédés permettent d'effectuer des trempes efficaces pour obtenir des matériaux amorphes, dont la caractéristique essentielle est l'absence d'arrangement périodique tridimensionnel des atomes. Le matériau amorphe est dans un état thermodynamique métastable. Il n'est donc pas dans un état de plus basse énergie libre et un recuit provoque sa cristallisation.

Par processus de dépôt atomique, on entend des processus au cours desquels les atomes forment un film en se condensant sur le substrat et en migrant sur des sites de nucléation et de croissance. Il existe de nombreuses méthodes de dépôt en couches minces: évaporation sous vide, transport chimique en phase vapeur, électrolyse et pulvérisation.

Il y a des différences essentielles entre ces techniques de transfert atomique, en particulier, lors de l'évaporation chimique et de l'électrolyse, les trois étapes du processus ( synthèse et création de l'espèce à déposer, transport de matériau de la source vers le substrat, dépôt sur le substrat et croissance du film) se déroulent simultanément au niveau du substrat et ne peuvent pas être contrôlés indépendamment [Bunshah R.F., 1982].

### A.1.a. Évaporation

L'évaporation est un processus au cours duquel le matériau est chauffé, par effet Joule, bombardement électronique, rayonnement (faisceau laser), ou induction, jusqu'à l'ébullition. Le processus est effectué sous vide pour que le libre parcours moyen des atomes vaporisés permette leur condensation sur le substrat sans intercollision. Les taux de dépôt peuvent atteindre 1250 nm/s.

Pour les alliages, la principale difficulté résulte des différences de tension de vapeur des constituants. Si des sources indépendantes (co-évaporation) à différentes températures sont utilisées pour chacun des constituants, les facteurs géométriques peuvent rendre le film inhomogène. Les flux émis sont anisotropes, ce qui entraîne une hétérogénéité d'épaisseurs déposées sur le substrat. Cependant l'évaporation est effectuée lentement et à suffisamment grande distance du substrat, et si le dépôt est contrôlé par des moyens de caractérisation in situ (RHEED, oscillation d'intensité des électrons réfléchis, balance à quartz, méthodes de détection

optiques ou spectroscopie de masse) on peut obtenir pour les composés déposés, des couches d'épaisseur bien régulière, une composition homogène, des interfaces très propres avec une interdiffusion minimale. L'épitaxie par jet moléculaire (Molecular Beam Epitaxy) par exemple, est un procédé d'évaporation où des faisceaux de particules sont obtenus par évaporation thermique ou au moyen d'un canon à électrons en UHV (typiquement  $10^{-8}$  Pa). [Bessot J.J., 1981; Bunshah R.F., 1982; Marty A., 1994]

### A.1.b. Pulvérisation cathodique

La pulvérisation cathodique est un procédé au cours duquel le matériau est bombardé par les ions accélérés d'un plasma. Des atomes mis en mouvement dans le solide par transfert de moment, sont éjectés de la cible et peuvent être condensés sur un substrat (figure I-A-1).

#### i. Principe

La cible et le substrat se trouvent dans une chambre pompée jusqu'à un vide de départ de l'ordre de  $10^{-6}$  Pa, dans laquelle on introduit une atmosphère d'un gaz inerte, souvent de l'argon, de pression typiquement entre  $10^{-1}$  à  $10^2$  Pa. L'application d'une tension de plusieurs milliers de volts conduit à une décharge électrique et l'établissement d'un plasma dans l'enceinte. Pour une distance entre électrodes donnée ( dans le cas d'un sputtering diode, l'anode est représentée par le substrat, qui se trouve à une distance de 5 à 10 cm de la cible, qui sert de cathode), il existe une valeur critique dans le diagramme tension de la cible - pression du gaz de travail, au-dessus de laquelle il y a ionisation auto-entretenu du gaz neutre. Dans le cas diode, le plasma se trouve entre les électrodes et les ions sont accélérés vers la cible par la différence de potentiel, dont la plus grande partie est localisée dans l'espace sombre, qui entoure la cible. L'échange d'énergie cinétique entre ions incidents et atomes dans la cible a lieu à la surface de la cible et est suivi par une succession de collisions entre les atomes de la cible, qui conduisent à l'éjection des atomes. En plus des atomes il y a éjection d'ions et d'électrons secondaires, qui ioniseront d'autres atomes du gaz.

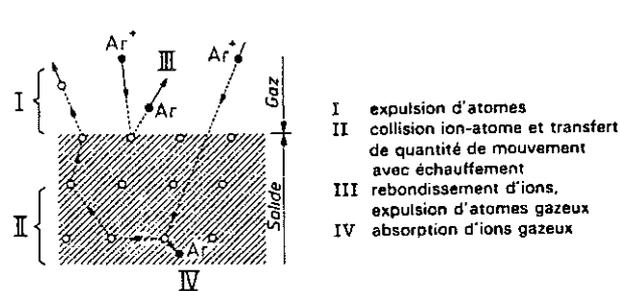


Figure I-A-1: Mécanisme de pulvérisation [Bessot J.J., 1981]

## ii. Rendement

Le processus est caractérisé par le rendement de pulvérisation  $S$ , qui est le nombre d'atomes éjectés par ion incident. Pour des ions d'argon d'énergie 500 eV en incidence perpendiculaire avec une densité de courant d'un mA/cm<sup>2</sup> par exemple, il vaut 1,3 pour une cible de nickel. Le rendement diminue pour les ions de grande énergie, parce que les ions pénètrent plus profondément dans le réseau cristallin. A basse énergie il existe un seuil en-dessous duquel il n'y a pas pulvérisation. Un bombardement électronique ne conduit pas à la pulvérisation, sauf pour de très hautes énergies. Le rendement dépend de la cible (éléments constitutifs, qualité de la surface), de la nature des ions incidents, de leur énergie  $E$  et il est très sensible à leur angle d'incidence. Il vaut en incidence normale:

$$S = \text{cte } \varepsilon \frac{E}{U} \alpha \left( \frac{M_t}{M_i} \right) \quad (\text{I.A.1})$$

( $\varepsilon$ : transfert d'énergie,  $U$ : chaleur de sublimation du matériau de la cible,  $E$ : énergie cinétique de l'ion incident,  $M_t$ : masse des atomes dans la cible,  $M_i$ : masse des ions incidents,  $\alpha$ : fonction pratiquement linéaire de  $M_t/M_i$ ). Pour les matériaux utilisés en pratique et supposant l'utilisation d'argon pour les ions incidents, la variation de  $\alpha$  avec la masse ne change pas beaucoup d'un matériau à l'autre. Le facteur principal, c'est  $U$ , la chaleur de sublimation, et ce n'est qu'une relation au premier ordre. C'est une différence significative par rapport aux processus chimiques ou thermiques, qui dépendent essentiellement d'une énergie d'activation.

La pulvérisation cathodique est donc un procédé, qui est relativement indépendant des propriétés du matériau de la cible. Grâce à cette propriété, la pulvérisation est une technique de dépôt, qui s'applique à presque tous les matériaux inorganiques sous forme solide.

Quand la cible se compose de plusieurs éléments, un équilibre s'installe naturellement: au bout d'un certain temps, la proportion des différentes espèces pulvérisées doit correspondre à la composition de la cible (figure I-A-2). Cet équilibre est atteint à condition que la cible soit refroidie pour interdire toute diffusion des constituants. Les couches obtenues par pulvérisation présentent donc la même composition que les cibles utilisées ou subissent un décalage constant.

Les atomes éjectés de la cible possèdent de très grandes énergies cinétiques, qui sont de 50 à 100 fois plus élevées que pour les procédés d'évaporation. La distribution en énergie est maxwellienne avec la plupart des atomes dans la gamme entre 0 et 10 eV, le reste a des énergies entre 10 et 40 eV. La plupart des atomes métalliques obtenus par bombardement d'argon ont des vitesses entre 3000 et 6000 m/s. Par bombardement de Kr, les vitesses sont supérieures de 20%. En ce qui concerne la direction d'éjection des espèces pulvérisées, les atomes éjectés de cibles amorphes ou polycristallines par des ions d'énergies de 1 à 3 keV en incidence normale, sont éjectés de façon pratiquement aléatoire suite à des collisions multiples à l'intérieur de la cible. La distribution résultante est pratiquement sinusoïdale.

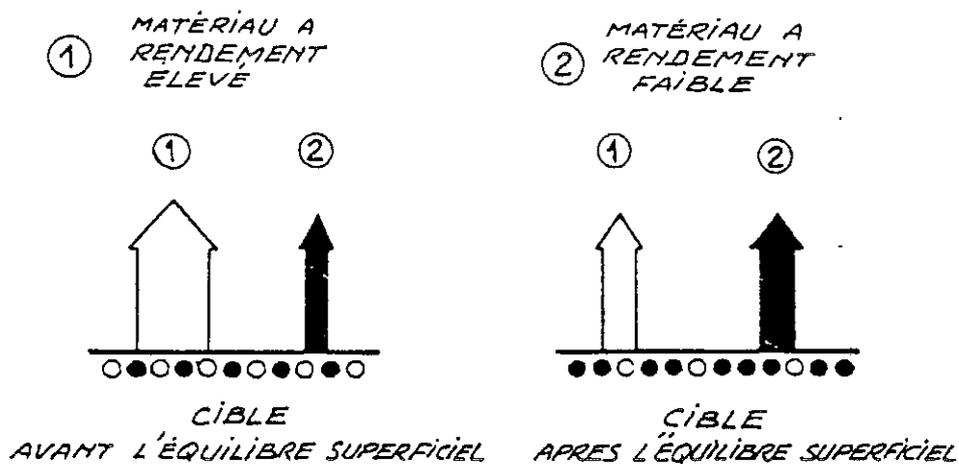


Figure I-A-2: Modification de la composition de surface de la cible [Thornton J.A., 1982; ACM, 1982]

L'énergie des espèces arrivant sur le substrat dépend de la pression et de la distance cible-substrat [Thornton J.A., 1982; ACM, 1982].

Le taux de dépôt dépend de la puissance dissipée, des valeurs entre 0,003 et 15 nm/s ont été reportées. La limite supérieure est atteinte seulement lors de la pulvérisation d'éléments purs, par exemple du cuivre. [Bunshah R.F., 1982]

Les ions ont une grande probabilité d'être neutralisés avant l'impact, sont réfléchis sous forme de neutres et contribuent largement à l'échauffement du substrat, surtout pour des appareillages travaillant avec des plasmas à basse pression où les atomes de gaz neutralisés atteindront pratiquement sans obstacle le substrat.

### iii. Comparaison de procédés d'évaporation et de pulvérisation

En comparaison avec les procédés d'évaporation, la pulvérisation présente quelques avantages, mais aussi quelques inconvénients. Un des principaux avantages est la tendance des couches minces obtenues par pulvérisation cathodique, à conserver la composition de la cible ou un décalage constant par rapport à celle-ci.

Un inconvénient de la pulvérisation, comparée à l'évaporation, est le risque possible de contamination des couches dû à la présence du gaz inerte et la contamination due à la présence d'oxygène. La vapeur d'eau toujours présente est décomposée par le plasma. A cause de la présence du gaz inerte, il n'est pas habituel d'utiliser des méthodes de caractérisation in situ nécessitant un vide poussé.

iv. Les différents types d'appareillages de pulvérisation cathodique

La réalisation technique la plus simple de la pulvérisation cathodique est le **système diode** (figure I-A-3). La distance cathode (cible) - anode (porte-substrat) est située entre 4 et 10 cm. Après pompage de la chambre et introduction d'une atmosphère de gaz d'argon, une

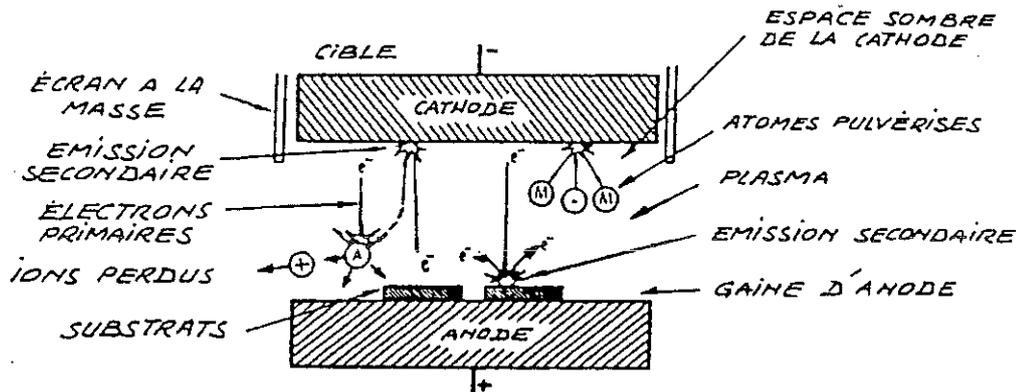


Figure I-A-3: Principe de la pulvérisation diode [Thornton J.A., 1982; ACM, 1982]

tension continue est appliquée, ce qui conduit à une décharge électrique et à la création d'un plasma. Les ions positifs sont enlevés du plasma par application d'une tension négative à la cathode et viennent bombarder la cible. Pendant ce temps, les électrons se déplacent vers l'anode et entretiennent le plasma. Afin qu'une telle décharge soit entretenue, chaque électron primaire du plasma doit produire suffisamment d'ions pour provoquer l'émission d'un électron secondaire de la cible. Pour cette raison, l'espace entre les deux électrodes doit être grand par rapport au libre parcours moyen des électrons.

Cela explique pourquoi le plasma ne peut être entretenu que pour des pressions d'argon suffisamment élevées. La vitesse de condensation sur le substrat et l'énergie moyenne des atomes éjectés de la cible, qui y arrivent, sont réduites par les collisions de ces atomes avec les atomes du gaz. Le mode de fonctionnement de l'appareillage diode est donc peu efficace. Il présente une vitesse de dépôt lente à cause des collisions et il conduit à un échauffement du substrat, qui est bombardé par des particules de haute énergie (électrons, atomes, ions négatifs). Quand la puissance maximale est appliquée, à des pressions de gaz en dessous de 0,1 Pa, les espèces pulvérisées sont éjectées plutôt latéralement qu'en avant, en direction du substrat. Au contraire, les particules "chaudes" sont éjectées principalement perpendiculairement à la cible. Ce bombardement pendant le dépôt peut conduire à des différences importantes de composition, à des défauts structuraux et à la détérioration des propriétés cristallographiques et magnétiques. Les électrons secondaires ne conduisent pas à la pulvérisation du dépôt, mais tendent à augmenter la température du substrat. Par ailleurs, il y

aura une forte polarisation négative autour du substrat si celui-ci est isolant et par conséquent attraction de nombreux ions d' $\text{Ar}^+$ . Ce bombardement par des ions d' $\text{Ar}^+$  peut produire une détérioration de l'homogénéité de la structure et, suite à une pulvérisation sélective, un décalage en composition important entre dépôt et cible. L'élévation de la température du substrat et le bombardement de la couche doivent être supprimés au cours de la croissance, parce que les propriétés magnétiques des couches sont très sensibles à ces facteurs. Les atomes retrodiffusés tendent à détruire l'homogénéité morphologique et leur incorporation provoque de fortes tensions internes. Les espèces éjectées par la cible sont principalement des ions négatifs de métaux de transition 3d comme le chrome ou le cobalt.

Certains défauts d'appareillages de type ancien peuvent être compensés par un dessin judicieux de la structure des électrodes, la configuration du champ magnétique appliqué et le contrôle du degré d'ionisation. Les exigences d'une technique de pulvérisation cathodique idéale peuvent être résumées ainsi:

- décharge stable à faible pression
- plasma de haute densité et haut degré d'ionisation
- surface des substrats et des couches déposées libre de plasma
- pas d'échauffement des substrats
- taux de dépôt élevé même pour des matériaux magnétiques
- taux de dépôt élevé par unité de puissance électrique

Ces conditions sont étroitement liées entre elles. La première est la plus importante pour un processus de pulvérisation idéal, parce que des décharges stables permettent d'éviter les décalages en composition même à faible pression et ainsi de produire des couches d'excellente qualité [Naoe M., 1994].

Contrairement à la pulvérisation diode, où le plasma est créé par le champ électrique, la **pulvérisation triode** utilise l'émission d'électrons d'une cathode chauffée (figure I-A-4). L'anode est maintenue à un potentiel de l'ordre du potentiel d'ionisation, qui sert à la création

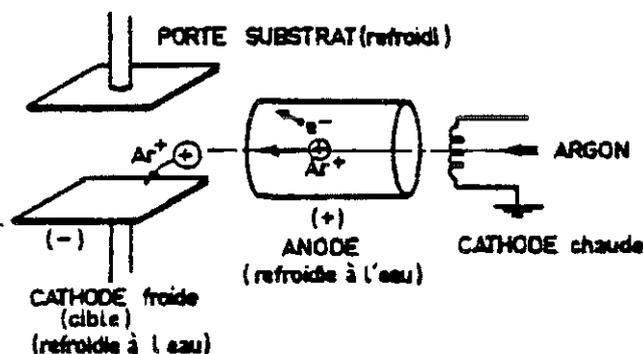


Figure I-A-4: Principe de pulvérisation triode [ Liénard A., 1981]

du plasma par suite des collisions entre les atomes d'argon et les électrons accélérés du filament chaud. Dans ces conditions il est possible d'obtenir pour des pressions assez faibles (0,1 Pa) un plasma homogène à grande distance de l'anode. Le plasma est indépendant de la cible et du substrat, ce qui permet d'augmenter la distance cible-substrat. Les ions positifs sont ensuite dirigés vers la cible à l'aide d'une combinaison de champ électrique et de champ magnétique. Cela permet de travailler à des pressions plus faibles dans la chambre à vide et des libres parcours moyens plus longs des espèces pulvérisés, d'où des couches plus pures et des taux de dépôt plus importants.

L'inconvénient principal du principe triode est la difficulté de travailler avec des gaz réactifs, parce que dans ce cas là, le filament chaud a une très courte durée de vie. A part cela, c'est une technique simple, qui permet d'obtenir des taux de dépôt importants à faible pression (jusqu'à quelques nm/s) et des couches épaisses et de très bonne qualité. Comparée à la pulvérisation diode, la pulvérisation triode présente les avantages suivants:

- La pression dans la chambre d'évaporation peut être inférieure à 0,1 Pa, ce qui augmente le libre parcours moyen des ions et le taux de dépôt.
- des taux de dépôt élevés sont possibles aussi à cause de l'intensité augmentée du plasma.
- le piégeage du gaz d'argon dans le dépôt est réduit énormément, ce qui conduit à des couches de plus grande pureté.
- le potentiel de la cible ne participe plus à l'entretien du plasma et peut être réduit à des valeurs de l'ordre de 1 kV, ce qui réduit les risques de claquage

[Liénard A., 1981].

Une réalisation de la pulvérisation cathodique diode, où le plasma est confiné magnétiquement, est dénommé **pulvérisation magnétron** (figure I-A-5). Un aimant est

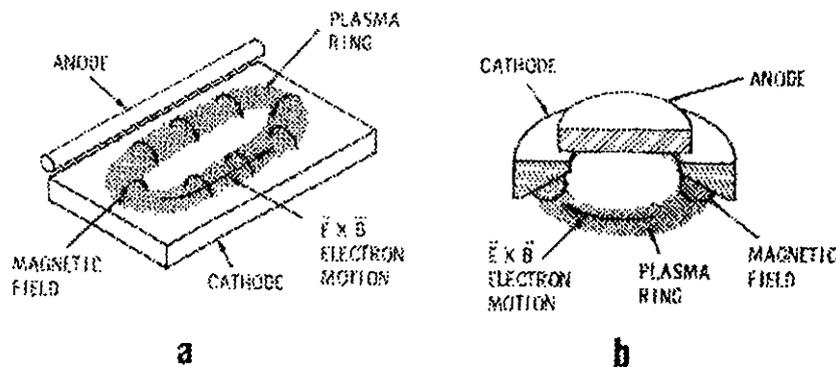


Figure I-A-5: Magnétrons avec confinement magnétique : a) magnétron planaire, b) type canon [Thornton J.A., 1982]

placé derrière la cible et suite aux effets combinés du champ électrique et du champ magnétique les électrons se déplacent suivant des trajectoires en épicycloïdes. Ils acquièrent une plus haute énergie et traversent des distances beaucoup plus grandes que dans la technique diode. Les collisions ionisantes sont beaucoup plus nombreuses et par conséquent la densité du courant ionique sur la cible est également plus grande. Les plasmas intenses ainsi créés permettent d'obtenir des taux de dépôt élevés à faibles pressions. Lors du sputtering diode simple, le substrat est bombardé par des électrons de haute énergie, ce qui conduit à son échauffement et gêne la croissance des couches minces. Ce problème, où les électrons sont canalisés, est résolu dans les systèmes magnétron.

## A.2. Appareillages utilisés

### *Préparation des cibles*

Les cibles utilisées dans les appareils de pulvérisation cathodique sont fabriquées par fusion dans un creuset froid. Les différents matériaux de départ sont introduits dans un creuset cylindrique sous atmosphère d'argon de façon que les composants se trouvent au centre de l'inducteur. L'inducteur est constitué de quatre spires enroulées autour de l'enceinte en Pyrex. Un circuit d'eau à l'intérieur du tube assure son refroidissement. Les constituants de la cible sont fondus par induction dans un champ magnétique alternatif haute fréquence. La forme du creuset, dont le fond est légèrement hémisphérique, donne lieu à un gradient de champ électromagnétique produisant une force ascensionnelle opposée à la pesanteur. Cet effet de lévitation réduit le contact avec le creuset et ainsi le risque de contamination par celui-ci, qui existe en particulier pour les terres rares au caractère fortement électropositif. Les forces électromagnétiques créées par le champ magnétique et par les courants induits sont toujours dirigées vers l'intérieur du matériau en fusion et conduisent à un brassage des composants et une grande homogénéité de l'alliage.

Dès que l'alliage paraît suffisamment homogène, le doigt escamotable qui referme les lignes de champ et qui ferme le fond du creuset est écarté et l'alliage en fusion coule dans un creuset refroidi. Celui-là a la forme et les dimensions de la cible et consiste en un tube posé sur une plaque épaisse en cuivre. Pour des matériaux fragiles, un anneau d'acier inoxydable et non-refroidi est utilisé pour réduire le choc thermique pendant la coulée. Les cibles ont une masse d'environ 35 grammes, un diamètre de 3 cm et une épaisseur de 1 cm.

### A.2.a. Appareil à pulvérisation triode

Dans la chambre de l'appareillage utilisé au laboratoire, qui est d'abord pompée jusqu'à  $10^{-5}$  Pa, un flux de gaz argon permanent est introduit à l'aide d'une micro-vanne afin d'obtenir une pression de travail d'environ 0,1 Pa. Les électrons ionisants sont émis par une cathode chauffée. La cathode consiste en un filament de tungstène. Un deuxième filament est prévu en cas de rupture pendant le fonctionnement. Les électrons sont accélérés par une anode cylindrique en acier inoxydable, de longueur 15 cm et de diamètre 8 cm, qui est refroidie à l'eau et portée à une tension de 50 V. Un champ magnétique perpendiculaire à l'ensemble cible-substrat améliore le rendement: son effet consiste en l'augmentation du libre parcours moyen des électrons, c.à.d. du nombre de collisions, et ainsi de la densité d'ions et par conséquent du taux de dépôt. Une bobine placée à l'extérieur de l'enceinte crée un champ magnétique orienté le long de l'axe de l'anode, ce qui augmente la probabilité des électrons d'entrer en collision avec les atomes du gaz. Simultanément le plasma près de l'anode est confiné par le gradient de champ magnétique. Le plasma est donc créé par l'ensemble cathode chaude, anode et bobine, tandis que la cible et le substrat ne participent pas au maintien de la décharge.

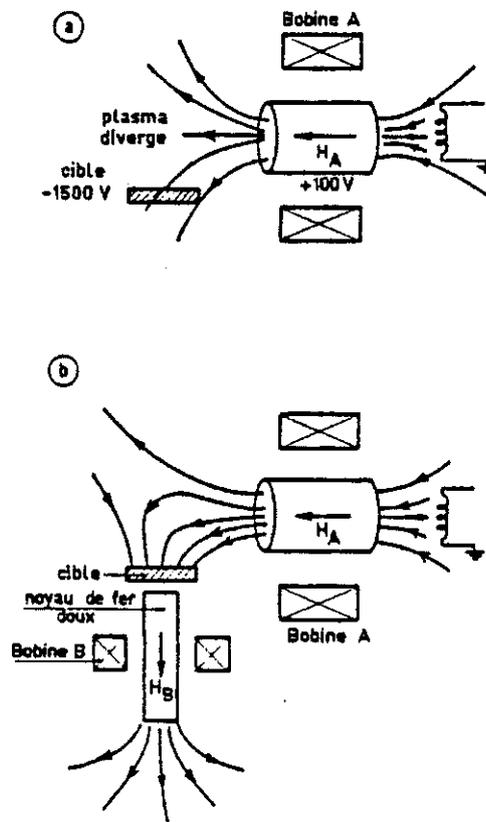


Figure I-A-6: Principe du dispositif triode utilisé [ Liénard A., 1981 ]

La densité du plasma sur la cible est augmentée d'un facteur dix en plaçant sous le porte-cible une bobine à noyau de fer doux de très haute perméabilité magnétique, qui concentre les lignes de champ sur la cible (figure I-A-6). Les ions sont accélérés vers la cible portée à un potentiel de -1500 V et les atomes éjectés se déposent sur le substrat placé en face à une distance d'environ 8 cm. La cible est montée sur un carrousel tournant, qui peut comporter jusqu'à quatre cibles différentes. Pendant le dépôt la cible peut être changée par simple rotation du carrousel, ce qui permet en principe la fabrication de multicouches. Par contre, dû à une durée trop longue du changement de cible, le risque de contamination aux interfaces est relativement important. En outre, après rotation du carrousel, la position géométrique de la cible en face du substrat n'est pas définie avec suffisamment de précision pour exclure un léger décalage de taux de pulvérisation ou même de composition. Pour des conditions de fonctionnement normales (0,2 A sous 1500 V), la puissance calorifique par bombardement ionique de la cible s'approche de  $30 \text{ W/cm}^2$ . Un refroidissement de la cible et du carrousel évite que la cible n'atteigne son point de fusion. Le contact thermique avec la cible est assuré par un film d'indium-gallium.

Le porte-substrat consiste en une plaquette d'environ 10 cm de diamètre. Il est vissé sur un dispositif rotatif, dont l'axe est décalé par rapport à la cible pour obtenir une meilleure homogénéité du dépôt. Le porte-substrat est en contact thermique avec un réservoir, qui peut être refroidi à l'azote liquide. Deux containers à l'intérieur de l'enceinte permettent de ranger jusqu'à six porte-substrats, ce qui rend possible en principe de déposer plusieurs couches pendant la même session de pompage avec une forte probabilité de garder des conditions de dépôt similaires. Vu de la cible, le porte-substrat présente un angle solide tel qu'un tiers de la masse pulvérisée soit captée [ Liénard A., 1981].

Pour des conditions géométriques définies, le taux de pulvérisation peut être modifié en variant la tension de la cible, la tension de l'anode, le courant de chauffage de la cathode et la pression du gaz d'argon. En jouant sur la distance cible-substrat, nous avons atteint lors de la préparation des échantillons analysés dans ce travail des taux de l'ordre de 0,08 nm/s. Une balance à quartz permet de contrôler le taux de dépôt pendant le processus de pulvérisation.

Les substrats de verre utilisés ont été successivement nettoyés avec un produit dégraissant, de l'eau déionisée respectivement dans un bain à ultrasons, séchés par un jet d'azote et fixés au porte-substrat avec du ruban adhésif (type kapton) de façon à conserver la symétrie de rotation du système.

Une ligne d'arrivée de gaz d'azote séparée permet la protection des échantillons par une couche de  $\text{Si}_3\text{N}_4$  obtenue par sputtering réactif à partir d'une cible de Si.

L'appareillage avait été développé dans le but d'obtenir des couches simples relativement épaisses et fournit effectivement des taux de dépôt relativement importants. Pour l'étude de nos tri-couches, en particulier pour la dépendance de leurs propriétés magnétiques en fonction de l'épaisseur, il était important de disposer d'un appareillage

fabriquant des dépôts reproductibles et garantissant de plus des interfaces de bonne qualité. Cet appareil de pulvérisation triode n'était pas adapté à la fabrication de systèmes sandwich ou de multicouches, et nous avons poursuivi la fabrication de nos échantillons à IBM San José.

### A.2.b. Appareil à pulvérisation magnétron

Pendant ce travail nous avons eu la possibilité de travailler dans un laboratoire d'IBM à San José avec un appareillage de pulvérisation correspondant à nos besoins. La présence de dix-sept porte-substrats permet l'élaboration d'une série complète d'échantillons pendant un seul pompage. Ainsi une série d'échantillons peut être obtenue en variant un seul paramètre, comme par exemple l'épaisseur, tout en gardant les mêmes conditions de dépôt. Les valeurs de courant et tension sont enregistrées au début et à la fin de chaque dépôt de sorte qu'il y a contrôle de la constance des conditions de travail. Grâce à l'automatisation de la machine, les changements de cibles nécessaires pour la fabrication de multicouches se font en quelques secondes tout en conservant très précisément la position de la cible par rapport au substrat. Il existe une alimentation pour chaque cible permettant le pré-nettoyage d'une cible pendant le dépôt de la couche précédente. Ces dispositifs contribuent à l'obtention d'interfaces de haute qualité et minimisent les risques d'oxydation.

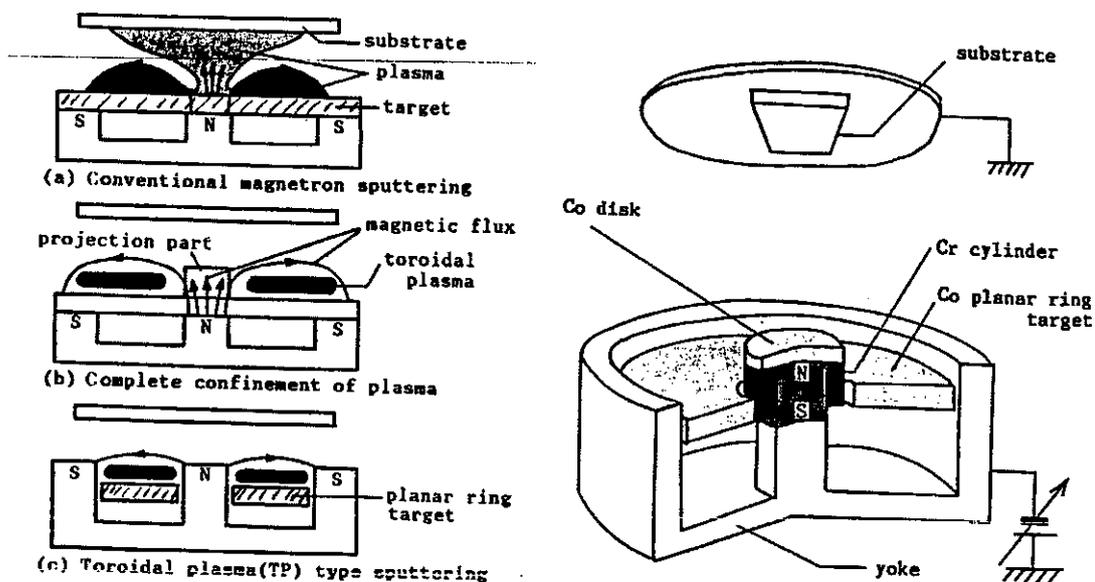


Figure I-A-7: Schéma de la pulvérisation avec un plasma toroïdal [Takahashi T., 1989]

Il s'agit d'un sputtering magnétron, qui utilise des cibles sous forme d'anneaux pour obtenir un confinement complet du plasma et une suppression suffisante du bombardement du substrat par des particules de haute énergie. Dans les systèmes magnétron conventionnels, le substrat est exposé au plasma et est bombardé par des particules de haute énergie comme les électrons secondaires et des ions négatifs, qui sont éjectés de la zone centrale de la cible. De plus, avec une cible ferromagnétique, le flux magnétique est court-circuité et son intensité n'est plus suffisante devant la cible pour confiner le plasma.

En revanche, dans l'arrangement avec la cible sous forme d'anneau, le flux magnétique dans la cible ferromagnétique est réduit et le champ magnétique suffisamment grand pour confiner entièrement le plasma toroïdal [Takahashi T., 1989],(figure I-A-7).

Les cibles sont coulées de la même manière que celle décrite ci-dessus et usinées afin d'avoir des anneaux d'une hauteur de 1 cm et de diamètres  $\varnothing 2$  cm et  $\varnothing 3,8$  cm. Les substrats se trouvent à une distance de 25 cm au-dessus des cibles. Nous avons utilisé la configuration des porte-substrats, qui permet l'exposition simultanée de trois substrats de 2,35 cm de diamètre placés de façon symétrique autour de l'axe cible/porte-substrat et qui fournit trois exemplaires de chaque échantillon. Fixé au-dessus et en contact direct avec les substrats, un aimant permanent crée un champ magnétique parallèle homogène sur toute la surface du porte-substrat pour induire un axe de facile aimantation dans le plan de la couche. Cela présente un avantage supplémentaire par rapport à l'appareillage triode décrit ci-dessus où un axe de facile aimantation doit être créé par des recuits sous champ ex situ, ce qui entraîne inévitablement une interdiffusion aux interfaces et des risques de contamination et d'oxydation.

Le vide de départ est de l'ordre de  $10^{-6}$  Pa; nous avons déposé nos échantillons sous une pression de travail de 0,4 Pa, à température ambiante et avec une puissance de l'ordre de 100 W. Les taux de dépôt correspondants étaient de l'ordre de 0,1 à 0,4 nm/s.

Pour contrôler et étalonner les vitesses de dépôt, des couches sont déposées pour trois valeurs différentes de courant et de durée de pulvérisation. Pour surveiller la stabilité du courant, deux valeurs sont enregistrées: au début et à la fin du dépôt.

Pour les étalonnages nous utilisons des substrats de quartz très épais et très plans afin d'obtenir des mesures d'épaisseur précises par mesure mécanique d'épaisseur (paragraphe I.B.4).

Un quartz oscillant est installé à la position du dix-huitième porte-substrat, avec lequel les taux de dépôt obtenus avec des échantillons étalons peuvent être vérifiés. Les fabricants donnent pour les taux de dépôt par rapport au cuivre : 1,21 pour le samarium, 0,62 pour le cobalt et 0,7 pour le zirconium. Cette tendance est confirmée par nos étalonnages, mais avec un facteur deux fois plus grand entre le samarium et le cobalt. Lors de l'utilisation d'alliages, il faut tenir compte de cette grande différence de vitesses de dépôt entre les terres rares et les métaux 3d dans la composition des cibles. En effet pour des éléments purs tels que le cobalt et le tantale, ou des

alliages de même composition, tels que  $GdCo_2$  et  $TbCo_2$ , les vitesses de dépôt sont comparables (figure I-A-8).

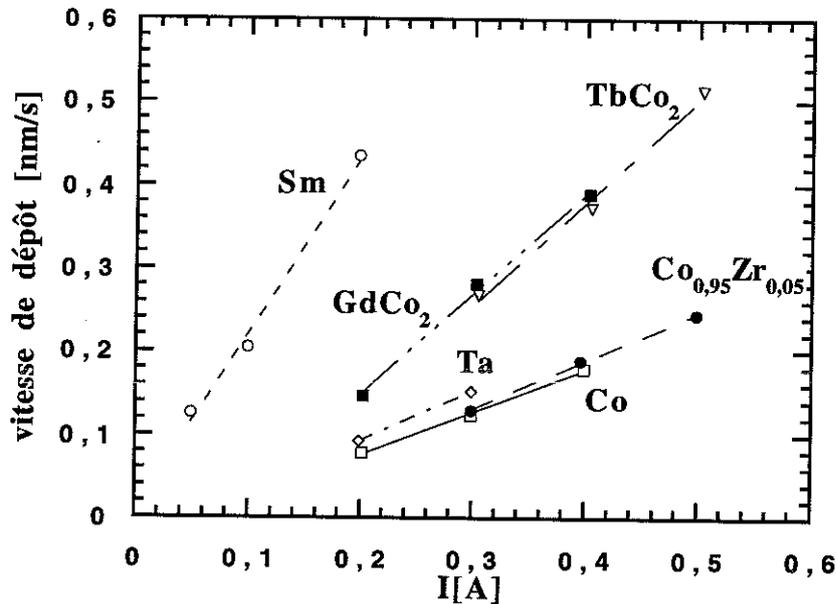


Figure I-A-8:  
Vitesse de dépôt en fonction du courant pour différents éléments à une pression d'argon de 0,4 Pa, mesurées pour le dispositif de pulvérisation magnétron à San José

### A.2.c. Appareil à pulvérisation magnétron avec cibles face-à-face

Une autre possibilité pour éviter que tout le flux magnétique du système magnétron ne passe dans la cible magnétique, est la configuration de cibles dite face-à-face, où les surfaces à pulvériser de deux cibles de même taille se trouvent parallèles l'une en face de l'autre. Un champ magnétique est appliqué perpendiculairement à la surface des cibles afin de confiner les électrons secondaires et de concentrer le plasma dans l'espace compris entre les plans des cibles. Comme le confinement des électrons secondaires renforce l'ionisation du gaz dans l'espace entre les cibles et augmente le nombre d'ions pulvérisant, la vitesse de pulvérisation augmente et conduit à des taux de dépôt plus élevés. Pour cet arrangement de cibles et de substrat, le bombardement de celui-ci par des électrons  $\gamma$  de haute énergie devient négligeable et ne produit pas d'échauffement important du substrat [ Fan Q., 1992; Nakagawa S. 1992; Naoe M., 1980; Niimura Y., 1986], (figure I-A-9).

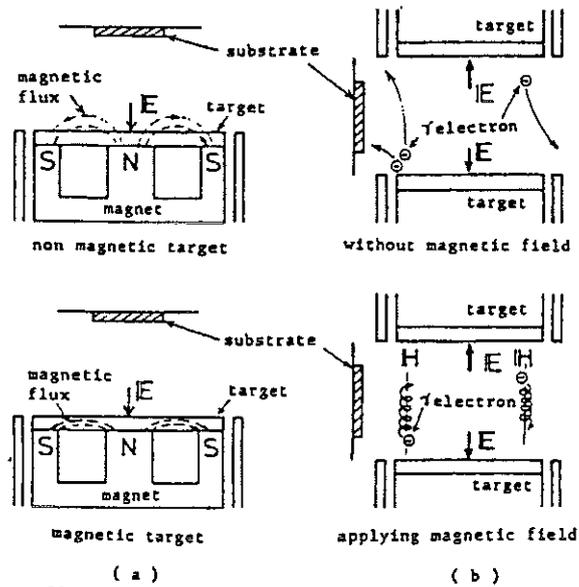


Figure I-A-9: Configuration de cibles dans un dispositif de pulvérisation: a) type magnétron, b) type face à face.  $H$  et  $E$  représentent les directions du champ magnétique et du champ électrique [Naoe M., 1980]

Un avantage supplémentaire du principe décrit ci-dessus concerne la conservation de la composition chimique entre la cible et le dépôt lors de la pulvérisation d'alliages. La tendance à l'appauvrissement d'un composant pendant la pulvérisation dû à la pulvérisation préférentielle est compensée par la contribution de la même composante de l'autre cible. Le laboratoire

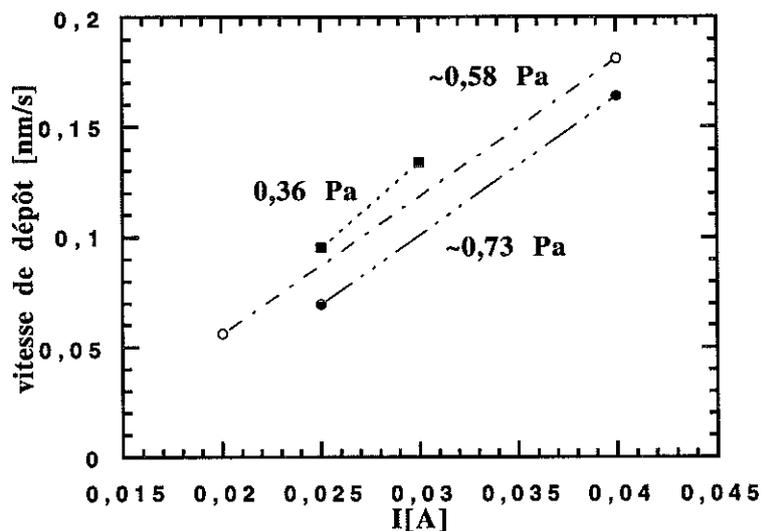


Figure I-A-10: Vitesse de dépôt de  $GdCo_2$  en fonction du courant à différentes pressions d'argon, mesurées dans le dispositif avec cibles face à face

dispose depuis peu de temps d'un appareillage basé sur le principe de cibles face-à-face, construit par la société Plassys. Pendant la phase d'essais quelques échantillons ont été préparés dans le cadre de ce travail et des analyses RBS (paragraphe I.B.1) ont confirmé que la stoechiométrie des échantillons est identique à celle des cibles.

Pour le dispositif existant, les cibles sont coulées de la façon décrite plus haut, collées sur des socles en inox, fer ou cuivre et les paires sont montées verticalement face à face à une distance de 3 cm l'une de l'autre. Le porte-cibles tournant prévoit des emplacements pour quatre paires de cibles avec un écart de  $90^\circ$  entre eux. Jusqu'à huit substrats d'un diamètre maximal de 2 cm peuvent être fixés sur un porte-substrat tournant en forme d'anneau. Pendant le dépôt, le substrat est placé à 2 cm au-dessus des cibles pulvérisées (cet arrangement est donc tourné de  $90^\circ$  par rapport à celui montré dans la figure I-A-9). Dans cette configuration et pour une pression d'argon de 0,36 Pa et un courant de 30 mA on obtient pour une cible de  $\text{GdCo}_2$  un taux de pulvérisation d'environ 0,13 nm/s (figure I-A-10)

L'appareillage est conçu pour une variation contrôlée de la température des substrats pendant le dépôt. Pour les dépôts à basse température, c.à.d. avec un refroidissement à l'azote liquide, des problèmes d'adhérence des couches aux substrats restent à résoudre.

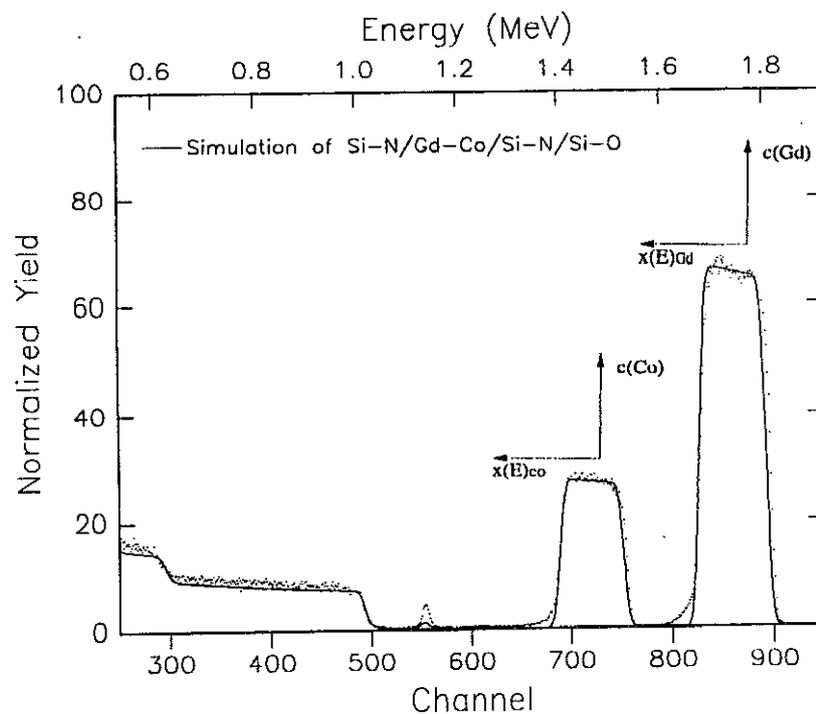
La machine ne prévoit pas de dispositif pour induire un axe de facile aimantation pendant le dépôt, des essais avec un champ magnétique créé au niveau du substrat par des aimants permanents supplémentaires n'ont pas encore abouti.

## I.B. Caractérisation structurale

Afin d'analyser les propriétés magnétiques, il est indispensable de bien connaître les paramètres géométriques et chimiques qui caractérisent un échantillon. Les propriétés magnétiques d'une couche mince dépendent fondamentalement de la composition des alliages et de l'épaisseur des couches constitutives.

### **B.1. Rétrodiffusion de particules chargées**

Un outil, employé depuis peu au laboratoire, et qui permet d'avoir accès à ces paramètres assez rapidement et de façon quantitative, est la rétrodiffusion des particules chargées ("RBS" : Rutherford Backscattering) par le matériau à analyser. Le spectre d'énergie de ces particules est lié de façon assez directe au profil de concentration des atomes dans la cible, le taux de comptage pour une valeur d'énergie  $E_1$  reflétant la concentration d'un élément à la profondeur  $x(E_1)$ , correspondant à cette énergie (figure I-B-1). Les expériences ont été effectuées à l'accélérateur ACADI au Département de Recherche Fondamentale du Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble, sous la responsabilité de J. Fontenil.



*Figure I-B-1:*  
*Spectre de RBS: Nombre de particules comptées (normalisé) en fonction de leur énergie*

### B.1.a. Dispositif expérimental

Une source d'ions fournit des particules  $^4\text{He}$  ionisées par décharge hf, qui sont portées à plusieurs MeV par un accélérateur Van de Graaff. Après filtrage par un électroaimant et collimation par deux diaphragmes distants de deux mètres, le faisceau monocinétique (2 MeV) tombe en incidence normale sur l'échantillon qui se trouve dans une enceinte vidée à  $1,3 \times 10^{-4}$  Pa. La rapidité de la méthode est entre autres due au fait qu'il n'y a pas besoin d'un vide aussi poussé que dans d'autres méthodes (de l'ordre de  $10^{-8}$  Pa). La couche mince est soit fixée par des petits aimants permanents, soit collée à la laque d'argent assurant l'évacuation des charges

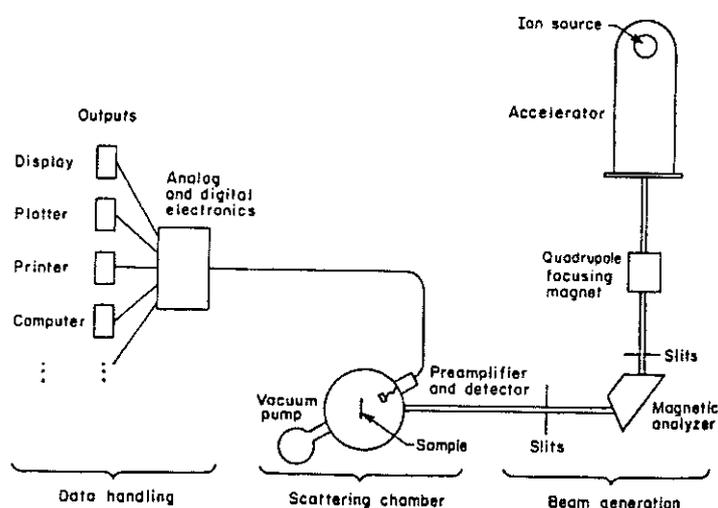


Figure I-B-2:  
Schéma d'un dispositif de rétrodiffusion de particules chargées [Chu, 1978]

qui pourraient s'accumuler à la surface de la cible. Le porte-échantillon, relié à la masse électrique, est mobile, ce qui permet de changer le point d'impact du faisceau par décalage horizontal et ainsi de mesurer plusieurs échantillons pour un seul pompage, ou de prolonger le chemin de la particule dans la cible par inclinaison. Une partie des ions rétrodiffusés est captée par un détecteur situé à  $\theta=165^\circ$  par rapport à la direction d'incidence. Il crée un signal électrique qui est amplifié et analysé afin d'avoir un spectre digitalisé: le détecteur fournit un nombre de charges proportionnel à l'énergie de la particule incidente. Les charges sont assemblées dans un amplificateur dont le signal de sortie est proportionnel à la charge accumulée. Ces pulses sont amplifiés et comptés par un analyseur multicanaux (figure I-B-2).

### B.1.b. Principe

Le modèle physique du processus correspond à la collision élastique entre sphères dures. Les quelques particules incidentes qui passent très près des noyaux dans la couche sont déviées par la force de Coulomb. Le facteur cinématique  $K$ , reliant l'énergie de l'ion avant ( $E_0$ ) le choc et après ( $E_1$ ), ne dépend que de l'angle de diffusion  $\theta$  et du rapport  $M_1/M_2$  des masses des particules participant à la collision (figure I-B-3).

$$K_{M_2} = \frac{E_1}{E_0} = \left\{ \frac{\sqrt{1 - (M_1/M_2)^2 \sin^2 \theta} + (M_1/M_2) \cos \theta}{1 + (M_1/M_2)} \right\}^2 \quad (\text{I.B.1})$$

$M_1$  : masse de la particule incidente  
 $M_2$  : masse de l'atome rencontré par l'ion  
 $E_0$  : énergie de l'ion juste avant la collision  
 $E_1$  : énergie de l'ion juste après la collision

Dans le cas d'une particule diffusée à la surface de l'échantillon, ce facteur donne directement l'énergie de la particule qui arrive dans le détecteur. Autrement dit, si on connaît la masse de la particule incidente  $M_1$ , son énergie avant la collision et si l'on mesure l'énergie après la collision on peut déduire, la masse de l'atome  $M_2$  et identifier l'élément dans la couche.

C'est pour un angle de diffusion  $\theta = 180^\circ$  que la différence  $\Delta M_2$  entre les masses des atomes dans la cible produit la variation maximale de  $K$ , d'où une meilleure séparation des différents éléments .

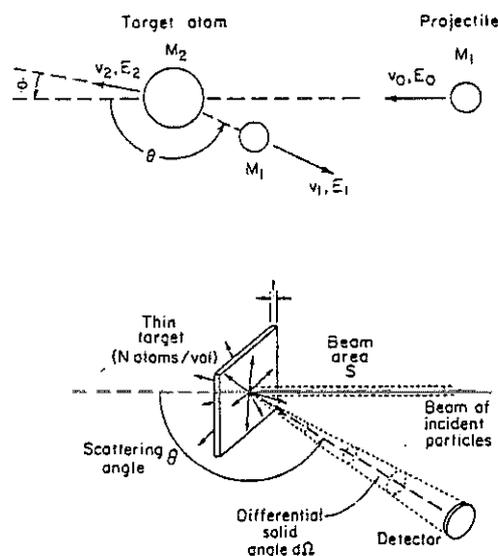


Figure I-B-3:

*Schéma simplifié d'une expérience de diffusion. Seules les particules primaires diffusées à l'intérieur de l'angle  $d\Omega$  défini par le détecteur sont comptées. [Chu, 1978]*

L'analyse de la composition du dépôt est liée à la probabilité de collision, qui dépend de la section efficace différentielle de diffusion élastique donnée par la formule classique de Rutherford:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{Z_1 Z_2 e^2}{4E}\right)^2 \frac{4}{\sin^4 \theta} \frac{\{\sqrt{[1 - ((M_1 / M_2) \sin \theta)^2]} + \cos \theta\}^2}{\sqrt{[1 - ((M_1 / M_2) \sin \theta)^2]}} \quad (\text{I.B.2})$$

avec les numéros atomiques de la particule incidente et de l'atome cible  $Z_1$  et  $Z_2$  et l'énergie  $E$  de la particule incidente immédiatement avant la diffusion.

Le nombre de particules détectées est proportionnel à l'angle solide  $\Omega$  donné par le détecteur, le nombre de particules incidentes  $n_i$  et le nombre d'atomes par unité de surface  $Nx_0$  dans la cible d'épaisseur  $x_0$ :

$$n_{\text{det}} = \frac{d\sigma}{d\Omega} * \Omega * n_i * N * x_0 \quad (\text{I.B.3})$$

d'où la concentration en nombre d'atomes par unité de surface pour un élément ( $Z_2$ ,  $M_2$ ) à une profondeur  $x_0$  est donnée par :

$$N * x_0 = n_{\text{det}} / \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} * \Omega * \frac{\int I dt}{q} \right) \quad (\text{I.B.4})$$

avec le nombre d'atomes par unité de volume de la cible  $N$ , le nombre de particules détectées  $n_{\text{det}}$ , le courant de particules incidentes  $I$ , la charge d'un ion incident  $q$  et l'angle solide de détection  $\Omega$ .

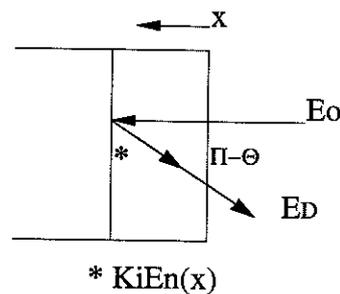


Figure I-B-4: Schéma pour le calcul de l'énergie de la particule détectée

La profondeur en dessous de la surface de la cible, à laquelle correspond cette concentration, peut être déduite de l'énergie perdue par l'ion lors de son trajet dans le matériau avant et après la collision (figure I-B-4). Cette perte d'énergie correspond à la différence d'énergie entre particules diffusées à la surface ( $K_j E_0$ ) et l'énergie  $E_D$  de particules diffusées à une profondeur  $x$ :

$$E_V(x) = E_0 - \int_0^x \left( \frac{dE}{dx} \right)_{\text{aller}} dx \quad (\text{I.B.5a})$$

$$\begin{aligned} E_D(x) &= E_n(x) - \int_{x/|\cos\theta|}^0 \left( \frac{dE}{dx} \right)_{\text{retour}} dx \\ &= K_i E_V(x) - \int_{x/|\cos\theta|}^0 \left( \frac{dE}{dx} \right)_{\text{retour}} dx \end{aligned} \quad (\text{I.B.5b})$$

$$\Delta E = K_i E_0 - E_D(x) = K_i \int_0^x \left( \frac{dE}{dx} \right)_{\text{aller}} dx + \int_0^{x/\cos\theta} \left( \frac{dE}{dx} \right)_{\text{retour}} dx \quad (\text{I.B.6})$$

où  $E_V(x)$  est l'énergie de la particule à la profondeur  $x$  immédiatement avant la diffusion,  $E_n(x)$  l'énergie juste après.

A chaque valeur d'énergie détectée pour des particules diffusées par une cible monoatomique, correspond ainsi une profondeur d'interaction, si on connaît la perte d'énergie de ces particules dans le matériau.

Cette perte d'énergie dépend à chaque instant de l'énergie de l'ion, ce qui complique la relation entre profondeur de collision  $x$  et énergie de la particule détectée qui ne sera pas linéaire. Pour des couches suffisamment minces, les énergies perdues  $dE/dx$  dans le matériau avant et après le choc peuvent être approximées par des valeurs constantes ( $S$ ), d'où résulte une relation simple entre le décalage en énergie et l'épaisseur:  $\Delta E = (S) \cdot x$ .

La méthode permet d'analyser des épaisseurs jusqu'à quelques microns.

### B.1.c. Interprétation des données

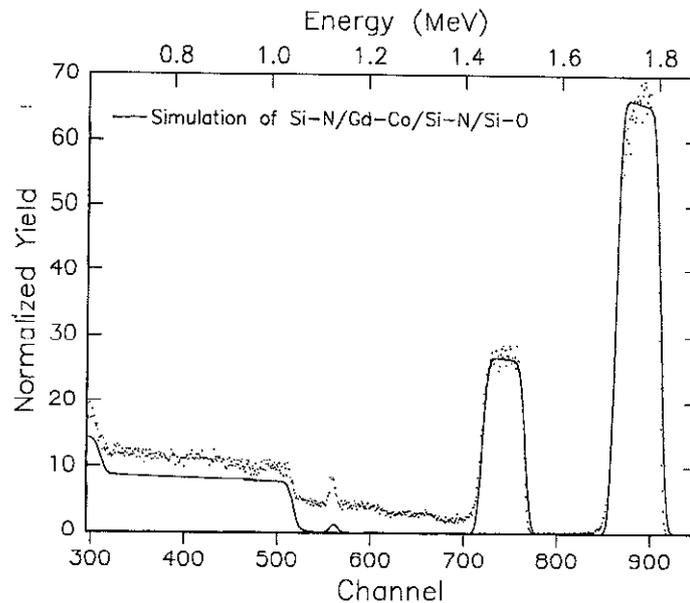
Les données brutes de l'expérience consistent en des spectres donnant le taux de comptage en fonction des numéros de canal. Il est important de faire l'étalonnage d'énergie, à l'aide par exemple de couches d'or et de  $\text{SiO}_2$  ayant des énergies caractéristiques suffisamment séparées, pour chaque série d'acquisition.

Un programme de simulation mis au point par l'Université de Cornell, RUMP, calcule le spectre attendu à partir des paramètres entrés par l'utilisateur, c'est-à-dire les compositions des alliages et les épaisseurs des couches constitutives.

Les valeurs des paramètres, qui superposent le mieux le spectre simulé avec les résultats des mesures, sont retenus.

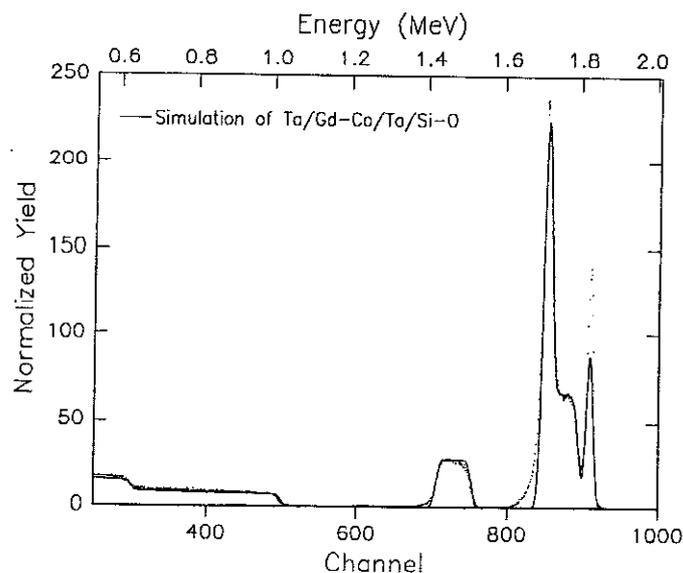
*i. Difficultés dues au support*

L'analyse est difficile si on utilise des substrats en verre, qui contiennent beaucoup d'impuretés dans une large gamme d'énergie et dont les signaux se superposent aux signaux de la couche à analyser (figure I-B-5). Nous avons remplacé le verre par des substrats en silicium,



*Figure I-B-5: Spectre RBS pour un échantillon déposé sur un substrat de verre*

qui non seulement contiennent nettement moins d'impuretés, mais qui offrent sous forme d'un flanc très net et bien séparé dans le spectre la possibilité d'ajuster la hauteur du signal et fournissent une indication importante pour la recherche des autres coefficients (figure I-B-1).



*Figure I-B-6: Situation des pics de couches protectrices d'éléments lourds (les pics les plus prononcés dans la figure correspondent au tantale)*

En plus du substrat, se pose la question, de trouver un matériau pour les couches protectrices, qui perturbe le moins possible l'analyse RBS des couches à étudier. Des couches protectrices en Ta en surface et entre couche et substrat donnent des spectres plus marqués que  $\text{Si}_3\text{N}_4$ . Le Ta en surface peut fournir un point supplémentaire pour l'étalonnage canal/énergie, mais cette méthode est à utiliser avec prudence, parce que la couche protectrice possède une épaisseur déjà légèrement inférieure à la résolution et le flanc du pic tronqué indique une énergie caractéristique faussée. La deuxième couche de Ta rend l'analyse plus compliquée, parce que son pic se mélange avec ceux des terres rares (figure I-B-6).

### ii. Densité

La perte d'énergie des particules  $\alpha$  ne dépend pas directement de l'épaisseur traversée, mais du nombre d'atomes par unité de surface (relation I.B.3). La probabilité de collision est pour chaque profondeur proportionnelle au nombre d'atomes à cette profondeur. La rétrodiffusion indique donc le nombre d'atomes par unité de surface traversé par la particule plutôt que la profondeur physique. La conversion est directe, si la densité de la cible est connue. A défaut on peut prendre pour les alliages une moyenne sur les densités cristallines des composants en atomes/cm<sup>3</sup>. Cette approximation peut conduire à des erreurs importantes sur les épaisseurs, en particulier pour les matériaux amorphes, dont la densité est plus faible. Ceci pose des problèmes, parce qu'en général on ne dispose pas de la densité de tels composés.

Pour une couche de Gd-Co nous avons essayé de calculer une densité plus réaliste à partir des paramètres de maille du cristal ( $a = 0,753$  nm) en supposant 92% de cette valeur pour le cas amorphe. Givord et al ont montré à l'aide de diffraction de neutrons que ce procédé est justifié dans le cas d'un alliage de composition  $\text{YNi}_2$  [Givord D., 1979]. Des mesures au tallistep sur un échantillon très épais de 850 nm confirment le résultat de simulation utilisant une densité calculée ainsi ( $\rho = 0,578 \times 10^{23}$  atomes/cm<sup>3</sup>), tandis que la simulation avec la densité moyenne ( $\rho = 0,711 \times 10^{23}$  atomes/cm<sup>3</sup>) diffère de 25% : 660 nm !

### iii. Identification des éléments

Avec le nombre croissant de couches différentes dans un sandwich, l'analyse devient de plus en plus compliquée, parce que les pics des éléments lourds des couches en profondeur interfèrent avec les pics des éléments plus légers en surface (figure I-B-7). Dans ce cas il faut commencer par optimiser la première couche rencontrée par l'ion, parce que l'épaisseur et la composition de celle-ci déterminent l'énergie de l'ion entrant dans la deuxième couche et donc la position des autres pics.

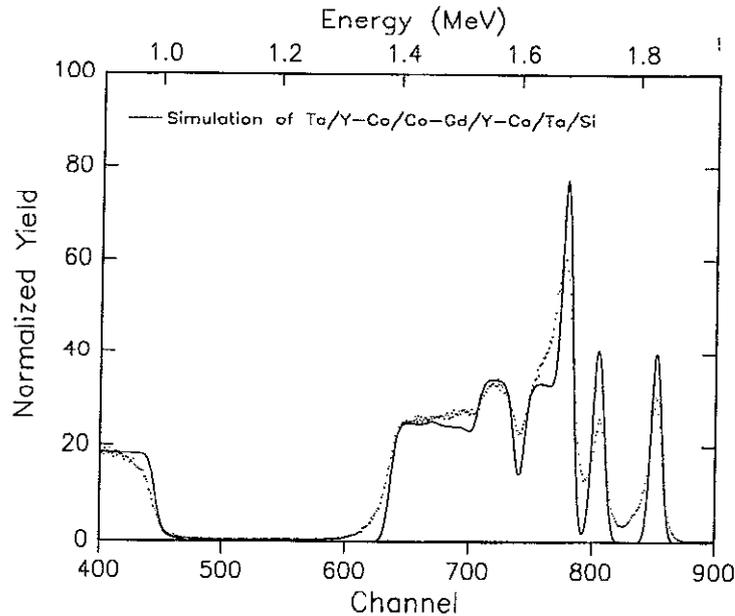


Figure I-B-7: Superposition de pics dus à différents éléments situés à différentes profondeurs de la couche

#### B.1.d. Champ d'application

En conclusion, la rétrodiffusion de particules chargées est une méthode quantitative, facile à mettre en oeuvre (lorsqu'on a accès à une telle expérience!), qui permet aussi l'analyse des couches qui ne se trouvent pas en surface, sans exiger un traitement particulier de la surface. Il suffit que l'échantillon présente une surface suffisamment plane.

Les points faibles sont l'insensibilité vis-à-vis des éléments légers due au bruit de fond à basse énergie, ce qui empêche de tirer des renseignements, par exemple sur l'oxydation de nos couches - information importante dans le contexte du couplage entre couches individuelles. La technique RBS est bien adaptée à l'analyse des alliages de terres rares et métaux de transition, qui ont dans le cas d'une couche simple pas trop épaisse des pics bien séparés en énergie, dans la partie haute énergie du spectre. Un inconvénient, surtout pour l'analyse de sandwichs contenant différentes terres rares, c'est la limitation de la résolution pour séparer des éléments de masses comparables, tels que le samarium et le gadolinium.

La résolution en épaisseur est limitée par la largeur des canaux d'environ 2 keV correspondant à 1-2 nm, ce qui n'est pas gênant pour la plupart de nos couches de l'ordre de 100 nm.

## B.2. Spectrométrie de masses d'ions secondaires

Chaque méthode d'analyse chimique a ses avantages et ses faiblesses, et la caractérisation idéale d'un échantillon nécessiterait les informations complémentaires, que l'on peut obtenir à l'aide de ces différentes expériences. Pour ce travail nous avons eu un accès facile à l'expérience de particules rétrodiffusées (RBS) décrite dans la section précédente. L'analyse d'un seul de nos échantillons par spectrométrie de masses d'ions secondaires (SIMS) au LETI, nous a permis de vérifier les informations obtenues par RBS sur les profils de concentration (figure I-B-10).

Pour une analyse par SIMS un échantillon est bombardé par des ions primaires énergétiques (de l'ordre du keV) et les atomes et molécules éjectés et chargés (ions secondaires) sont analysés par un spectromètre de masses (figure I-B-8). Le courant ionique est mesuré en fonction du temps de bombardement [Czanderna A.W., 1975; Chamberod, Hillairet, 1990]

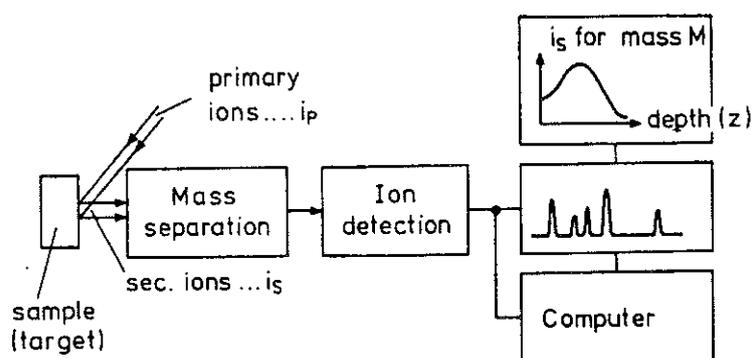


Figure I-B-8: Principe de la spectrométrie de masses d'ions secondaires [Werner H.W., 1978]

La concentration minimale détectable dépend de l'élément et de la matrice et se trouve typiquement entre 1 ppm et 1ppb. L'épaisseur de l'échantillon doit rester comprise entre 10 nm et 20-30  $\mu\text{m}$ , où la limite supérieure est définie par le taux d'érosion maximal ( $\approx 5\mu\text{m/h}$ ) conduisant à des durées d'analyse raisonnables.

Avec un taux de pulvérisation élevé, on obtient la distribution des éléments pour des profondeurs entre cinq nanomètres et quelques microns typiquement pour des durées entre vingt minutes et une heure.

Pour l'analyse du profil de concentration, la surface de l'échantillon est enlevée couche par couche par bombardement ionique: c'est donc une méthode destructive. Simultanément, le courant ionique est détecté pour un ou plusieurs éléments en fonction du temps de bombardement. Pour des taux d'érosion connus, la durée de bombardement est proportionnelle à la profondeur, le signal peut être converti en une concentration absolue par  $\text{cm}^3$ . La résolution dépend du profil de concentration dans l'échantillon et de facteurs instrumentaux, par exemple

la profondeur d'analyse, les processus de pulvérisation, la rugosité de surface avant et après bombardement, etc. Différents effets peuvent conduire à une déviation du profil mesuré par rapport au profil réel, par exemple la variation latérale du taux d'érosion ou la pulvérisation préférentielle (figure I-B-9)[Werner H.W., 1978].

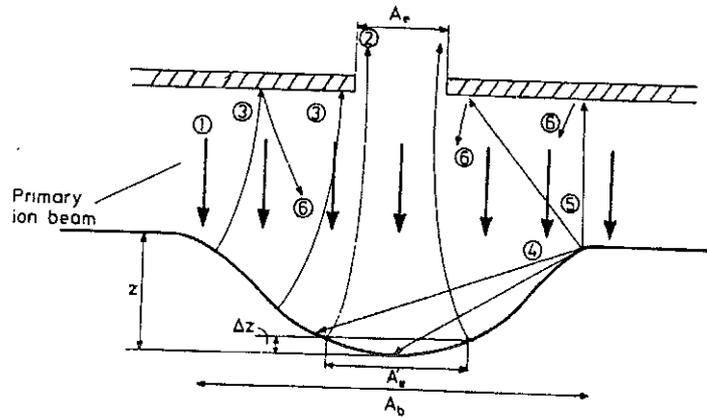


Figure I-B-9: Illustration de différents effets provoquant des distorsions par rapport à la relation idéale entre profil mesuré et profil réel ( 1: bombardement par ions primaires, 3: ions secondaires ne provenant pas de la région d'extraction)

La quantification est difficile, parce que la part d'atomes pulvérisés et ionisés (et donc détectés) dépend de l'environnement chimique de cet atome et du gaz de pulvérisation. Le SIMS est néanmoins considéré comme une méthode, qui dépasse la plupart des autres techniques analytiques en sensibilité [Chu, 1978].

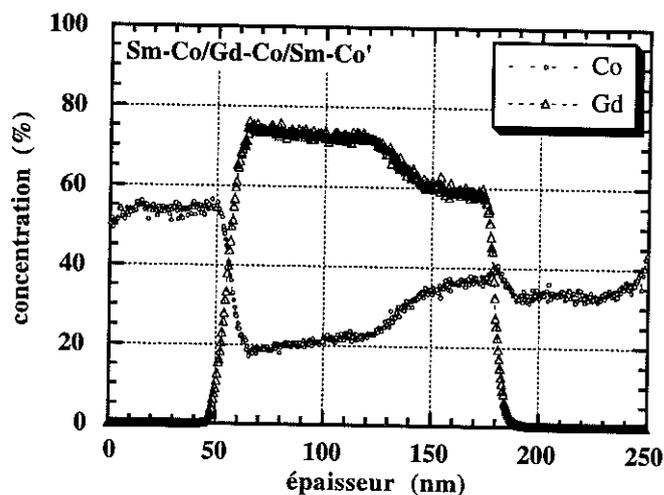


Figure I-B-10: Spectre de SIMS pour l'échantillon Si/Ta/(Sm-Co)/(Gd-Co)/(Sm-Co)/Ta. Sur la figure on reporte les signaux correspondants au gadolinium et au cobalt. (L'épaisseur est normée à l'aide des épaisseurs mesurées par RBS.)

L'échantillon analysé par les deux techniques est une tri-couche magnétique comprise entre deux couches protectrices de tantale: Si/Ta/(Sm-Co)/(Gd-Co)/(Sm-Co)'/Ta (tableau I-B-1). L'analyse SIMS confirme le décalage en composition de Gd-Co en fonction de la profondeur, qui est visible dans les spectres de la retrodiffusion ionique (figure I-B-10). Le spectre du SIMS montre, que la couche centrale contient un faible pourcentage de samarium, une information qu'il est impossible d'obtenir par RBS, dont la résolution ne permet pas de distinguer deux éléments de masses voisines.

| RBS<br>composition   | épaisseur<br>(nm) |
|----------------------|-------------------|
| SmCo <sub>4,1</sub>  | 58                |
| GdCo <sub>1,9</sub>  | 48                |
| GdCo <sub>1,25</sub> | 100               |
| SmCo <sub>8,2</sub>  | 46                |

Tableau I-B-1: Caractérisation de l'échantillon de Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co' mesuré par RBS et par SIMS

Le SIMS donne très bien la variation relative de la composition pour un élément donné en fonction de la profondeur alors que le RBS donne une meilleure valeur absolue mais moyennée sur l'épaisseur de la couche que l'on simule.

### B.3. Rayons X

Le caractère amorphe des échantillons a été vérifié par diffusion de rayons X à l'aide d'un diffractomètre numérique  $\theta$ - $2\theta$  utilisant la longueur d'onde  $K_{\alpha}$  du cuivre ( $\lambda_{Cu}=0,15405$  nm) ou du cobalt ( $\lambda_{Co}=0,17903$  nm) .

Les spectres ont été réalisés avec un temps de comptage de 30 s par point et un pas angulaire de  $0,1^{\circ}$ .

### B.4. Mesure d'épaisseur

Pour mesurer l'épaisseur totale du dépôt à l'extérieur de la chambre, le laboratoire dispose d'un dispositif, qui est commercialisé sous le nom d'alpha-step et qui est basé sur une méthode mécanique. Une aiguille très sensible tâte la surface de l'échantillon et chaque

changement de hauteur de l'aiguille est amplifié et enregistré dans une gamme entre 1 nm et 100  $\mu\text{m}$ . L'erreur due à la courbure de l'aiguille de rayon 5  $\mu\text{m}$  est négligeable. Une éventuelle dérive causée par un échantillon non perpendiculaire à l'aiguille est corrigée automatiquement. Au cours de cette procédure on s'intéresse surtout au changement de hauteur entre dépôt et substrat seul. Les inconvénients de cette méthode consistent en la nécessité d'une marche abrupte et très propre entre dépôt et substrat et le fait qu'elle ne donne accès qu'à l'épaisseur totale du dépôt, qui peut être constitué de plusieurs couches superposées. Pour cette raison cette méthode est avant tout employée pour l'étalonnage des temps de pulvérisation et des dispositifs à quartz à l'aide de couches très épaisses.

### **B.5. Microscope électronique à balayage**

La composition chimique des cibles et d'une partie des couches déposées a été vérifiée au moyen d'un microscope électronique à balayage et le taux d'impuretés a été déterminé.

### **B.6. Recuit**

Les échantillons, pour lesquels il n'a pas été possible d'induire une direction de facile aimantation in situ par application d'un champ magnétique pendant le dépôt, ont été recuits. Cette procédure a en outre tendance à éliminer des défauts structuraux, qui peuvent gêner le déplacement des parois, et abaisser les champs coercitifs. La température de recuit doit rester en dessous de la température de recristallisation du matériau. La montée en température s'effectue avec un taux de chauffage de 0,03°/s jusqu'à une stabilisation entre 150°C et 400°C. Pour éviter des contaminations graves il est indispensable d'effectuer le recuit dans un vide secondaire ( $10^{-4}$  Pa). L'application d'un champ magnétique important (2,3 T) pendant cette opération induit un axe de facile aimantation parallèle à la direction du champ.

Le four consiste en un cylindre pompé de longueur 0,25 m et de diamètre 5 cm, qui est conçu pour être placé entre les deux pôles ( $\varnothing$  10 cm) d'un électro-aimant, et connecté à une pompe à vide. A l'extrémité opposée sont branchés un chauffage électrique et une sonde de température ( thermocouple du type thermocoax). L'échantillon, qui se trouve dans une enveloppe en tantale, est attaché entre deux résistances chauffantes au milieu du cylindre.

Pour obtenir un meilleur vide au niveau de l'échantillon il serait souhaitable de diminuer la distance entre la pompe et le four et de remplacer la pompe à diffusion par une pompe turbo moléculaire, située en dehors du champ magnétique. Ceci n'a pas été possible parce que le champ ne s'atténue pas assez rapidement avec la distance, vu qu'il reste de l'ordre de 0,015T à une distance de 80 cm du centre des surfaces polaires.

## I.C. Caractérisation magnétique

### C.1. Mesures d'aimantation

Pour mesurer le moment magnétique total,  $m$ , d'un échantillon en fonction du champ magnétique appliqué et de la température nous avons au cours de ce travail, utilisé trois appareillages différents, selon les exigences spécifiques des expériences à effectuer. Les trois méthodes sont basées sur la mesure de la variation de flux  $\Delta\phi$  proportionnel à  $m$ , provoquée par le déplacement de l'échantillon.

#### C.1.a. Magnétomètre à squid

Dans cet appareillage, la force électromotrice résultant de la variation de flux est induite, entre les bornes d'un jeu de deux bobines connectées en série et enroulées en sens inverse, par déplacement de l'échantillon entre les deux centres. A la différence d'une méthode d'extraction classique, où le moment magnétique est obtenu par intégration de la f.e.m.  $e = -\Delta\phi/\Delta t$ , le dispositif de détection est basé sur un anneau en matériau supraconducteur (Nb) fermé par une jonction Josephson (figure I-C-1).

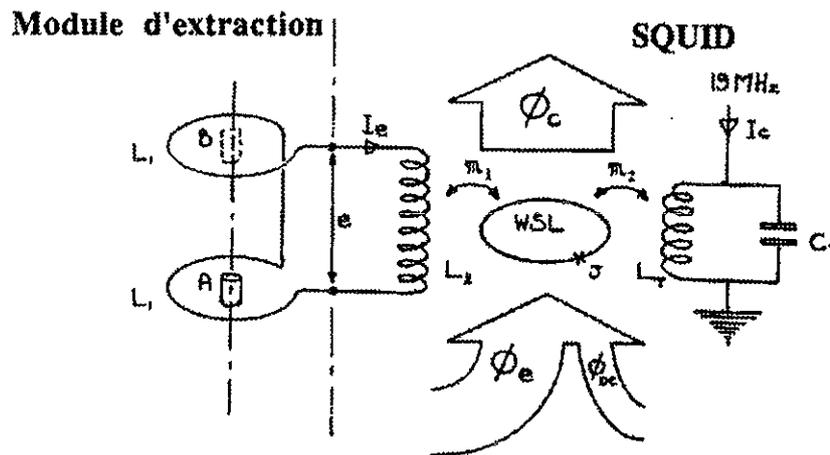


Figure I-C-1: Dispositif du magnétomètre à SQUID [Cugat O, 1991]

Celui-ci est d'une part couplé à une inductance  $L_2$  en série avec les bobines de détection en série-opposition ( $M_1$ ), d'autre part à un circuit oscillant de haute fréquence ( $M_2$ ). La mesure de la variation de flux, à l'origine du courant  $I_e$  dans l'inductance  $L_2$ , est ramenée à la détection d'un contre-courant  $I_c$  injecté afin de maintenir constant le flux dans l'anneau

supraconducteur. Cette méthode est très sensible et fournit dans le cas idéal une sensibilité de l'ordre  $10^{-10}$  Am<sup>2</sup> en champ faible.

Un anticryostat à flux d'hélium gazeux permet de faire varier la température de mesure entre 1,5 Kelvin et 300 Kelvin.

Une bobine supraconductrice, en fil de Nb-Ti, de longueur 260 mm et de diamètre intérieur 50 mm, refroidie dans un bain d'hélium liquide, fournit des champs magnétiques entre  $B=-6$  Tesla et  $B=+6$  Tesla, avec un pas minimal de  $\Delta B=1,5$  mT et une homogénéité de l'ordre de  $10^{-4}$  sur une longueur de 40 mm et  $10^{-3}$  sur une longueur de 80 mm.

Les échantillons de surface inférieure à  $(6 \times 7) \text{ mm}^2$  sont fixés sur des porte-échantillons en plexiglas.

L'expérience est pilotée par ordinateur. Au départ d'une expérience, les valeurs de champ magnétique à appliquer et de températures de mesures sont entrées dans un fichier et établies automatiquement au cours de l'expérience. La valeur du moment magnétique mesurée est enregistrée dans un fichier de résultats avec celles de champ et de température.

Le défaut le plus important de cet appareillage, surtout lors de l'enregistrement de cycles d'hystérésis complets avec la plus grande densité de points possible pour une définition exacte des transitions, est la durée de mesure extrêmement longue (dix minutes par point pour des signaux moyens de l'ordre de  $10^{-7}$  Am<sup>2</sup>).

### C.1.b. Magnétomètre à échantillon vibrant (VSM)

Dans le magnétomètre à échantillon vibrant, un porte-échantillon rigide traverse le centre de deux bobines de détection et l'échantillon à mesurer se trouve au centre entre les deux bobines dans la zone de gradient de champ maximum (figure I-C-2). La variation de flux est induite par des oscillations verticales de hauteur 1,5 mm et à une fréquence de 55 Hz. Le signal alternatif induit par les oscillations de l'échantillon aimanté est analysé à l'aide d'un amplificateur à détection synchrone, où la fréquence de vibration sert de signal de référence. Une bobine supraconductrice fournit un champ magnétique appliqué  $-8 \text{ T} < B_0 < 8 \text{ T}$  orienté parallèlement à l'amplitude d'oscillation. La vitesse maximale de balayage du champ appliqué est de 0,02 T/s. Comparé au magnétomètre squid (paragraphe C.1.a), l'acquisition d'un cycle d'hystérésis se fait beaucoup plus rapidement (de l'ordre d'une heure plutôt qu'un jour) et avec une précision jusqu'à  $10^{-5}$  Am<sup>2</sup>. L'échantillon se trouve dans un cryostat à flux d'hélium et peut être thermalisé à une température entre 5 K et 300 K.

L'expérience est pilotée par ordinateur. Après la mise en place de l'échantillon, les consignes de température et de champ appliqué et les vitesses de balayage sont à entrer dans un fichier. L'établissement et l'enregistrement de ces valeurs au cours de l'expérience se fait

automatiquement, ainsi que l'enregistrement des moments magnétiques mesurés correspondants.

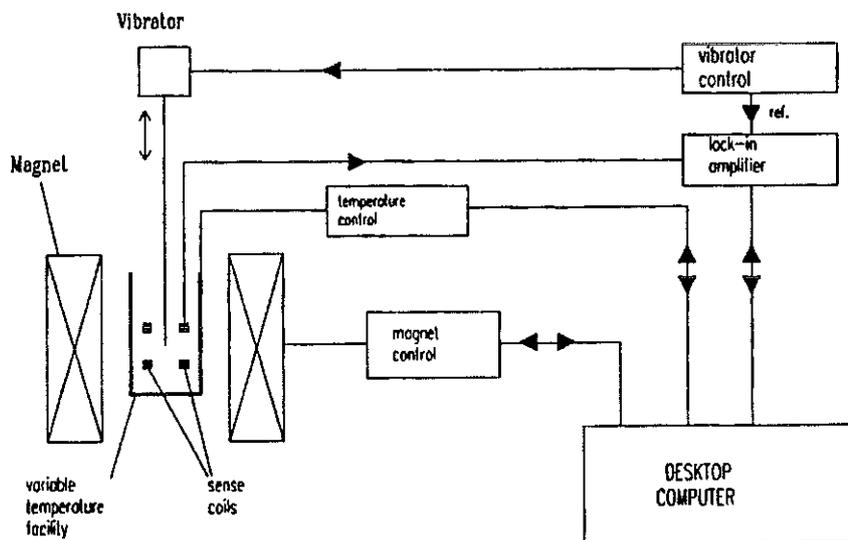


Figure I-C-2: Schéma du magnétomètre à échantillon vibrant [Oxford Instr., 1993]

### C.1.c. Mesures d'aimantation et de susceptibilité en champ faible

Pour ce travail des mesures ont été effectuées avec deux magnétomètres mis à notre disposition par J.J. Préjean (Centre de Recherche sur les Très Basses Températures), l'un adapté à des mesures à 4,2 K, l'autre pour des mesures à température ambiante. Ces appareils sont basés sur la méthode d'extraction classique mentionnée ci-dessus et sont conçus pour des mesures précises en champ faible avec des pas de champ d'un centième de mT. Ils servent à la fois pour des mesures d'aimantation dc et de susceptibilité à basse fréquence.

L'échantillon aimanté est déplacé entre les centres d'un couple de bobines en série-opposition, de façon que le flux total traversant le paire de bobines soit nul. La force électromotrice  $e(t)$  induite par le déplacement de l'échantillon est très faible et vaut au maximum quelques  $\mu\text{V}$ . Puisqu'il est très difficile de construire un amplificateur électronique classique sans bruit et sans effets thermoélectriques, le signal est injecté dans un amplificateur galvanométrique de type amplispot ayant un gain de  $10^6$ - $10^7$ . Un circuit de contre-réaction permet l'utilisation de l'amplificateur en détecteur de zéro. Ce signal d'opposition donne la force électromotrice amplifiée. Un convertisseur tension-fréquence transforme le signal dc en un signal rectangulaire (0V et +5V), dont la fréquence est proportionnelle à la tension injectée (entre 1 Hz et 100 kHz). Un ordinateur du type Apple II GS compte le nombre de pics de

tension 5V, qui arrivent pendant la durée d'une extraction. Le signal est automatiquement intégré par ce procédé.

Un micro-vérin pneumatique attaché latéralement laisse libre l'axe du calorimètre. L'air comprimé injecté au vérin est commandé par l'ordinateur. Le processus complet d'extraction est donc automatisé.

Quatre extractions sont effectuées pour chaque valeur de champ appliqué. Le programme de traitement de données élimine les points aberrants et calcule la valeur moyenne des points restants.

Une bobine supra-conductrice en Nb-Ti, alimentée par une source de courant maximal 70 A, fournit des champs jusqu'à 8 T, qui sont stabilisés avec une sonde à effet Hall. Des alimentations en courant (100 mA/1A) avec un bruit et une stabilité meilleure que  $\Delta I/I \sim 10^{-5}$  servent pour l'application de champs faibles.

L'ordinateur commande d'abord la source de courant, qui alimente la bobine de champ statique. Ensuite il déclenche le vérin, qui est responsable du mouvement du porte-échantillon et intègre le signal électrique à la sortie du convertisseur tension-fréquence.

Pour éviter des signaux parasites, le porte-échantillon est usiné dans un seul bloc d'araldite.

Pour les mesures à 4,2 K, l'échantillon est plongé dans un bain d'hélium. Un sas permet le changement d'échantillon à froid.

Pour les mesures de susceptibilité, un champ alternatif appliqué provoque une variation d'aimantation. Pour cela, un courant alternatif d'excitation issu d'une source de courant pilotée par un générateur basse fréquence (22 Hz, 10 V) est injecté dans une bobine primaire. La tension induite dans le couple de bobines secondaires est proportionnelle au produit de la susceptibilité par la dérivée du champ alternatif appliqué. Puisque les deux parties de la bobine secondaire ne sont jamais exactement identiques, il existe un signal à vide, qui peut être très supérieur au signal correspondant à l'échantillon  $\phi_{ech} = NSM\mu_0$ , d'où la nécessité de créer un signal de compensation. Une tension, somme de deux tensions ajustables (l'une en quadrature, l'autre en phase avec le courant injecté), est opposée au signal des bobines de mesure. L'ensemble est amplifié, d'abord par un transformateur, ensuite par un amplificateur (à bas niveau/bruit, avec préfiltrage en fréquence). La sortie de l'amplificateur est connectée à une détection synchrone, qui est utilisée en détecteur de zéro. Pour une mesure absolue de la susceptibilité il est nécessaire de déplacer l'échantillon d'une bobine de mesure à l'autre. Ce procédé permet la soustraction du signal à vide par soustraction du signal + du signal - [Martinez J.C., 1991].

## C.2. Mesure d'effets magnéto-optiques

Les effets magnéto-optiques dans les solides traduisent l'influence d'un champ magnétique appliqué ou de l'aimantation sur la phase, l'état de polarisation et l'intensité d'un faisceau lumineux incident. L'origine est l'interaction entre le champ électrique du rayonnement avec les charges électriques des électrons, dont la distribution dans la matière est modifiée par le champ magnétique. A travers les interactions spin-orbite dans les solides, les dipôles magnétiques liés aux spins des électrons sont couplés aux transitions dipolaires électriques induites par la lumière incidente. Ceci est la base physique des effets magnéto-optiques dans des matériaux ferromagnétiques.

Selon le montage utilisé on distingue les effets Faraday et Voigt en transmission, et les différents effets Kerr en réflexion. Pour ces derniers, une onde polarisée dans le plan et réfléchi par un échantillon ferromagnétique est polarisée elliptiquement avec une légère rotation de l'axe principal par rapport à l'orientation de polarisation initiale. Les composantes de la rotation et de l'ellipticité, qui sont des fonctions linéaires de l'aimantation de l'échantillon, sont dénommées effets Kerr magnéto-optiques. Ils sont proportionnels à l'intensité du couplage spin-orbite et à la polarisation des spins électroniques. Pour cette raison, les effets Kerr magnéto-optiques sont en premier lieu sensibles aux électrons "magnétiques".

Macroscopiquement, les effets Kerr magnéto-optiques sont décrits par les éléments non-diagonaux du tenseur de conductivité optique, qui rend compte des réponses d'un matériau à l'application d'un champ électromagnétique. Des expressions générales pour la contribution magnétique à la conductivité des solides ont été déduites, qui tiennent compte à la fois des effets de spin-orbite, mais aussi des effets, qui sont liés aux interactions directes entre électrons et champ magnétique appliqué.

En utilisant des arguments de symétrie généraux, on peut montrer que pour un solide de symétrie cubique, aimanté le long de l'axe  $z$ , le tenseur de conductivité prend la forme

$$\vec{\sigma}(\vec{M}) = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} & 0 \\ -\sigma_{xy} & \sigma_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{xx} \end{pmatrix} \quad (\text{I.C.1})$$

Le cas général, valable aussi pour la symétrie hexagonale dans les métaux de terres rares, exige un tenseur plus compliqué, mais souvent l'équation (I.C.1) convient également dans le cas d'échantillons polycristallins.

Pour les matériaux ferromagnétiques, les éléments  $\sigma_{xy}$  non-diagonaux sont des fonctions linéaires de l'aimantation et représentent la contribution de l'effet Kerr magnéto-optique à  $\sigma$ . Les parties dispersives des éléments diagonaux et non-diagonaux de  $\sigma$  sont  $\text{im}[\sigma_{xx}]$  et  $\text{re}[\sigma_{xy}]$ . La partie réelle des éléments diagonaux représente la contribution à l'absorption optique

normale et porte toujours un signe positif. La partie imaginaire des éléments non-diagonaux représente la contribution de l'effet Kerr à l'absorption et peut-être positive ou négative, puisqu'elle correspond à la différence d'absorption de la lumière pour des polarisations circulaires gauche et droite. Le signe de  $\text{im}[\sigma_{xy}(\omega)]$  est directement lié à la polarisation des spins électroniques dans les états qui participent à l'absorption magnéto-optique.

Du point de vue microscopique les spectres optiques et magnéto-optiques des métaux contiennent des contributions d'effets intrabande et interbande - selon la longueur d'onde de la lumière utilisée et les propriétés des métaux en question. La contribution intrabande résulte de la relaxation  $\tau$  vers l'état fondamental des électrons excités par le champ électrique et correspond au modèle classique de Drude pour la conductivité. Dans le cas limite où la fréquence de la lumière incidente est beaucoup plus grande que  $1/\tau$ , les éléments non-diagonaux du tenseur de conductivité, qui décrivent les effets magnéto-optiques, sont définis par

$$\begin{aligned} \text{re}[\sigma_{xy}(\omega)] &= -\epsilon_0 \omega_p^2 \langle \sigma_z \rangle \frac{|P'_0|}{e v_0} \frac{1}{(\omega \tau)^2} \\ \text{im}[\sigma_{xy}(\omega)] &= \epsilon_0 \omega_p^2 \langle \sigma_z \rangle \frac{|P'_0|}{e v_0} \frac{1}{(\omega \tau)} \end{aligned} \quad (\text{I.C.2})$$

où  $\omega_p = [ne^2/m^* \epsilon_0]^{1/2}$  ( $e$ : charge de l'électron,  $n$ : nombre total d'électrons,  $m^*$ : masse effective des électrons de conduction).  $\langle \sigma_z \rangle = (n_{\uparrow} - n_{\downarrow}) / (n_{\uparrow} + n_{\downarrow}) = \Delta n / n$  décrit la fraction des 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'ondes des électrons,  $v_0$  la vitesse de Fermi [J.L.Erskine, 1973].

Selon l'orientation de l'aimantation par rapport au plan d'incidence et à la surface de l'échantillon on distingue trois effets Kerr différents.

L'effet Kerr polaire détecte la composante de l'aimantation perpendiculaire à la surface de l'échantillon. Pour la lumière polarisée linéairement en incidence normale, cet effet consiste en une rotation du plan de polarisation de la lumière réfléchie par rapport au faisceau incident. La lumière réfléchie est polarisée elliptiquement. Pour une longueur d'onde, une température et un angle d'incidence donnés, elle peut être caractérisée par un nombre complexe  $\phi = \theta_K + i \epsilon_K$ , avec une contribution magnétique  $\phi'(M) = \theta'_K(M) + i \epsilon'_K(M)$ , où  $\phi'(M)$  est une fonction linéaire de l'aimantation. L'angle de rotation Kerr  $\theta_K$  correspond à la rotation de l'axe principal de l'ellipse par rapport aux plans de polarisations antérieurs,  $\epsilon_K$  est l'ellipticité.

L'effet Kerr longitudinal mesure la composante de l'aimantation parallèle à la surface de l'échantillon et parallèle au plan d'incidence (figure I-C-3).

La composante de l'aimantation orientée parallèlement à la surface de l'échantillon, mais perpendiculairement au plan d'incidence est détectée par l'effet Kerr transversal (figure I-C-4).

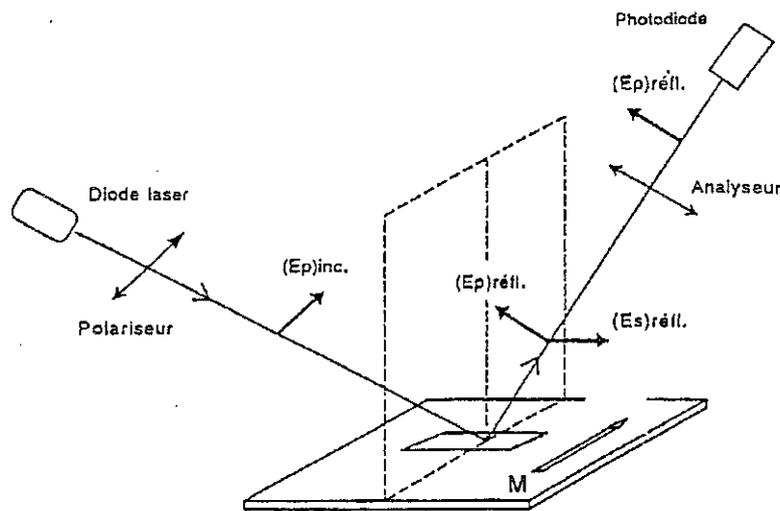


Figure I-C-3: Géométrie de l'effet Kerr longitudinal

La lumière est polarisée parallèlement ( $E_{//}$ ) ou perpendiculairement ( $E_{\perp}$ ) au plan d'incidence. L'absorption n'est pas la même pour ces deux modes et entraîne une différence de réflectivité. Au déphasage dû à la réflexion métallique se rajoute un décalage d'origine magnétique entre les deux modes. Les conditions limites sont données par la continuité du champ magnétique  $H_{\perp}$  et du champ électrique  $E_{//}$  à la surface. Les champs électriques correspondant aux faisceaux incidents et réfléchis sont liés par les coefficients de Fresnel.

$$r_{\perp} = \frac{\cos\theta_0 - n_0}{\cos\theta_0 + n_0}$$

$$r_{//} = \frac{n_0 \cos\theta_0 - 1}{n_0 \cos\theta_0 + 1} \left\{ 1 + \frac{\epsilon_{xy} \sin 2\theta_0 / n^2}{n_0^2 \cos^2 \theta_0 - 1} \right\} \quad (\text{I.C.3})$$

$\theta_0$  est l'angle d'incidence. Dans cette approximation, la composante  $r_{\perp}$  ne dépend pas de l'aimantation.

La composante parallèle  $r_{//}$  dépend de l'aimantation au travers la constante diélectrique  $\epsilon_{xy}$ . L'effet Kerr transverse reflète le changement de cette composante de la réflectivité en fonction de l'aimantation. Le facteur  $\sin 2\theta_0$  montre, que l'incidence de la lumière doit être oblique. L'effet Kerr transverse peut être détecté en raison du changement de réflectivité suite au retournement de la composante de l'aimantation perpendiculaire au plan d'incidence, dont seule la composante polarisée parallèlement au plan d'incidence est concernée. Soit  $R_{//}$  le pouvoir réflecteur correspondant. Le changement  $\Delta R_{//}/R_{//}$  n'est pas proportionnel à l'aimantation, mais

suit les mêmes variations. On mesure le changement d'intensité lié à la modification de la réflectivité, qui elle dépend de l'aimantation [Cugat O., 1991; Hecht, 1987]

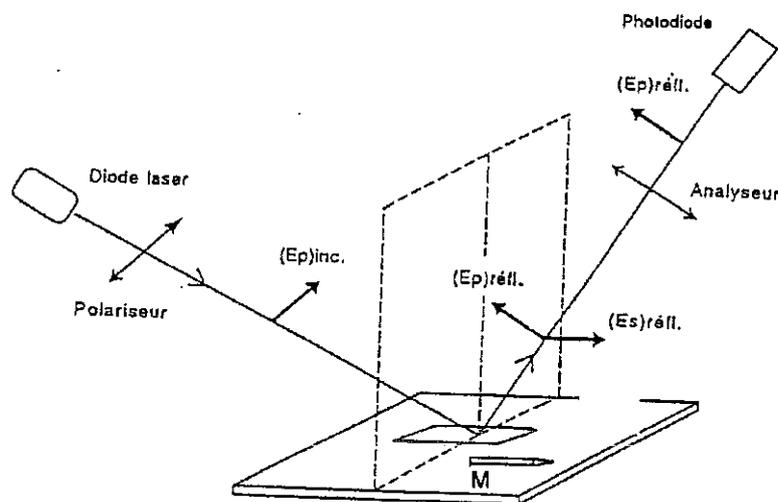


Figure I-C-4: Géométrie de l'effet Kerr transverse

L'échantillon est placé entre les pôles d'un électro-aimant, dont le champ est balayé entre  $-0,3T$  et  $0,3T$  et qui est alimenté par une source de courant bipolaire. Le champ magnétique est mesuré à l'aide d'une sonde à effet Hall, qui se trouve au niveau de l'échantillon. La lumière incidente monochromatique ( $\lambda=0,673$  nm) issue d'une diode Laser avec modulation de l'amplitude est polarisée avant d'arriver sur l'échantillon sous un angle d'environ  $60^\circ$ . Le faisceau réfléchi par l'échantillon passe par un analyseur, qui permet la sélection de la composante  $(E_{\perp})_{réfl}$  du faisceau réfléchi et arrive sur une photodiode, qui convertit l'intensité lumineuse en un signal électrique mesuré par un amplificateur à détection synchrone. La référence en fréquence de la détection synchrone est donnée par la modulation du signal de la diode Laser. Lors d'un cycle en champ, la mesure de  $\Delta R/R$  présente un cycle d'hystérésis, qui reflète les propriétés d'un cycle d'hystérésis  $M(H)$  classique. Le changement du pouvoir réflecteur  $\Delta R$  en fonction du champ appliqué est une image des courbes d'aimantation  $M(H)$ . Le montage permet de tourner très facilement l'échantillon autour d'un axe perpendiculaire à sa surface. Par changement de la position de l'échantillon par rapport au champ magnétique, une éventuelle anisotropie peut-être observée.

### C.3. Réflectométrie de neutrons polarisés avec analyse de polarisation

La réflexion spéculaire de neutrons polarisés avec analyse de polarisation est une méthode non-destructive pour étudier la structure chimique et magnétique de surfaces et interfaces. On mesure la réflexion de neutrons en fonction de l'angle d'incidence ou en fonction de la longueur d'onde. Le profil d'aimantation à l'intérieur d'une seule couche est difficile à étudier en raison de la faiblesse des signaux, néanmoins, en jouant sur l'orientation des neutrons par rapport à la surface, on peut espérer obtenir des valeurs des moments magnétiques dans la couche [Fermon C., Miramond C., 1994]. Nous nous sommes intéressés à cette technique, réalisée au laboratoire Léon Brillouin par C. Fermon du DRECAM/SPEC C.E.A. à Saclay, pour comparer des états mono-domaines et des états caractérisés par l'existence d'une paroi dans nos échantillons (chapitre III).

#### C.3.a. Principe

Lors de la réflexion de neutrons froids on observe des phénomènes analogues à ceux rencontrés en optique classique (réflexion, diffraction, interférence). L'interaction de neutrons lents avec la matière peut être décrite à l'aide d'un indice de réfraction, qui correspond à la même description mathématique que pour les rayons X. Cet indice de réfraction dépend surtout de l'intensité de diffusion nucléaire.

La réflexion spéculaire est la technique naturelle d'étude des profils de concentration au voisinage d'une surface. Comme les rayons X, mais avec des avantages et des inconvénients différents, les neutrons non-polarisés donnent accès au profil de concentration chimique en fonction de l'épaisseur des couches ainsi que des informations sur la rugosité des surfaces. A cause de l'interaction des neutrons avec la couche électronique, les matériaux magnétiques possèdent un indice de réfraction  $n^+$  ou  $n^-$ , dépendant de l'orientation du spin du neutron, qui fait de la méthode une sonde pour le magnétisme de surface avec une résolution spatiale de l'ordre du nanomètre. La réflexion de neutrons polarisés donne alors en plus le profil de concentration magnétique au voisinage de la surface à comparer au profil chimique.

Un faisceau de neutrons froids de longueur d'onde  $\lambda$  est envoyé sur la surface de l'échantillon sous un angle d'incidence  $\theta$  et réfléchi partiellement. Le processus de réflexion est complètement décrit par la composante du vecteur d'onde du neutron  $k_z$  perpendiculaire à la surface, qui est défini dans le vide par  $k_z = [2\pi \sin(\theta)]/\lambda$ . La réflexion dépend de l'évolution de l'indice de réfraction  $n(z)$  perpendiculairement à la surface.

Pour une plaquette magnétique, non-absorbante, demi-infinie, qui est aimantée dans le plan de la surface réfléchissante, cet indice de réfraction, qui dépend à la fois de la densité nucléaire et de la densité magnétique, est donné par l'expression :

$$n_{\pm} = 1 - \lambda^2 N [b_n \pm C \mu] / 2\pi \quad (\text{I.C.4})$$

où  $C=0,265 \times 10^{-5} \text{ nm}/\mu\text{B}$  est une constante,  $N$  le nombre d'atomes diffuseurs par unité de volume,  $\mu$  le moment magnétique par atome,  $b_n$  la longueur de diffusion nucléaire cohérente et  $C \mu$  la longueur de diffusion magnétique cohérente. Le coefficient  $b_n$  dépend des différents isotopes et éléments et peut être positif ou négatif. Cette propriété permet de distinguer deux éléments voisins comme le samarium et le gadolinium.

Le signe dans l'équation pour l'indice de réfraction en fonction des longueurs de diffusion cohérentes dépend de l'orientation parallèle (+) ou antiparallèle (-) du moment du neutron par rapport au champ magnétique appliqué. L'équation montre, que l'indice de réfraction dépend fortement de la longueur d'onde et dans le cas d'un matériau magnétique, du spin du neutron. Cette propriété est exploitée lors de toutes les études optiques avec des neutrons.

Puisque  $b_n$  peut avoir des signes différents,  $n_{\pm}$  peut être supérieur ou inférieur à un. Pour  $n_{\pm} < 1$  et un vecteur d'onde inférieur à une valeur critique,  $k_z < k_{c\pm}$ , avec  $k_{c\pm} \approx 2 (\pi N [b_n \pm C \mu])^{1/2}$  il peut y avoir réflexion totale des neutrons.

Lors de leur propagation dans un matériau, l'onde neutronique se comporte comme une onde électromagnétique dans l'état de polarisation S. Les coefficients de réflexion de spin pour une telle plaquette magnétique demi-infinie avec aimantation constante, sont décrits par les lois de Fresnel:

$$R_{\pm}(\theta/\lambda) = \{ \sin\theta - [n_{\pm} - \cos^2\theta]^{1/2} \} / \{ \sin\theta + [n_{\pm} - \cos^2\theta]^{1/2} \}. \quad (\text{I.C.5})$$

Pour la réflexion de neutrons polarisés et non-polarisés à petits angles, la réflectivité mesurée en fonction de l'angle d'incidence  $\theta$  et de la longueur d'onde  $\lambda$  des neutrons,  $R(\theta, \lambda)$ , donne accès à la composition chimique de surfaces et interfaces.

En général, les échantillons étudiés consistent en un empilement de plusieurs couches et les profils de réflexion d'une telle structure peuvent être calculés à l'aide de la méthode de la matrice optique pour la réflexion de la lumière polarisée perpendiculairement au plan de réflexion [Born M., Wolf E., 1970].

Pour les matériaux magnétiques, le calcul de réflectivités  $R^+$  et  $R^-$  ou du rapport de flipping  $F(\theta/\lambda) = R^+/R^-$  en fonction de  $q = 4\pi \sin\theta/\lambda$  permet de déterminer le profil de moments magnétiques  $\mu(z)$  dans l'échantillon [Mâaza M., 1993; Penfold J., Thomas R.K., 1990].

### C.3.b. Dispositif expérimental

Les expériences dans le cadre de ce travail ont été effectuées en collaboration avec C. Fermon sur un nouveau spectromètre installé sur le réacteur Orphée au laboratoire Léon Brillouin à Saclay et spécialement destiné aux études des couches minces et multicouches.

Le dispositif est adapté à la mesure de la réflexion d'un faisceau de neutrons monochromatique en fonction de l'angle d'incidence  $\theta$ , avec une grande résolution de  $q_{\min}=2 \times 10^{-3} \text{ \AA}^{-1}$  ( $q=4\pi \sin\theta/\lambda$ ) et permettant des expériences jusqu'à un angle de  $140^\circ$  avec  $\Delta\theta = 0,001^\circ$ .

Le faisceau de neutrons incident est polarisé à l'aide d'un miroir polariseur. Un deuxième miroir, placé sur le chemin du faisceau réfléchi, permet de détecter l'état de polarisation du faisceau réfléchi. Des bobines de champ placées après chaque polariseur permettent la sélection d'un état de spin donné pour le faisceau incident et pour le faisceau réfléchi. Trois profils de réflectivité peuvent donc être mesurés:  $R^{++}$ ,  $R^{--}$  et  $R^{+-}$ .  $R^{++}$  ( $R^{--}$ ) correspond à un neutron polarisé  $+(-)$ , qui garde son état de spin après réflexion.  $R^{+-}$  correspond à un neutron  $+(-)$ , qui subit un retournement de spin lors de la réflexion.

Pendant les mesures, un faible champ magnétique est appliqué pour définir un axe de quantification pour les neutrons. Pour nos mesures, le champ a toujours été appliqué dans le plan de l'échantillon. Dans ce cas, les réflectivités  $R^{++}$  et  $R^{--}$  sont déterminées par diffusion nucléaire et diffusion magnétique par la projection de l'aimantation sur l'axe de quantification. La composante le long de  $q$  (perpendiculaire à la surface de la couche) ne contribue pas au processus de réflexion. Les réflectivités  $R^{++}(q)$ ,  $R^{--}(q)$  et  $R^{+-}(q)$  ont été mesurées en variant l'angle d'incidence du faisceau incident sur l'échantillon pour une longueur d'onde fixe  $\lambda=0,414 \text{ nm}$  à des températures  $T=80 \text{ K}$ ,  $300 \text{ K}$ .

### C.3.c. Traitement des données

Qualitativement, l'écart entre les signaux  $R^{++}$  et  $R^{--}$  est proportionnel à la composante de l'aimantation parallèle à l'axe de quantification. La présence d'un signal "spin flip"  $R^{+-}$  notable indique une composante de l'aimantation perpendiculaire à cette direction.

Pour interpréter les spectres de réflectivité afin d'obtenir des informations quantitatives sur la structure chimique et magnétique de la couche mince étudiée, des spectres théoriques sont calculés et comparés aux spectres expérimentaux. Comme paramètres de départ pour la longueur de diffusion nucléaire cohérente  $b_n$  nous avons utilisé les valeurs usuelles des matériaux massifs et pour les épaisseurs les résultats de RBS. La procédure d'ajustement consiste à faire varier le module et l'orientation des moments magnétiques dans la couche jusqu'à obtenir un bon accord avec les données expérimentales.

Le programme tient aussi compte de l'absorption, qui est importante pour des éléments comme le gadolinium et le samarium.

## CHAPITRE II: Couches minces d'alliages amorphes terres rares - cobalt

|  |    |
|--|----|
| II.A. Alliages intermétalliques terre rare - cobalt.....                 | 59 |
| A.1.a. Moments magnétiques.....  | 59 |
| i. Terres rares.....   | 59 |
| ii. Métaux 3d .....  | 59 |
| iii. Alliages terres rares - métaux de transition.....                   | 60 |
| A.1.b. Interactions d'échange .....                                      | 61 |
| A.1.c. Couplage entre moments 4f et moments 3d.....                      | 61 |
| A.1.d. Anisotropie .....   | 62 |
| A.2. Alliages terre rare - cobalt amorphes.....                          | 63 |
| A.2.a. Structure .....   | 63 |
| A.2.b Propriétés magnétiques .....                                       | 64 |
| i. Interactions d'échange .....  | 65 |
| ii. Anisotropie .....  | 65 |
| iii. Structures de composés binaires .....                               | 66 |
| II.B. Résultats expérimentaux sur les couches simples .....              | 68 |
| B.1. Couches minces amorphes d'Y-Co.....                                 | 68 |
| B.2. Couches minces amorphes de Gd-Co .....                              | 69 |
| B.2.a. Gd-Co déposé par pulvérisation cathodique triode .....            | 69 |
| B.2.b. Gd-Co déposé par pulvérisation cathodique magnétron .....         | 71 |
| B.3. Couches minces amorphes de Sm-Co.....                               | 72 |
| B.4. Couches minces amorphes de Tb-Co.....                               | 77 |
| B.5. Couches minces de Co et de $\text{Co}_{0,95}\text{Zr}_{0,05}$ ..... | 79 |
| Conclusion du chapitre II.....   | 82 |



## CHAPITRE II

### Couches minces d'alliages amorphes terres rares - cobalt

Dans ce chapitre, on étudie les propriétés magnétiques des couches simples entrant dans la composition des systèmes sandwich, que l'on va étudier par la suite. On présente d'abord quelques rappels concernant les propriétés magnétiques des alliages intermétalliques terre rare - cobalt.

#### II.A. Alliages intermétalliques terre rare - cobalt

Dans les alliages intermétalliques terres rares (TR) - métaux de transition de la série 3d (M) on attend une association des propriétés du magnétisme 3d (fortes interactions magnétiques, faible anisotropie) et des propriétés du magnétisme 4f (interactions magnétiques moyennes, forte anisotropie).

##### A.1.a. Moments magnétiques

###### *i. Terres rares*

Dans beaucoup d'alliages, le moment magnétique des atomes de terre rare est bien défini. En première approximation les atomes de terre rare se comportent même dans un alliage intermétallique comme des ions trivalents.

A cause de la faible extension spatiale des fonctions d'onde 4f des lanthanides, les moments magnétiques sont bien localisés et fortement écrantés du champ cristallin par les électrons des couches externes. En conséquence, le moment magnétique des terres rares est très proche de celui déterminé à partir des règles de Hund.

###### *ii. Métaux 3d*

Dans les alliages intermétalliques 3d-4f, le moment du métal de transition 3d peut varier selon l'élément 4f associé et la stoechiométrie. Les meilleurs exemples pour cette variation sont observés pour le cobalt dans les composés TR-Co<sub>2</sub> et pour le nickel dans TR-Ni<sub>3</sub>. La présence d'un moment magnétique sur le site de la terre rare peut augmenter le moment sur le site du

métal de transition [Kirchmayr H.R., Poldy C.A., 1978], comme dans le cas des TR-Co<sub>2</sub> (figure II-A-1).

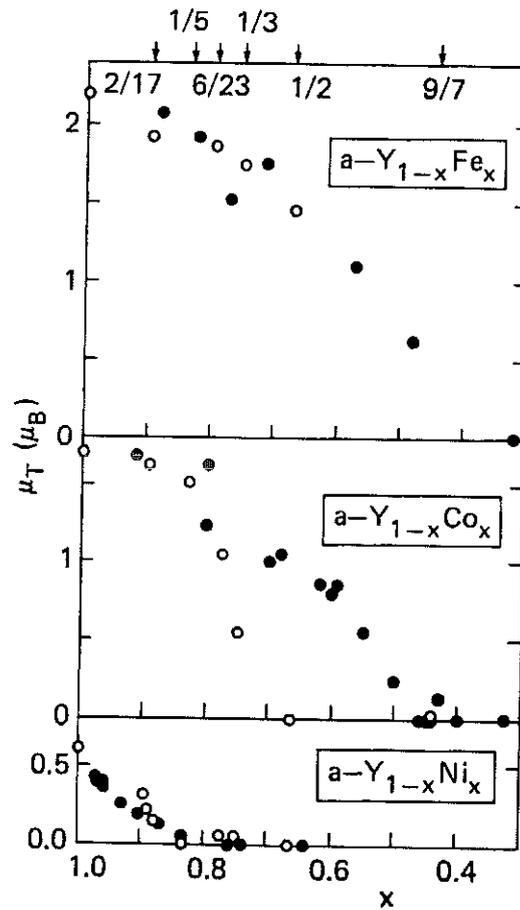


Figure II-A-1:  
Variation du moment magnétique 3d moyen dans les alliages d'yttrium avec le fer, le cobalt et le nickel pour des composés cristallins (cercles) et amorphes (points) [Coey J.M.D., 1984]

Le magnétisme des électrons d itinérants est décrit par les modèles de bandes d'énergie, qui prévoient l'existence ou non d'un moment magnétique d. Ce moment magnétique dépend de la forme et du remplissage de ces bandes d'énergie ainsi que de la densité d'état au niveau de Fermi.

### iii. Alliages terres rares - métaux de transition

Le magnétisme 3d dans les composés TR-M peut être étudié à l'aide des éléments non-magnétiques tels que l'yttrium, le lanthane et le lutécium.

L'électronégativité des terres rares par rapport aux métaux 3d est -5 pour le fer, -6 pour le cobalt et -7 pour le nickel. La grande différence d'électronégativité entre éléments de terre rare et de métaux de transition est à l'origine d'un transfert d'électrons 5d vers les bandes 3d. Par exemple un calcul de bande pour les composés YM<sub>2</sub> a montré que le transfert d'électrons vaut

2/3 électrons 4d par atome d'yttrium. [Cyrot M., 1979]. Ce transfert modifie l'écrantage des potentiels nucléaires et provoque un rapprochement des deux bandes. Il en résulte une hybridation de la bande 3d étroite avec la bande 5d (4d pour Y) plus large [Gignoux D., Lemaire R., Molho P., 1981]. Ces effets conduisent à une réduction du moment 3d lorsque la concentration en TR dans l'alliage augmente.

### A.1.b. Interactions d'échange

Dans les alliages intermétalliques TR-M trois types d'interactions d'échange différents interviennent: l'échange entre atomes de terre rare TR-TR, l'échange 3d-3d et l'échange TR-3d. Le modèle de champ moléculaire de Néel avec l'image de moments magnétiques localisés sur deux sous-réseaux, permet d'avoir une idée de l'ordre de grandeur des différentes interactions dans les composés TR-3d. Dans la plupart des cas, l'application du modèle prédit, que les interactions TR-TR sont faibles devant les interactions 3d-3d, qui déterminent la température d'ordre, les interactions TR-3d se situant entre ces deux extrêmes. Les températures de compensation sont principalement liées à l'échange TR-3d. Les moments 3d montrent à la fois un caractère local et un caractère itinérant, et donc le modèle purement local de Néel ne peut pas décrire en détail les propriétés magnétiques.

D'un autre côté, la possibilité d'appliquer des modèles purement itinérants, tels que le modèle de Stoner ou de liquide de Fermi, est également limitée. Ces modèles sont limités aux systèmes, où la terre rare ne porte pas de moment magnétique, par exemple l'yttrium, le lanthane ou le zirconium [Kirchmayr H.R., Poldy C.A., 1978].

Les températures d'ordre correspondent presque exclusivement à l'apparition d'un ordre où tous les moments 3d sont couplés ferromagnétiquement entre eux.

Typiquement, à température ambiante on se trouve au-dessus de la température d'ordre de la terre rare initiale, mais en-dessous de la température de Curie du métal 3d.

Dans les alliages de cobalt et de nickel la température d'ordre augmente avec la concentration de l'élément 3d allié. Ceci est le cas pour les composés Y-Ni et Y-Co et aussi des alliages Gd-3d et d'autres alliages TR-3d. Gd-Co<sub>2</sub> présente une température de Curie particulièrement élevée à cause du moment 3d induit.

### A.1.c. Couplage entre moments 4f et moments 3d

Le couplage entre moments de terre rare et moments 3d est toujours caractérisé par un couplage antiparallèle de leurs spins. Campbell [Campbell, 1972] explique le couplage antiferromagnétique des spins de terre rare, concernant les électrons d des éléments de début de série, avec les spins 3d par un couplage à l'intérieur de la bande d. Le spin des électrons 4f

induit à travers l'échange 4f-5d habituel un moment d positif sur le site de la terre rare. A l'intérieur de la bande d il y a échange directe 3d-5d entre les terres rares et les métaux de transition. La grande différence d'électronégativité, qui conduit à un écrantage du potentiel du noyau de la terre rare par les électrons 5d, est à l'origine du couplage négatif entre électrons 3d et 5d. L'écran fortement localisé conduit à un manque d'électrons de spin préférentiel au voisinage de l'atome, ce qui conduit effectivement à un couplage antiparallèle avec les spins M.

Le fort couplage spin orbite dans les terres rares crée un lien rigide entre le spin de la couche 4f et son moment orbital ( $J=L\pm S$ ).

Les éléments lourds parmi les terres rares (Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb) sont caractérisés par un couplage parallèle de leur moment de spin et de leur moment orbital. Les terres rares légères (Ce, Pr, Nd, Pm, Eu) montrent un couplage antiparallèle de leur moment orbitale et de spin.

Comme les moments orbitaux des terres rares sont en général plus grands que leurs moments de spin et les moments de spins TR et M sont toujours couplés antiparallèlement, on observe un couplage ferromagnétique TR-M pour les lanthanides légers et un couplage antiferromagnétique pour les lanthanides lourds.

#### A.1.d. Anisotropie

Les interactions les plus importantes agissant sur les atomes de terre rare sont celles de l'échange indirect TR-M et celles du champ cristallin, qui est important dans les composés intermétalliques, surtout en relation avec l'anisotropie magnétique. L'anisotropie magnétocristalline résulte essentiellement des interactions des couches 4f des ions  $TR^{3+}$  avec le champ cristallin et peut être très importante dans des systèmes de symétrie uniaxiale à basse température [Kirchmayr H.R., Poldy C.A., 1978].

A cause de l'écrantage relativement efficace et l'extension spatiale faible des couches 4f, les interactions de champ cristallin et d'échange interionique sont normalement beaucoup plus faibles que l'énergie du couplage spin orbite.

L'anisotropie magnétocristalline reste importante même à température ambiante, parce que la séparation des niveaux 4f (déterminé par le champ cristallin et l'échange) est donnée par les interactions d'échange TR-M, qui sont très fortes et ne dépendent que peu de la température tant que le moment du métal de transition reste proche de sa valeur à zéro Kelvin, c'est-à-dire jusqu'à des températures au voisinage de  $T_C/2$ . La variation thermique de l'anisotropie résulte simplement du peuplement progressif des niveaux d'énergie des ions terre rare à température croissante, elle est directement liée à l'importance des interactions d'échange TR-M.

## A.2. Alliages terre rare - cobalt amorphes

Les matériaux amorphes présentent des similitudes avec les liquides dans lesquels les atomes sont désordonnés, et avec les solides, dans lesquels les mouvements des atomes sont limités autour de leur position d'équilibre. La propriété la plus caractéristique des matériaux amorphes est l'absence de périodicité tridimensionnelle. Dans les structures amorphes il n'existe pas deux sites atomiques équivalents, tandis que toutes les directions macroscopiques des massifs peuvent être équivalentes. Il existe néanmoins un ordre à courte distance, qui est déterminé par la liaison chimique à l'origine de la formation du solide. Par conséquent elle montre des similarités avec la structure à longue distance observée dans l'état cristallin. L'arrangement aléatoire de sphères dures est la représentation schématique la plus simple de la structure amorphe. Il est beaucoup moins compact que la structure périodique d'un cristal. L'environnement local des atomes possède en général une très basse symétrie et change d'un site à l'autre. Les propriétés physiques observées à l'échelle macroscopique sont moyennées sur l'ensemble des atomes et présentent un caractère plus ou moins isotrope [Kopitzki K., 1993]

### A.2.a. Structure

La connaissance de la distribution des atomes est nécessaire pour l'analyse des propriétés physiques observées.

Les structures amorphes peuvent être classifiées à l'aide de la liaison chimique présente. Chaque type de liaison implique ses propres contraintes concernant la configuration des premiers voisins dans l'état amorphe. L'arrangement des atomes n'est pas complètement désordonné. En particulier, la liaison covalente entre atomes voisins et le site tétraédrique sont conservés dans l'état amorphe.

Pour interpréter les spectres de diffraction des alliages amorphes, un modèle de sphères dures compactes, dont la position obéit à certaines règles, est utilisé dans la plupart des cas. Sadoc, Dixmier et Guinier [Sadoc J.F., 1973] ont construit un modèle polytétraédrique avec des sphères de deux tailles différentes, pour décrire la structure d'alliages métalliques métal - métalloïde amorphes. Une liaison chimique préférentielle a été trouvée. Deux atomes de métalloïde ne peuvent pas être premiers voisins, un atome non-métallique ne peut être entouré que par des atomes métalliques. Une telle structure est moins dense que l'arrangement compact de sphères.

Cargill [Cargill G.S., 1974] trouve expérimentalement pour le composé  $GdFe_2$  amorphe, qu'un ordre à courte distance bien défini existe, mais que cet ordre est très différent

de la phase cristalline de Laves. Dans les alliages amorphes, la tendance à former des paires Fe-Fe et Gd-Gd semble être plus grande que dans  $GdFe_2$  cristallin.

La distance Gd-Gd ( $3,47 \pm 0,05 \text{ \AA}$ ) est bien supérieure à celle de la phase de Laves ( $3,18 \text{ \AA}$ ), mais plus petite que celle du diamètre de Goldschmid ( $3,6 \text{ \AA}$ ). Les nombres de coordination moyens (Fe,Fe:  $6,3 \pm 0,5$ ; Fe, Gd:  $3,3 \pm 0,3$ ; Gd,Fe:  $6,7 \pm 0,6$ ; Gd,Gd:  $6 \pm 1$ ) sont très différents de ceux de la structure cristalline (phase de Laves: 6,6,12,4). Les auteurs proposent un modèle d'empilement aléatoire dense de deux types de sphères dures.

Des expériences de diffraction de rayons X et de neutrons sur  $YNi_2$  amorphe servent dans ce travail de référence pour la structure de composés TR-M amorphes de même composition. Ces expériences fournissent les distances entre paires d'atomes voisins et les nombres de coordination et confirment l'existence d'un ordre préférentiel des atomes, qui favorise des paires d'atomes différents.

Les nombres de coordination déduits sont plus proches de ceux de l'état cristallin que ceux correspondant à une distribution aléatoire des atomes. Dans la phase de Laves cubique un atome de terre rare est entouré par 16 atomes, dans l'état amorphe les distances Y-Y sont supérieures aux diamètres des TR, mais puisque les distances Ni-Ni et Y-Ni sont réduites, un atome de nickel peut avoir 10 à 12 voisins [Givord D, 1979].

Dans l'état amorphe, les distances (TR-TR, TR-M, M-M) sont inférieures aux diamètres de Goldschmid et indiquent un arrangement compact des atomes proche de celui de l'état cristallin. La distance TR-M est plus petite que la moyenne des deux autres distances: le modèle de sphères dures ne semble pas approprié. Les distances TR-TR sont supérieures aux distances correspondantes dans la phase de Laves.

Ces expériences donnent l'information très importante pour les analyses ultérieures que la densité de ces composés amorphes vaut environ 92% de la densité cristalline [Rhyne J.J. (Réf.5 de Cargill G.S., 1974); Givord D., 1979].

### A.2.b Propriétés magnétiques

Dans l'état amorphe on peut s'attendre à des moments magnétiques, des interactions d'échange et une anisotropie à un ion modifiés par rapport à l'état cristallin.

La non-équivalence des sites conduit à une distribution de valeurs pour le moment magnétique même au zéro absolu de la température. Cette distribution est la plus étroite pour les terres rares, parce que la couche 4f est bien écrantée de l'environnement, tandis que pour les électrons délocalisés des métaux de transition 3d des distributions assez grandes de moments peuvent être observées. Comme dans les matériaux cristallins, une condition critique (chap. II.A.1.a.ii) pour l'apparition du magnétisme peut exister. L'étude de ces phénomènes dans des alliages

amorphes présente l'avantage de pouvoir varier de façon continue avec la concentration, sans les limitations de stabilité des phases cristallines [Coey J.M.D., 1978].

### *i. Interactions d'échange*

Les interactions d'échange, directes ou indirectes, ont un caractère isotrope et la seule information concernant la structure nécessaire pour leur évaluation concerne les distances interatomiques. La non-équivalence des sites conduit à une distribution d'interactions d'échange à cause de la dépendance de l'intégrale d'échange  $J$  avec la distance. La compétition entre les interactions d'échange positives et négatives conduit à des états de frustration, qui peut produire un abaissement de la température d'ordre et engendrer des structures magnétiques aléatoires et non-collinéaires dans le réseau amorphe.

C'est le cas des interactions Fe-Fe dans les composés TR-Fe amorphes. Au contraire, les interactions Co-Co dans les alliages TR-Co présentent toujours un signe positif et conduisent à des états ferromagnétiques forts [Givord D., 1985]. La variation du champ moléculaire d'un site à l'autre se traduit par des structures magnétiques non-collinéaires. Tandis que la constante d'échange  $J_{Co-Co}$  croît avec la concentration de la terre rare alliée dans les composés cristallins, elle est indépendante de la concentration  $x$  du cobalt dans les alliages amorphes  $TR_{1-x}Co_x$ . Pour  $x > 0,7$ , la température d'ordre  $T_c$  se trouve au-dessus de la température de cristallisation et est difficile à déterminer. Pour des concentrations autour de  $x = 0,6$ , un ordre de grandeur de  $J_{Co-Co} \approx 2,0 \times 10^{-21} J$  ( $J_{Co-Co} = 3kT_c / 2zS(S+1)$  avec  $z = 12x$ ) est reporté [Heiman N. and Kazama N., 1978].

### *ii. Anisotropie*

Au désordre est lié un fort "champ cristallin" aléatoire sur les sites atomiques, un effet dont le hamiltonien de Harris, Plischke et Zuckermann [Harris R., Plischke M. et Zuckermann M.J., 1977] tient compte par une constante d'anisotropie  $D$ , qui présente une distribution de valeurs absolues et qui peut s'orienter selon une direction aléatoire.

$$H = \sum_i D_i S_{iz}^2 - \sum_{ij} J(r_{ij}) S_i S_j \quad (II.1)$$

Pour les métaux 3d, le premier terme n'est en général pas important comparé au deuxième. Par contre il peut être du même ordre de grandeur ou plus grand pour des terres rares. En conséquence, les structures magnétiques des alliages amorphes des métaux 3d ont tendance à être définies par l'échange et celles des terres rares par l'anisotropie locale (à l'exception des terres rares dans un état S).

Les matériaux ferromagnétiques amorphes ont tendance à être magnétiquement doux, si le réseau est homogène et isotrope. Une anisotropie structurelle ou magnétique peut tout de même être induite par des conditions de fabrication particulières.

### iii. Structures de composés binaires

Pour un système comme les composés binaires TR-M, où deux groupes d'atomes différents avec différentes interactions magnétiques se trouvent sur deux sous-réseaux, trois structures de sous-réseaux possibles sont montrées dans la figure (II-A-2). La structure ferrimagnétique est directement analogue au ferrimagnétisme cristallin, à part les positions

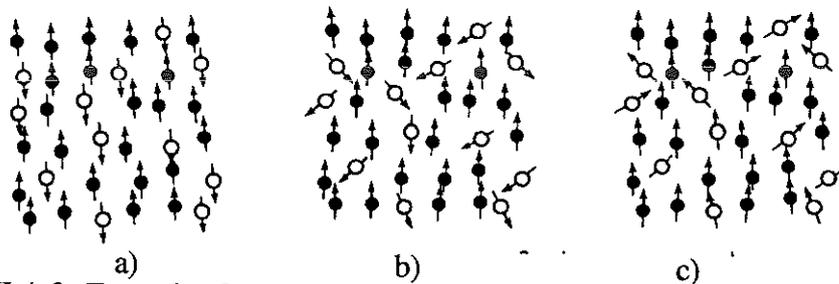


Figure II-A-2: Exemples de structures magnétiques amorphes d'alliages binaires  
a) ferrimagnétique, b) et c) spérimagnétique [Coe J.M.D., 1978]

atomiques aléatoires correspondant aux deux sous-réseaux. Une structure spérimagnétique est définie comme étant celle d'un aimant amorphe à deux sous-réseaux, où les moments d'un ou des deux réseaux sont gelés dans des directions aléatoires. Ce modèle, décrit par l'hamiltonien

$$H = -\sum D_{TR} S_{TRz}^2 - \sum D_M S_{Mz}^2 - \sum J_{TR-TR'} S_{TR} S_{TR'} - \sum J_{TR-M} S_{TR} S_M - \sum J_{M-M'} S_M S_{M'} \quad (II.2)$$

comprend le cas des structures ferrimagnétiques d'alliages tels que  $GdCo_3$  et  $GdFe_2$  ayant une anisotropie locale négligeable sur les sites de terre rare et des interactions d'échange telles que  $|J_{MM'}| > |J_{TR-M}| > |D_{TR}|$ . Dans  $GdCo_3$ , Y-Co et d'autres composés TR-Co, le sous-réseau de cobalt présente un couplage fortement ferromagnétique. Le gadolinium est couplé antiferromagnétiquement au cobalt par une interaction d'échange plus faible. Le sous-réseau de gadolinium possède un moment magnétique plus grand que le sous-réseau de cobalt à  $T=0$ , mais diminue rapidement avec la température.

Pour les composés amorphes Y-Fe, Y-Co et Y-Ni, en première approximation, le moment magnétique ne dépend pas des détails de l'ordre atomique, mais est défini par la composition chimique, que le système soit amorphe ou cristallin [Buschow K.H.J., 1979; Ndjaka, 1990].

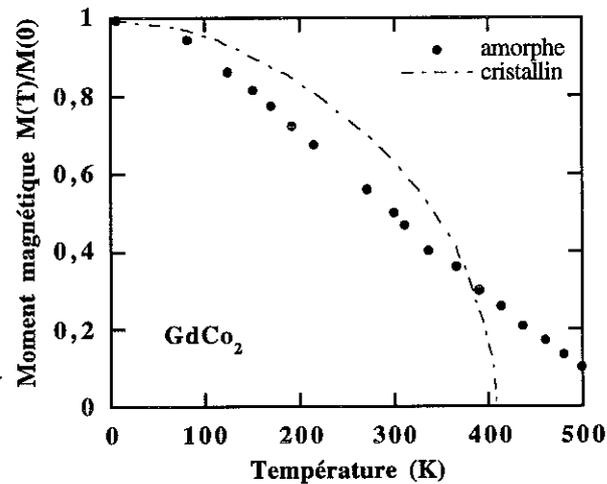


Figure II-A-3: Variation thermique de l'aimantation de couches amorphes  $Gd_{0,33}Co_{0,67}$  et de  $GdCo_2$  cristallin [Tao L.J., 1973]

A concentration d'yttrium croissante le moment magnétique des alliages amorphes devient supérieur au moment dans le cristal correspondant. La plus faible densité et la perte de la périodicité conduisent à une localisation plus faible des électrons d. La diminution du transfert et de l'hybridation permet la conservation du caractère de ferromagnétisme fort dans une plus grande gamme de concentration et l'augmentation de la température de Curie lorsqu'on passe de l'état cristallin à l'état amorphe (figure II-A-3). Heiman et Kazama trouvent que leurs données expérimentales sur des alliages  $A_xCo_{1-x}$  ( $A=Y, La, Zr$ ) sont en accord avec le modèle de transfert de charges à raison de 1,4 électrons par Y ou La et de 2,2 électrons par Zr vers la bande 3d du cobalt. Ceci explique pourquoi la concentration critique  $1-x$  est plus basse pour le zirconium. La taille de l'atome A ne joue pratiquement pas de rôle pour les propriétés des alliages A-Co amorphes, mais plutôt l'état de charge de l'atome A ( $Zr^{4+}$  et  $Y^{3+}, La^{3+}$ ) [Heiman N. and Kazama N., 1978].

Au voisinage de la concentration critique, pour laquelle disparaît le magnétisme, les effets d'environnement deviennent importants. Dans un alliage amorphe, il y a des zones où la concentration de cobalt est supérieure à la concentration moyenne et le cobalt porte un moment magnétique. Cet effet est amplifié par le fait, que les interactions magnétiques résultantes conduisent à une polarisation de l'ensemble des moments magnétiques du cobalt de l'alliage. Les deux effets décrits ci-dessus expliquent, pourquoi la concentration critique de disparition du magnétisme est plus grande dans les composés amorphes que dans l'état cristallin.

## II.B. Résultats expérimentaux sur les couches simples

### B.1. Couches minces amorphes d'Y-Co

Les couches d'Y-Co ont été déposées par pulvérisation cathodique triode à partir d'une cible de composition  $YCo_{1,8}$ , avec l'appareillage décrit au chapitre I.A.2.a, sur des substrats de verre. La vitesse de dépôt était de 0,08 nm/s pour une pression d'argon de 0,1 Pa. La couche magnétique est comprise entre deux couches protectrices de  $Si_3N_4$  d'épaisseur de l'ordre de 10 nm.

La composition du dépôt,  $YCo_{1,9}$ , a été déterminée par RBS et est proche de la composition de la cible. Le caractère amorphe des échantillons a été vérifié par diffraction de rayons X. En supposant que la densité de  $YCo_2$  amorphe est réduite de 8% par rapport à la densité cristalline de la phase de Laves ( $a=0,722$  nm) [Givord D., 1979], on obtient  $\rho=6,7$  g/cm<sup>3</sup>. La densité expérimentale de nos échantillons est  $\rho=6,9$  g/cm<sup>3</sup>.

La variation thermique du moment magnétique d'une couche d'épaisseur 100 nm est montrée dans la figure II-B-1. Pour  $YCo_2$  amorphe on trouve dans la littérature une température de Curie de  $T_C=580$  Kelvin [Lee K., Heiman N.].

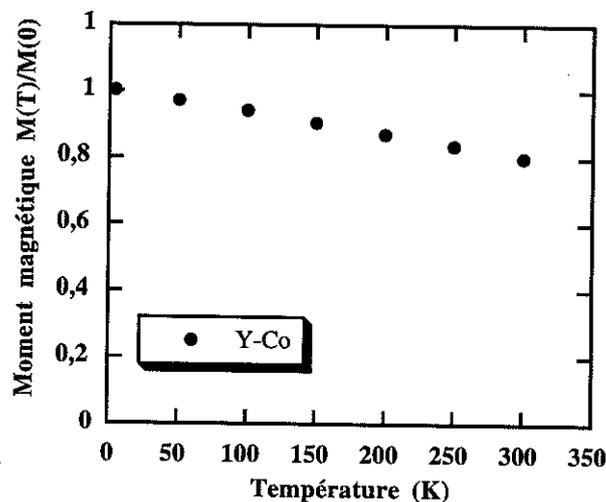


Figure II-B-1: Moment magnétique de  $YCo_{1,9}$  en fonction de la température

A partir du moment mesuré à 4,2K, on déduit un moment de 1,84  $\mu_B$  par unité de formule  $YCo_{1,9}$  ou 0,97  $\mu_B$  par atome de cobalt.

Des mesures d'effet Kerr transverse en fonction du champ appliqué (figure II-B-3a) à température ambiante montrent, que l'axe de facile aimantation est dans le plan de la couche.

Dans le plan on observe une très faible anisotropie. Dans la direction de l'axe facile, le champ coercitif varie entre 0,7 mT et 5,6 mT pour trois échantillons différents.

## B.2. Couches minces amorphes de Gd-Co

### B.2.a. Gd-Co déposé par pulvérisation cathodique triode

Les conditions de dépôt sont les mêmes que celles décrites au paragraphe II.B.1.. Les couches déposées avec un taux de l'ordre de 0,1 nm/s ont la composition  $\text{GdCo}_{2,3}$  d'après les analyses RBS et la microscopie électronique. Elles sont donc plus riches en cobalt que la cible de composition  $\text{GdCo}_{1,9}$ . La densité expérimentale est  $\rho=8,2 \text{ g/cm}^3$ . A partir de la densité cristalline de  $\text{GdCo}_2$  on calcule  $\rho=8,8 \text{ g/cm}^3$  pour les alliages amorphes de même composition (paragraphe II.A.2). Une analyse de la densité de  $\text{GdCo}_2$  amorphe a été tentée par Tao L.J. [1973], où le résultat expérimental  $8,35\pm 0,5 \text{ g/cm}^3$  est comparé à la densité attendue en supposant une structure CN12 aléatoire ( $\rho=7,3-7,7 \text{ g/cm}^3$ ) où tous les atomes auraient le même environnement. Il conclut, que le gadolinium doit avoir même dans l'état amorphe un plus grand nombre de coordination que le cobalt, rappelant la structure CN16 de l'état cristallin.

La figure (II-B-2) montre la variation thermique de l'aimantation à saturation, mesurée dans un champ de 6 T pour une couche de  $0,85 \mu\text{m}$  d'épaisseur. La variation thermique observée peut être attribuée à la seule variation de l'aimantation  $4f$ , si on compare à la variation

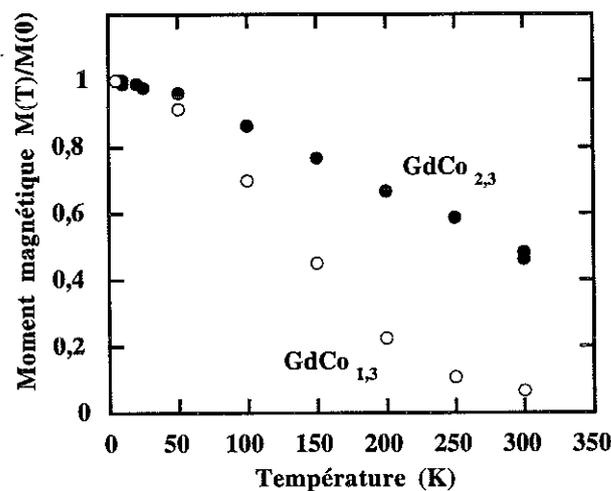
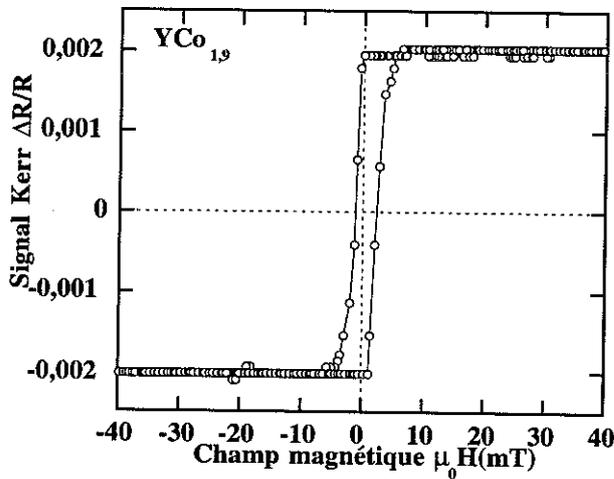


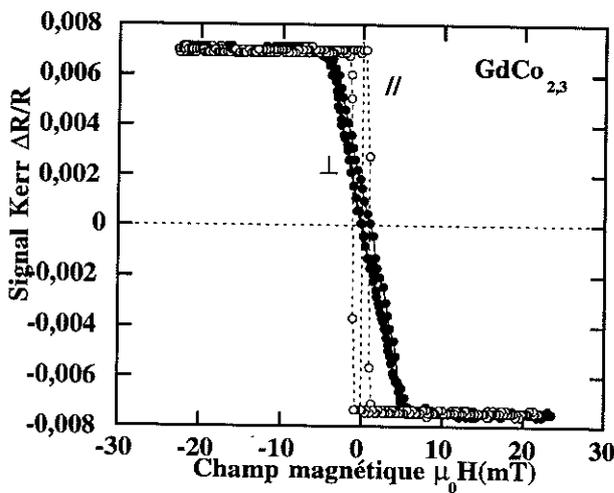
Fig.II-B-2: Variation thermique du moment à saturation  
 a) pour une couche de composition  $\text{GdCo}_{2,3}$  (ronds pleins),  
 b) pour une couche de composition  $\text{GdCo}_{1,3}$  (ronds vides)

thermique faible de  $\text{YCo}_2$  où l'yttrium n'est pas magnétique. L'yttrium n'est pas une terre rare, mais en pratique, cet élément non-magnétique est choisi pour remplacer le gadolinium, puisque son rayon atomique ( $R_{\text{Y}}=0,180 \text{ nm}$ ) est plus proche de celui du gadolinium ( $R_{\text{Gd}}=0,179 \text{ nm}$ ) que ceux des terres rares non magnétiques telles que le lanthane ( $R_{\text{La}}=0,187 \text{ nm}$ ) et le lutécium ( $R_{\text{Lu}}=0,174 \text{ nm}$ ) [Heiman N. and Kazama N., 1978] et qu'il est également trivalent.

A 300 K on observe encore un moment magnétique important en cohérence avec les températures de Curie entre 520 K et 565 K [Lee K., 1973] et les températures de compensation autour de 500 K [Chaudhari P., 1973], que l'on trouve dans la littérature pour  $\text{GdCo}_2$ .



a)



b)

Figure II-B-3: Mesures d'effet Kerr transverse à 300K en fonction du champ appliqué dans le plan de la couche a) pour une couche d' $\text{YCo}_{1,9}$  et b) pour une couche de  $\text{GdCo}_{2,3}$  avec le champ appliqué parallèlement et perpendiculairement au champ de recuit

Puisque le moment de gadolinium ne porte pas de moment orbital et n'est donc pas influencé par le champ cristallin, le moment du cobalt à basse température dans l'alliage peut être calculé à partir de  $M_{Co} = (M_{Gd} - M_{GdCo_y}) / y$ , où  $y$  est le nombre d'atomes de cobalt par atome de gadolinium.

Des mesures à 4,2 K on déduit un moment magnétique de  $3,8 \mu_B$  par  $GdCo_{2,3}$ , ce qui correspond à un moment par atome de cobalt dans cet alliage de  $1,4 \mu_B$ . Dans la littérature on trouve cette valeur pour une couche de composition voisine,  $GdCo_2$  [Tao L.J., 1973]. Le moment 3d est donc plus grand que dans  $YCo_{1,9}$ , en accord avec le paragraphe II.A.. Les cycles Kerr sont inversés pour Gd-Co, parce que pour la longueur d'onde utilisée de 670 nm, l'effet n'est sensible qu'aux atomes de cobalt, tandis que l'aimantation est déterminée par la direction du moment de gadolinium, qui est couplé antiferromagnétiquement au cobalt.

Dans une partie des échantillons on observe une anisotropie dans le plan directement après le dépôt, qui peut être due aux champs magnétiques présents dans la chambre de pulvérisation. Lorsque l'aimantation est isotrope dans le plan de la couche après le dépôt, un axe facile est induit par un recuit sous champ magnétique (figure II-B-3b). Les champs d'anisotropie observés sont de l'ordre de 5 à 20 mT. Les champs coercitifs observés par effet Kerr avec le champ appliqué parallèlement à l'axe facile varient entre 2 mT et 8 mT et ont tendance à être légèrement réduits par le recuit.

### B.2.b. Gd-Co déposé par pulvérisation cathodique magnétron

Les conditions d'élaboration par pulvérisation cathodique magnétron sont décrites au paragraphe I.A.2.b. Une analyse de microscopie électronique à balayage donne pour la cible de composition de départ  $GdCo_{1,8}$  une composition  $GdCo_{1,72}$ . Le moment magnétique de la cible mesuré à 5 Kelvin correspond à  $5,08 \mu_B$  par unité de formule, sa température d'ordre est supérieure à 340 Kelvin, en cohérence avec cette composition.

Les couches magnétiques sont protégées des deux côtés par des couches de tantale.

Pendant la préparation des échantillons pour les analyses magnétiques, nous avons choisi une tension de 440V et un courant de 250 mA, ce qui correspond d'après l'étalonnage à un taux de  $0,21 \text{ nm/s}$ .

Des expériences de retrodiffusion ionique montrent, que les échantillons déposés n'ont pas la même composition chimique que la cible. La stoechiométrie de la cible est conservée seulement pour une première couche d'environ 50 nm déposée sur le substrat. Pour des épaisseurs plus grandes, la composition du dépôt est plus pauvre en cobalt et se stabilise rapidement autour de 1,2 atomes de cobalt par atome de gadolinium. L'observation de cette variation de composition a été confirmée par une analyse de spectrométrie de masses d'ions secondaires (SIMS, paragraphe I.B.2.).

La densité des couches de Gd-Co,  $\rho=7,5 \text{ g/cm}^3$ , est obtenue en ajustant ce paramètre dans les simulations des spectres de rétrodiffusion ionique (RBS) afin d'obtenir la même épaisseur que par l'étalonnage (qui a été vérifié par mesure d'épaisseur mécanique, chap.I.B.4).

La variation thermique de l'aimantation à saturation est montrée sur la figure (II-B-2). Elle décroît plus rapidement que la courbe correspondante pour  $\text{GdCo}_{2,3}$ , parce que les échantillons sont plus riches en gadolinium, dont le moment dépend fortement de la température. Ce résultat est en accord avec la décroissance de  $T_C$  reportée par Tao [Tao L.J., 1973] pour une augmentation de la concentration de Gd par rapport à celle du cobalt.

| épaisseur<br>en nm | composition<br>moyenne | moment (10K)<br>en $\text{Am}^2/\text{m}^2$ | moment (10K)<br>en $\mu\text{B}/\text{formule}$ | $B_{\text{coer}}$ (10K)<br>en mT | $B_{\text{coer}}$ (80K)<br>en mT |
|--------------------|------------------------|---|---|----------------------------------|----------------------------------|
| 180                | $\text{GdCo}_{1,33}$   | 0,168                                       | 5,24  | 2                                | 0,5                              |
| 475                | $\text{GdCo}_{1,27}$   | 0,506                                       | 5,62  | 4                                | 1,5                              |

Tableau II-B-1: Propriétés magnétiques des couches Gd-Co

Les cycles d'hystérésis  $M(B)$  mesurés par magnétomètre à échantillon vibrant pour plusieurs directions du champ appliqué dans le plan de la couche et des températures entre 10K et 300 K sont isotropes, avec un champ coercitif très faible (tableau II-B-1). Des mesures par effet Kerr transverse à température ambiante sur une couche de 100 nm d'épaisseur confirment ce résultat.

Des mesures sur des couches simples de Gd-Co de cette série (tableau II-B-1) on déduit en moyenne un moment de  $5,43 \mu\text{B}/\text{formule}$   $\text{GdCo}_{1,3}$  et, en supposant  $7 \mu\text{B}$  par atome de Gd, un moment de  $1,21 \mu\text{B}$  par atome de cobalt.

### B.3. Couches minces amorphes de Sm-Co

Les couches de Sm-Co élaborées pour ce travail sont des multicouches de tranches fines (0,5-2 nm) obtenues par pulvérisation magnétron à partir d'une cible de cobalt pur et d'une cible de samarium pur. Ce procédé permet de faire varier facilement la composition relative de samarium et de cobalt. De plus, les cibles en alliages  $\text{Sm}_{1-x}\text{Co}_x$  de compositions  $0,5 < x < 0,8$  sont très fragiles et difficiles à manipuler. Les étalonnages sont résumés dans la figure I-A-8. Pendant la préparation des échantillons pour les analyses magnétiques, nous avons choisi pour le samarium (cobalt) une tension de 270 V (300 V) et un courant de 49 mA (250 mA), ce qui correspond selon l'étalonnage à un taux de  $0,105 \text{ nm/s}$  ( $0,1 \text{ nm/s}$ ).

Les épaisseurs mesurées par dektak sont en accord avec les épaisseurs calculées à partir de l'étalonnage et de la durée du dépôt. Pour obtenir les mêmes épaisseurs par simulation des spectres RBS, les densités entrées dans la simulation sont ajustées et la densité moyenne est de  $7,5 \text{ g/cm}^3$ .

Pour obtenir des alliages de compositions  $\text{Sm}_{0,5}\text{Co}_{0,5}$ ,  $\text{Sm}_{0,33}\text{Co}_{0,67}$  et  $\text{Sm}_{0,2}\text{Co}_{0,8}$  des multicouches  $(1 \text{ nm Sm}, 1 \text{ nm Co}) \times 100$ ,  $(0,5 \text{ nm Sm}, 1 \text{ nm Co}) \times 130$  et  $(0,5 \text{ nm Sm}, 2 \text{ nm Co}) \times 40$  ont été préparées. L'objectif, qui était de fabriquer des alliages de Sm-Co de concentrations différentes, a été atteint, les rapports 1:2:4 sont à peu près respectés, mais les analyses de retrodiffusion ionique montrent un décalage vers des concentrations plus riches en cobalt.

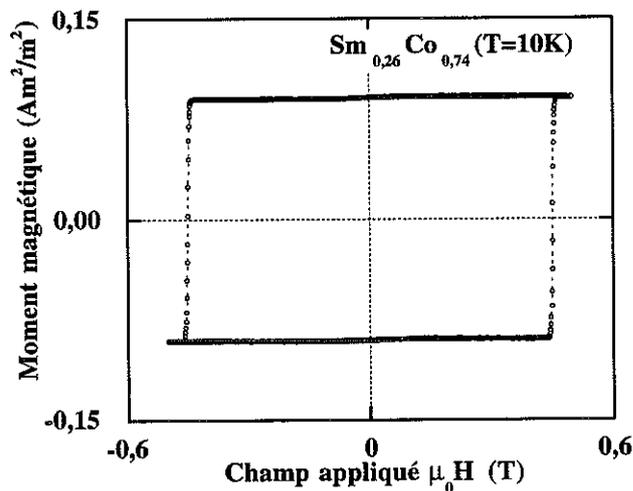


Figure II-B-4: Cycle d'hystérésis avec le champ appliqué dans le plan de la couche  $\text{Sm}_{0,26}\text{Co}_{0,74}$  selon la direction de facile aimantation

Les couches de Sm-Co possèdent un axe de facile aimantation bien défini dans leur plan, qui est parallèle à la direction du champ appliqué pendant le dépôt (figure II-B-5) et des cycles  $M(B)$  carrés sont obtenus lorsque le champ est appliqué le long de l'axe facile (figure II-B-4). L'absence de cycle d'hystérésis détectable le long de l'axe difficile indique l'absence d'une dispersion d'axes faciles. Le champ d'anisotropie  $B_a$  et le champ coercitif  $B_{\text{COER}}$  diminuent rapidement lorsque la concentration de cobalt dans le composé augmente (figure II-B-6a,b).

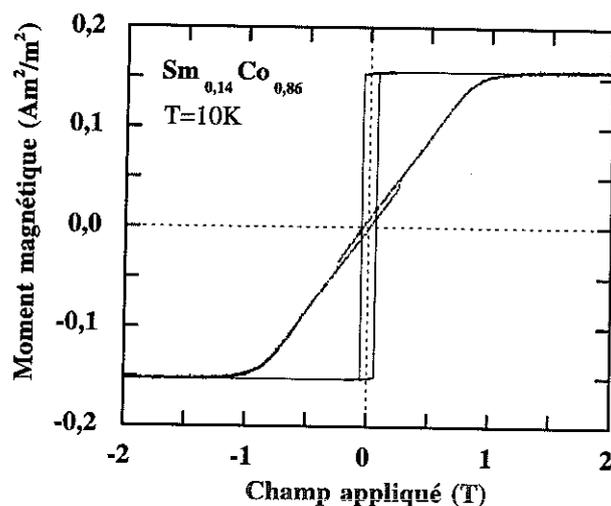


Figure II-B-5: Anisotropie dans le plan d'une couche de  $\text{Sm}_{0,14}\text{Co}_{0,86}$

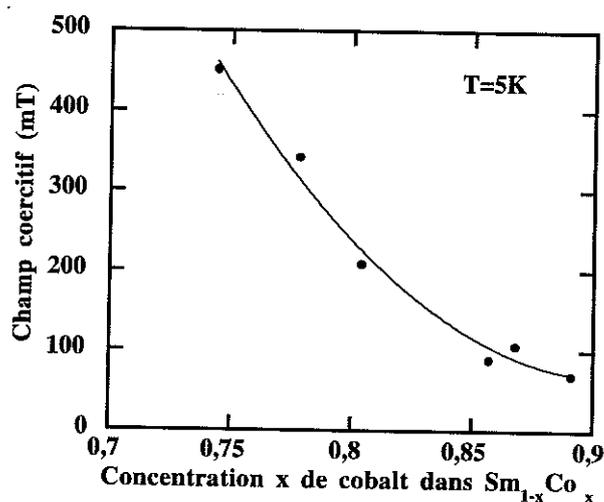


Figure II-B-6a: Champ coercitif en fonction de la concentration  $x$  de cobalt à 5 Kelvin

Les ions  $\text{Sm}^{3+}$  créent une forte anisotropie magnétique locale à cause de la non-sphéricité de la couche 4f. L'induction d'un axe facile dans le plan des couches de Sm-Co par application d'un champ magnétique pendant la pulvérisation a été étudié plus en détail par K. Chen et al [1992], qui expliquent l'origine physique de cette anisotropie dans le plan par un ordre directionnel de paires d'atomes dont le mécanisme de formation serait différent de celui de l'ordre à courte distance induit par recuit sous champ, qui lui est réversible et isotrope. Ils trouvent, que la constante d'anisotropie dépend de la pression, indépendamment de la concentration, et que la formation de microcristallites peut empêcher la formation de paires

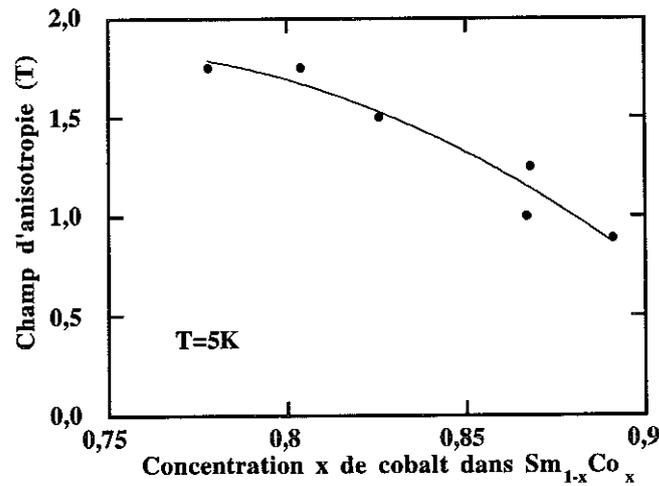


Figure II-B-6b: Champ d'anisotropie en fonction de la concentration  $x$  de cobalt à 5 Kelvin

d'atomes, ce qui réduit l'anisotropie dans le plan. Ils concluent, que l'anisotropie dans le plan est essentiellement dû au champ appliqué pendant le dépôt et à la concentration de samarium dans la gamme étudiée de  $0,6 < x < 0,92$  [Chen K., 1993].

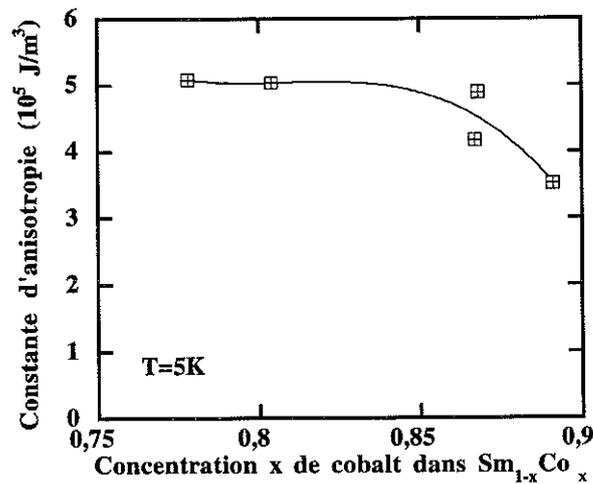


Fig.II-B-6c: Constante d'anisotropie  $K_u$  estimée à partir de la relation  $K_u \approx 0,5(M_S B_a)$  de couches de  $\text{Sm}_{1-x}\text{Co}_x$  en fonction de la concentration en cobalt

Les constantes d'anisotropie uniaxiales estimées à partir des courbes d'aimantation et de la relation  $K_u \approx 0,5(M_S B_a)$  en prenant les valeurs de  $B_a$  et  $M_S$  trouvées à basse température, se trouvent entre  $0,35 \times 10^6 \text{ J/m}^3$  pour  $\text{Sm}_{0,11}\text{Co}_{0,89}$  et  $0,51 \times 10^6 \text{ J/m}^3$  pour  $\text{Sm}_{0,22}\text{Co}_{0,78}$  (figure II-B-6c).

A température ambiante nous estimons  $K_U$  à  $0,17 \times 10^6 \text{ J/m}^3$  pour  $\text{Sm}_{0,11}\text{Co}_{0,89}$  et  $0,27 \times 10^6 \text{ J/m}^3$  pour  $\text{Sm}_{0,2}\text{Co}_{0,8}$ . Ces valeurs sont du même ordre de grandeur que les valeurs maximales reportées par Chen K. [1992]:  $0,33 \times 10^6 \text{ J/m}^3$  ( $\text{Sm}_{0,33}\text{Co}_{0,77}$ ), et Cheung T.D. [1985]:  $0,14-0,26 \times 10^6 \text{ J/m}^3$ .

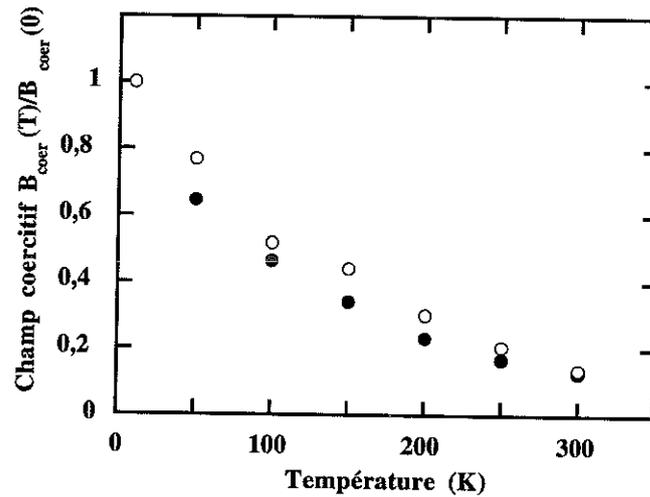


Figure II-B-7: Champ coercitif en fonction de la température pour  
 a)  $\text{Sm}_{0,26}\text{Co}_{0,74}$  (ronds vides)  
 b)  $\text{Sm}_{0,14}\text{Co}_{0,86}$  (ronds pleins)

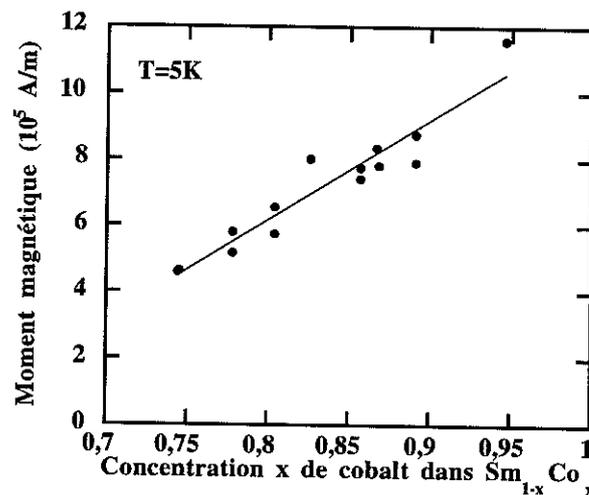


Figure II-B-8: Moment magnétique de  $\text{Sm}_{1-x}\text{Co}_x$  en fonction de la concentration x

Un effet, dont il faut être conscient lors de l'analyse des expériences sur des systèmes sandwich contenant ces matériaux, est la décroissance rapide du champ coercitif à température croissante (figure II-B-7).

Le moment magnétique est essentiellement dû au cobalt et croît avec la concentration en Co (figure II-B-8). La variation thermique du moment magnétique à saturation est très faible entre 4,2 K et la température ambiante pour toutes les concentrations étudiées (figure II-B-9).

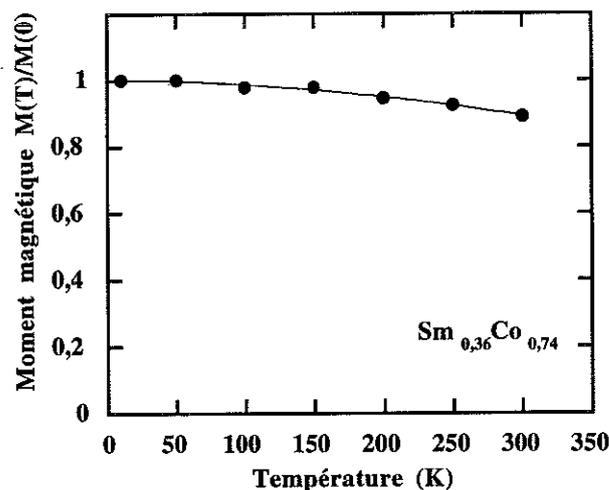


Figure II-B-9: Moment magnétique de  $Sm_{0,36}Co_{0,74}$  en fonction de la température

#### B.4. Couches minces amorphes de Tb-Co

Les conditions d'élaboration par pulvérisation cathodique magnétron sont décrites au paragraphe I.A.2.b. Pendant la préparation des échantillons nous avons choisi une tension de 440V et un courant de 250 mA, ce qui correspond selon l'étalonnage à un taux de 0,22 nm/s.

Des expériences de retrodiffusion ionique montrent, que les échantillons déposés n'ont pas la même composition chimique que la cible, le décalage allant dans le même sens que pour Gd-Co.

La densité des couches de Tb-Co,  $\rho = 8,2 \text{ g/cm}^3$ , est obtenue en ajustant ce paramètre dans les simulations des spectres de rétrodiffusion ionique (RBS) afin d'obtenir la même épaisseur que par l'étalonnage (qui a été vérifié par mesure d'épaisseur mécanique, paragraphe I.B.4).

La variation thermique de l'aimantation à saturation est reportée sur la figure II-B-10. Comme pour Gd-Co, la variation thermique observée peut être attribuée à la seule variation de l'aimantation 4f.

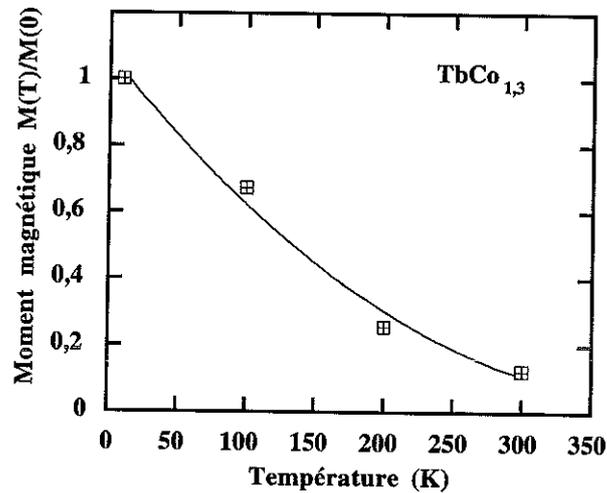


Figure II-B-10: Moment à saturation de  $TbCo_{1,3}$  en fonction de la température

Les cycles d'hystérésis  $M(B)$  mesurés au magnétomètre à échantillon vibrant présentent deux champs coercitifs différents pour une variation de champ appliqué entre  $+B_{max}$  et  $-B_{max}$  (figure II-B-11).

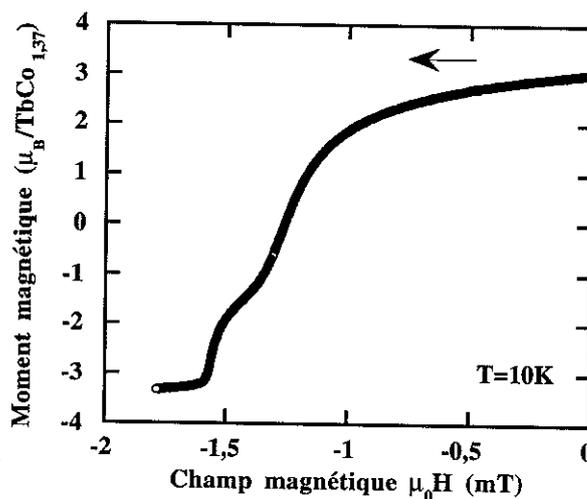


Figure II-B-11: Courbes d'aimantation d'une couche de  $TbCo_{1,37}$  à 10 Kelvin

Le terbium est parmi les terres rares lourdes une des plus anisotropes et on s'attend à des effets d'anisotropie locale importants. L'orientation des moments est caractérisée par une structure spérimagnétique (paragraphe II.A.2.2). La coercitivité observée est la signature d'une grande anisotropie [Givord D., 1985].

| épaisseur<br>en nm | composition<br>moyenne | moment<br>(10K,5T)<br>en Am <sup>2</sup> /m <sup>2</sup> | moment<br>(10K,5T)<br>en μB/form. | B <sub>coer1</sub> (10K)<br>en mT | B <sub>coer2</sub> (10K)<br>en mT |
|--------------------|------------------------|--|-----------------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|
| 180                | TbCo <sub>1,37</sub>   | 0,163  | 4,75                              | 1250/1450                         | 1560/1820                         |
| 430                | TbCo <sub>1,26</sub>   | 0,403  | 4,77                              |                                   |                                   |

Tableau II-B-2: Propriétés magnétiques des couches Tb-Co

### B.5. Couches minces de Co et de Co<sub>0,95</sub>Zr<sub>0,05</sub>

Les couches de cobalt ont été déposées par pulvérisation cathodique magnétron à partir de cibles de Co pur, les couches de Co-Zr à partir d'une cible de Co<sub>0,95</sub>Zr<sub>0,05</sub>. Les conditions de dépôt sont résumées au paragraphe I.A.2.b.

Pendant la préparation des échantillons de cobalt pur (Co-Zr) nous avons choisi une tension de 380 V (330V) et un courant de 399 mA (350mA), ce qui correspond d'après l'étalonnage à une vitesse de dépôt d'environ 0,18 nm/s (0,16 nm/s) (voir chapitre I.A.2). Cet étalonnage a été vérifié par des mesures d'épaisseur sur deux échantillons de cette série de fabrication et l'écart obtenu est de moins de quatre pour cent. L'erreur due aux couches protectrices de tantale des deux côtés de la couche de Co/Co-Zr (e~10 nm côté substrat, e~5 nm côté surface) a été négligé.

Des expériences de retrodiffusion ionique montrent pour l'alliage, que la composition des échantillons déposés est la même que celle de la cible et que la composition est homogène dans toute l'épaisseur de la couche.

La densité des couches de Co-Zr,  $\rho=7,8 \text{ g/cm}^3$ , est obtenue en ajustant ce paramètre dans les simulations des spectres de RBS afin d'obtenir la même épaisseur que par l'étalonnage (qui a été vérifié par dektak).

Les spectres de diffraction des rayons X (figure II-B-12) des couches de cobalt pur montrent un pic prononcé, qui est absent dans les spectres des couches de Co-Zr. Le zirconium apparaît donc comme un agent d'amorphisation à cause du désordre, qu'il crée dans la matrice de cobalt [Naili, 1990].

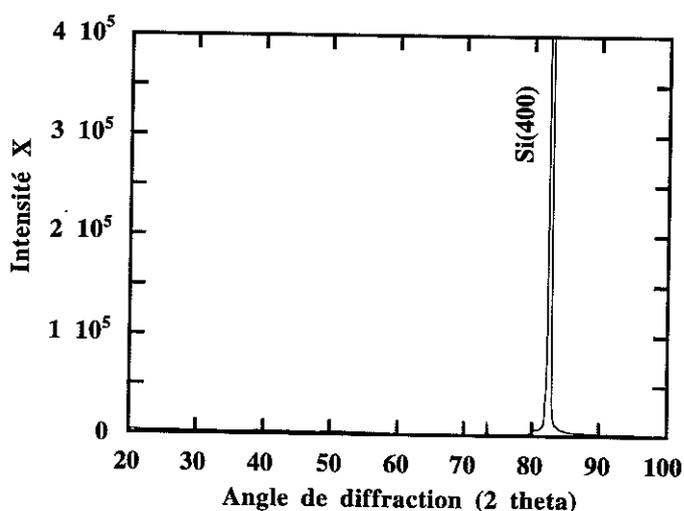
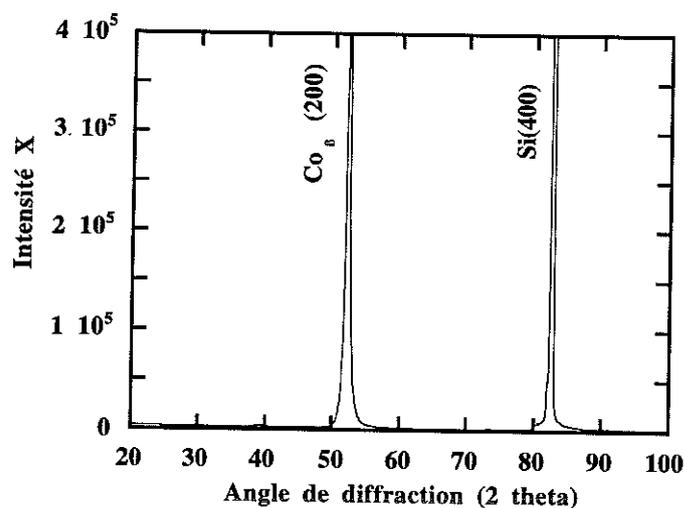


Figure II-B-12: Diffraction de rayons X de a) Co, b) Co-Zr (sur substrat de silicium)

Le moment magnétique à saturation, mesuré à l'aide d'un magnétomètre squid, est de  $1,7 \mu\text{B}$  par atome de cobalt pour le cobalt pur et de  $1,55 \mu\text{B}$  par unité de formule  $\text{Co}_{0,95}\text{Zr}_{0,05}$  ou de  $1,63 \mu\text{B}$  par atome de cobalt dans le Co-Zr, correspondant aux valeurs que l'on trouve dans la littérature, par exemple  $1,54 \mu\text{B}/\text{Co}_{0,95}\text{Zr}_{0,05}$  [Yamagata T., Ito S., 1983] et  $1,50 \mu\text{B}/\text{Co}_{0,95}\text{Zr}_{0,05}$  [Krishnan M., 1982].

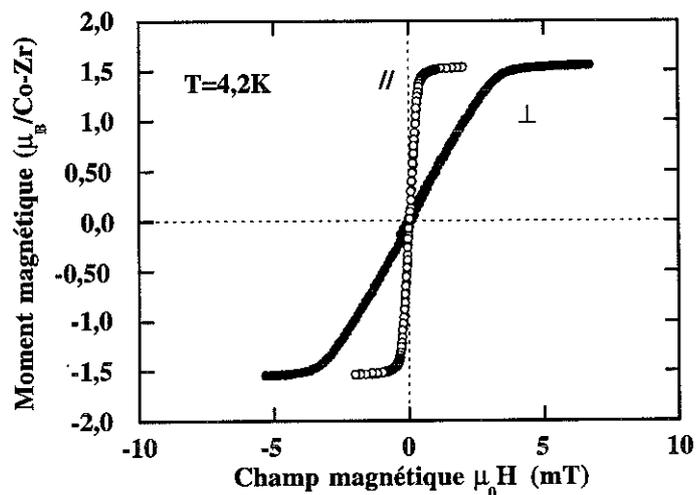


Figure II-B-13: Variation de l'aimantation d'une couche de  $\text{Co}_{0,95}\text{Zr}_{0,05}$  à 4,2 Kelvin avec le champ magnétique appliqué parallèlement et perpendiculairement à l'axe facile

Le champ coercitif des couches de Co-Zr est inférieur à 0,6 mT pour un échantillon d'épaisseur 200 nm et inférieur à 0,1 mT pour un échantillon d'épaisseur 500 nm. Le champ d'anisotropie uniaxiale induite dans le plan de la couche pendant le dépôt, vaut 3 mT (figure II-B-13). Les susceptibilités mesurées en champ faible à 4,2 Kelvin sont  $\chi=9120$  (200 nm) et  $\chi=4495$  (500 nm).

Des mesures de moment magnétique en fonction du champ appliqué dans le plan d'une couche de cobalt parallèle et perpendiculaire à la direction du champ appliqué pendant le dépôt ne montrent pas d'anisotropie appréciable.

La variation thermique de l'aimantation entre 5 K et 300 K est très faible (environ 0,5% pour les échantillons de Co pur et 1,25% pour du Co-Zr).

Les alliages de Co-Zr sont des ferromagnétiques doux à champ coercitif faible. Ils remplissent les conditions exigées pour leur utilisation dans les têtes d'enregistrement, notamment une aimantation à saturation la plus élevée possible, un champ coercitif faible inférieur à 0,1 mT, une magnétostriction négligeable et un faible champ d'anisotropie uniaxiale dans le plan de la couche.

Dans la littérature on trouve des études détaillées de l'aimantation à saturation  $M_S$ , du champ coercitif  $B_{\text{COER}}$  et de la constante d'anisotropie  $K_U$  en fonction de la concentration de l'alliage et la pression du gaz de pulvérisation. La constante d'anisotropie  $K_U$  dépend fortement de la pression et décroît rapidement, pour une pression donnée, avec la concentration de Co alliée [Naili M., 1990].

## **Conclusion du chapitre II**

Nous avons fabriqué et caractérisé des couches simples de matériaux présentant des propriétés magnétiques variées de moment magnétique, d'anisotropie et de coercitivité. Ces échantillons sont les matériaux de base entrant dans la composition des systèmes sandwich que nous nous proposons d'élaborer.

Des couches de Sm-Co de différentes compositions présentent des champs coercitifs variant de 0,1 à 0,4 Tesla. Avec les alliages d'Y-Co, de Gd-Co et de Co-Zr, on dispose de matériaux magnétiquement doux.

# CHAPITRE III:

## Tri-couches couplées par l'échange

|   |     |
|---|-----|
| III.A. Rappels sur les domaines et les parois.....  | 85  |
| III.A.1. Domaines.....  | 85  |
| III.A.2. Parois.....  | 86  |
| III.B. Rappel des études antérieures.....   | 88  |
| III.C. Description des systèmes expérimentaux.....  | 89  |
| C.1. Différents types d'empilement.....   | 89  |
| C.1.a. Système ferrimagnétique Y-Co/Gd-Co/Y-Co.....   | 89  |
| C.1.b. Système ferrimagnétique Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co'.....  | 90  |
| C.1.c. Système ferromagnétique Sm-Co/X/Sm-Co' (X=Co, Co-Zr).....  | 91  |
| C.2. Cycles d'hystérésis.....   | 92  |
| C.2.a. Processus d'aimantation dans le système ferrimagnétique.....   | 92  |
| Y-Co/Gd-Co/Y-Co.....  | 92  |
| C.2.b. Processus d'aimantation dans le système ferrimagnétique.....   | 95  |
| Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co'.....   | 95  |
| C.2.c. Processus d'aimantation dans les systèmes ferromagnétiques.....  | 98  |
| Sm-Co/X/Sm-Co' (X=Co, Co-Zr).....   | 98  |
| C.3. Géométrie des parois dans les systèmes sandwich.....   | 99  |
| III.D. Transition liée au retournement d'aimantation dans une couche en<br>matériau doux couplée par l'échange..... | 100 |
| D.1. Observations expérimentales.....   | 100 |
| D.1.a. Effet de l'épaisseur.....  | 102 |
| D.1.b. Effet de la température.....   | 105 |
| D.2. Explication qualitative.....   | 106 |
| D.3. Modèle analytique de paroi sans anisotropie.....   | 108 |
| III.E. Renversement d'aimantation des couches coercitives dans des tri-<br>couches couplées par l'échange.....      | 112 |
| E.1.a. Systèmes ferrimagnétiques.....   | 112 |
| E.1.b. Systèmes ferromagnétiques.....   | 112 |
| E.1.c. Discussion.....  | 114 |
| E.2. Renversement de la couche coercitive dans un cycle mineur.....   | 116 |

|  |     |
|--|-----|
| E.2.a. Description expérimentale .....   | 116 |
| E.2.b. Analyse de ces résultats .....  | 117 |
| III.F. Processus d'aimantation dans l'état à une paroi.....  | 121 |
| F.1. Création de l'état à une paroi.....   | 121 |
| F.2. Processus d'aimantation dans l'état à une paroi .....   | 123 |
| F.3. Etude de la susceptibilité en fonction de l'épaisseur.....  | 128 |
| F.4. Méthodes d'observation directe de la paroi: réflectométrie de<br>neutrons polarisés avec analyse de polarisation..... | 129 |
| Conclusion du chapitre III .....   | 132 |
| Références .....   | 133 |

# CHAPITRE III

## Tri-couches couplées par l'échange

Des multicouches fabriquées à partir des couches d'alliages de terres rares et de métaux de transition, décrites au chapitre précédent, peuvent présenter des propriétés magnétiques très variées. Par le choix de la composition chimique de ces alliages et de l'épaisseur de chaque couche constitutive, leur moment magnétique, anisotropie et coercitivité peuvent être adaptés afin d'obtenir des propriétés magnétiques spécifiques de l'échantillon. Le couplage entre couches conduit à des structures en domaines et des processus d'aimantation particulières.

### III.A. Rappels sur les domaines et les parois

#### III.A.1. Domaines

Pour expliquer les processus d'aimantation de corps ferromagnétiques (ou ferrimagnétiques) en désaccord avec son modèle de ferromagnétisme, P. Weiss [1907] a supposé l'existence de domaines magnétiques, dont la direction de l'aimantation varie d'un domaine à l'autre mais dont l'aimantation est uniforme à l'intérieur d'un même domaine.

Une structure en domaines particulière résulte du compromis entre les différentes contributions à l'énergie du matériau ferromagnétique: énergie d'échange, d'anisotropie, énergie magnétostatique (ou dipolaire) et éventuellement contribution due à la magnétostriction.

C'est l'énergie magnétostatique, qui est à plus longue portée ( car elle varie en  $r^{-3}$ ), qui impose la décomposition en domaines. En effet un échantillon massif aimanté uniformément possède l'énergie magnétostatique la plus grande (à cause des charges magnétiques de surface de densité  $\sigma = \vec{M} \cdot \vec{n}$ ). La décomposition en domaines (figure III-A-1) diminue l'énergie dipolaire mais en contrepartie augmente l'énergie d'échange à la surface de séparation entre deux domaines. Dans chaque domaine, la direction de l'aimantation est généralement une direction de facile aimantation pour annuler ou minimiser l'énergie d'anisotropie magnétocristalline.

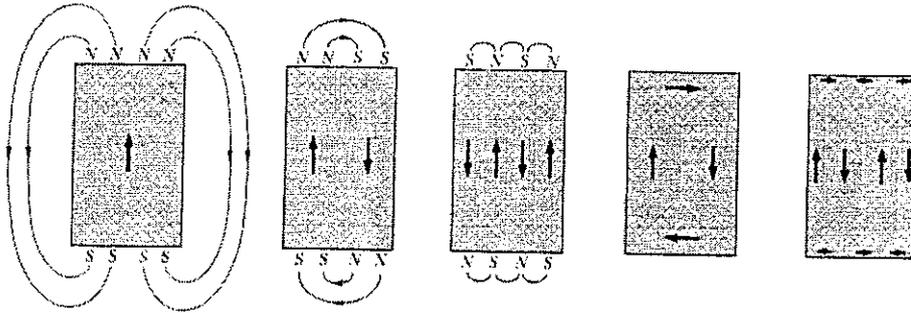


Figure III-A-1: La minimisation de l'énergie magnétostatique d'un corps ferromagnétique explique la décomposition en domaines [Kittel C., 1986]

### III.A.2. Parois

Une transition abrupte entre deux domaines coûterait trop cher en énergie d'échange. Il est possible de réduire l'énergie de surface associée au renversement des spins à la séparation entre deux domaines en répartissant ce renversement sur un grand nombre de moments magnétiques. En effet, dans un modèle unidimensionnel (figure III-A-2) de renversement de l'aimantation de  $180^\circ$ , pour une énergie d'échange entre deux spins  $S_i$  et  $S_j$  donnée par  $w_{ij} = -2JS_iS_j$ , un renversement sur  $N$  spins conduit à une augmentation de l'énergie d'échange de  $JS^2\pi^2/N$  au lieu de  $2JS^2$ .

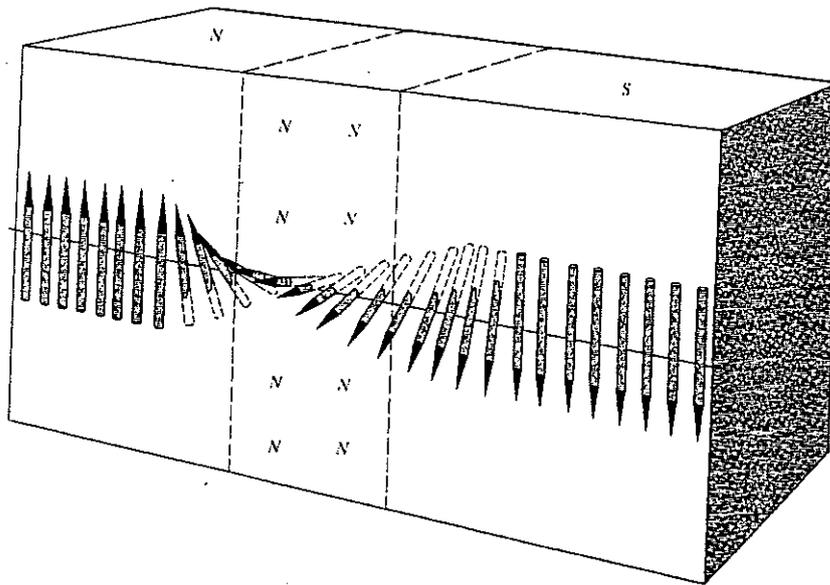


Figure III-A-2: Structure de la paroi de Bloch séparant des domaines. Pour le fer, l'épaisseur de la zone de transition est d'environ 150 distances interatomiques [Kittel C., 1986]

Toutefois cet avantage se fait au détriment de l'énergie magnétocristalline, car au sein de la paroi les moments magnétiques ne sont plus suivant des directions de facile aimantation. En conséquence, l'épaisseur d'une paroi résulte de la minimisation de l'énergie d'échange et de l'énergie d'anisotropie.

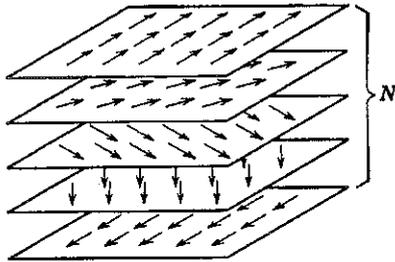


Figure III-A-3: Rotation des spins dans une paroi de Bloch entre domaines [Chikazumi S., 1964]

Il existe différents types de parois. Dans la paroi de Bloch, l'aimantation tourne autour d'un axe perpendiculaire au plan de la paroi pour éviter l'apparition des charges en volume ( $\text{div } \vec{M} = 0$ ) (figure III-A-4). Il s'agit d'un modèle unidimensionnel où l'aimantation ne dépend que de la coordonnée perpendiculaire à la surface de la paroi. Dans cette hypothèse, le profil de la paroi de Bloch est donné par l'équation  $\theta(z) = 2 \arctg \left( \exp \frac{z}{\sqrt{A/K}} \right)$  avec la direction  $z$  perpendiculaire à la surface de la paroi. L'épaisseur et l'énergie par unité de surface d'une paroi de Bloch à  $180^\circ$  sont respectivement égales à  $\pi \sqrt{\frac{A}{K}}$  et  $4 \sqrt{AK}$  [Landau L., 1935].

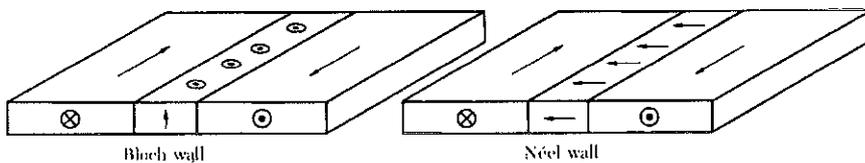


Figure III-A-4: Schématisation d'une paroi de Bloch et d'une paroi de Néel dans une couche mince [Kittel C., 1986]

Néel [1955] a montré que dans les couches suffisamment minces (<50-100 nm), les parois de Bloch dont la surface est perpendiculaire au plan des couches ne sont plus stables car l'énergie associée à l'existence de charges en surface serait beaucoup trop importante. La paroi de Bloch est alors remplacée par une paroi de Néel à divergence non nulle mais dont l'aimantation tourne dans un plan parallèle aux couches, de façon à

supprimer les charges de surface, qui produisent un très fort champ démagnétisant dans une couche mince. Il a été également montré [Néel L., 1955; Kirchner R., 1968] que la paroi de Néel a une largeur plus grande que la paroi de Bloch.

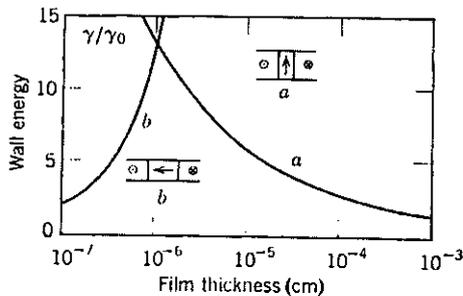


Figure III-A-6: Variation de l'énergie de paroi avec l'épaisseur de la couche mince: a) paroi de Bloch, b) paroi de Néel [Néel L., 1955]

### III.B. Rappel des études antérieures

Des tri-couches du type  $TR_{0,33}Co_{0,67}/TR'_{0,33}Co_{0,67}/TR_{0,33}Co_{0,67}$  ( $TR, TR' = Y, Zr, Sm, Nd, Gd, Er$ ), fabriquées par pulvérisation cathodique sont décrit dans la littérature [Dieny B., 1990, 1991; Ndjaka J.M., 1991, Alameda J.M., 1992]. Il s'agit de systèmes sandwich dans lesquels l'aimantation alterne d'une couche à l'autre et dont la coercitivité de chaque couche est différente. Les processus d'aimantation montrent des transitions, qui sont liées au retournement successif de l'aimantation des différentes couches constitutives du sandwich. Ces transitions sont associées à la création et la suppression de parois aux interfaces à cause du couplage d'échange entre moments de cobalt à travers tout l'échantillon.

Les auteurs proposent un modèle de milieux semi-infinis pour le système Y-Co/Gd-Co/Y-Co où l'énergie de la paroi et la largeur de la paroi seraient déterminées par la compétition entre énergie Zeeman et énergie d'échange

Alameda et al [1992] décrivent un système, où une couche douce de Co-Zr est placée entre deux couches dures de Sm-Co de coercitivités différentes. Pour une configuration antiparallèle des moments dans Sm-Co, ils prédisent l'existence d'une paroi dans la couche douce et reportent des processus d'aimantation presque réversibles dans Co-Zr, différents des processus observés dans une couche simple.

### III.C. Description des systèmes expérimentaux

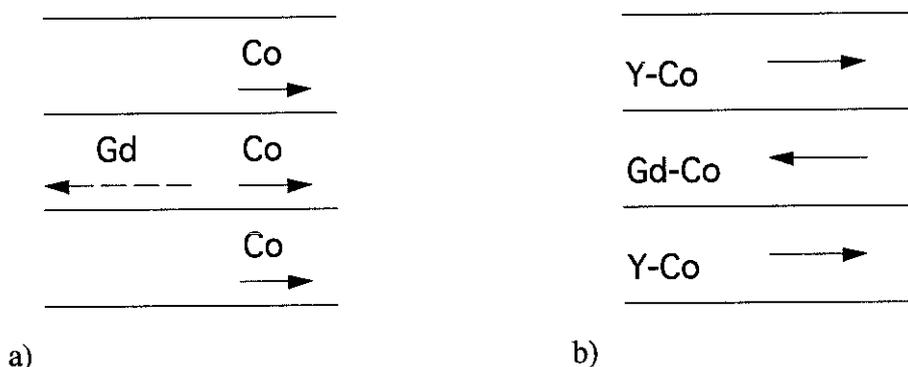
#### C.1. Différents types d'empilement

Notre étude s'est concentrée sur trois types de tri-couches différents, où le métal 3d est toujours du cobalt. Les principales interactions d'échange sont celles entre moments de cobalt et conduisent à un couplage des moments à travers toute l'épaisseur de la tricouche. Les terres rares alliées changent d'une couche à la couche voisine, d'où la variation de l'anisotropie magnétocristalline, de la coercitivité et de l'aimantation des couches constitutives et du type de couplage entre couches.

##### C.1.a. Système ferrimagnétique Y-Co/Gd-Co/Y-Co

Le système Y-Co/Gd-Co/Y-Co est constitué de trois couches magnétiquement douces, dont les deux couches extérieures sont identiques. Une particularité du système est l'absence d'anisotropie magnétocristalline significative.

Les moments de cobalt sont couplés par l'échange à travers toute l'épaisseur de l'échantillon, tandis qu'il y a couplage antiferromagnétique entre les moments de gadolinium et de cobalt (figure III-C-1a). Comme le moment de gadolinium domine le moment de cobalt pour les compositions choisies, les aimantations des couches voisines



*Figure III-C-1:*

*a) Schéma de l'orientation des moments magnétiques de Co et Gd en l'absence de champ extérieur*

*b) Schéma de l'orientation des aimantations résultantes de chaque couche dans Y-Co/Gd-Co/Y-Co*

alternent en l'absence de champ appliqué (figure III-C-1b), conduisant à un système macroscopiquement ferrimagnétique.

Les échantillons ont été obtenus par pulvérisation successive de cibles d'Y-Co et de Gd-Co dans l'appareillage de pulvérisation cathodique triode et dépôt sur des substrats de

verre. Le sandwich est protégé par des couches de nitrure de silicium de chaque côté. Un axe de facile aimantation a été induit dans le plan des couches par recuit sous champ (figure III-C-2). Nous avons préparé des tri-couches avec des épaisseurs de couches individuelles variées entre 50 nm et 300 nm.

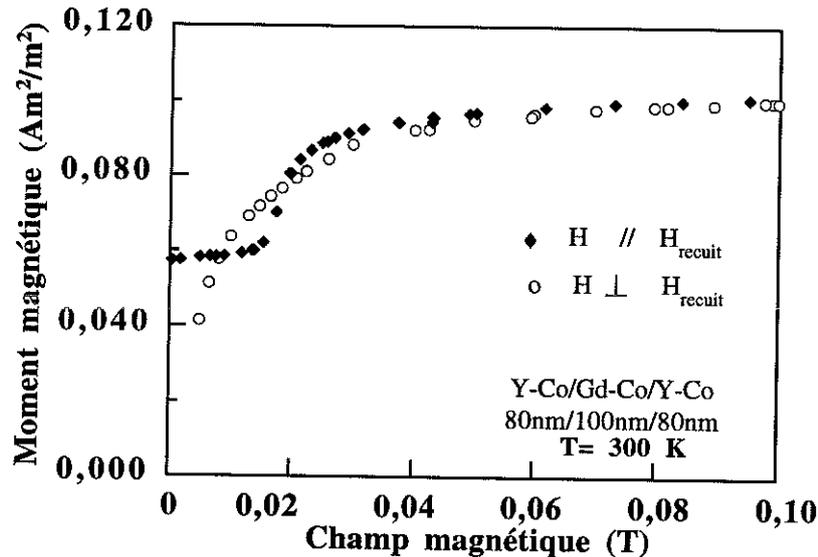


Figure III-C-2: Courbes d'aimantation à 300 Kelvin avec le champ appliqué dans la direction du champ de recuit et perpendiculairement à cette direction

### C.1.b. Système ferrimagnétique Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co'

Le système ferrimagnétique Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co' est caractérisé par une couche centrale en matériau magnétique doux, qui est comprise entre deux couches magnétiques dures de Sm-Co ayant des coercitivités différentes.

Dans les alliages de Sm-Co, il y a couplage ferromagnétique entre moments de samarium et de cobalt, tandis que les moments de gadolinium et de cobalt sont couplés antiferromagnétiquement, le moment de gadolinium dominant celui du cobalt pour les compositions choisies (figure III-C-3a).

En absence de champ appliqué (figure III-C-3b), il en résulte le même arrangement ferrimagnétique des aimantations que dans Y-Co/Gd-Co/Y-Co (à condition que l'échantillon n'ait pas encore subi une histoire particulière, comme ce sera expliqué plus loin).

Les échantillons ont été obtenus par pulvérisation cathodique magnétron. Ils sont déposés sur des substrats de silicium et protégés par une couche de tantale de chaque côté

de la couche magnétique. Les couches de Sm-Co sont en fait des multicouches décrites au paragraphe II.B.3.. Pour la couche centrale, une cible en alliage de Gd-Co a été

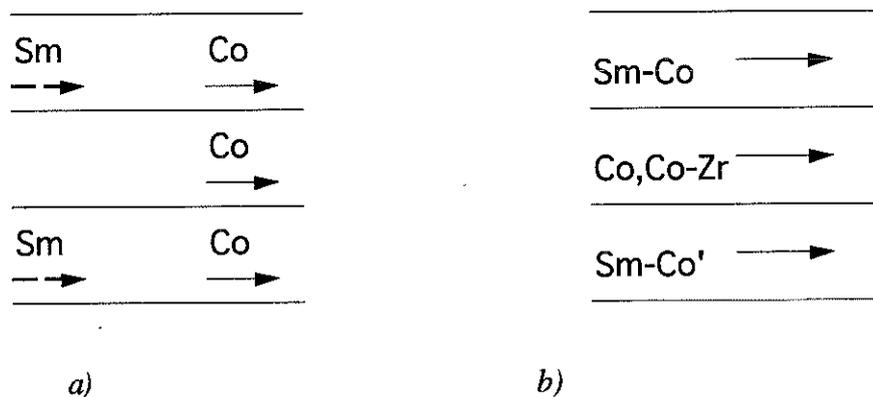


*Figure III-C-3:*  
 a) Schéma de l'orientation des moments magnétiques de Co, Sm et Gd en l'absence de champ extérieur  
 b) Schéma de l'orientation des aimantations résultantes de chaque couche dans Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co'

pulvérisée. Un axe de facile aimantation est induit dans le plan des couches par application d'un champ magnétique pendant le dépôt. Nous avons préparé une série d'échantillons  $\text{SmCo}_{4,1}/\text{Gd-Co}/\text{SmCo}_{8,2}$  (51nm/e/43nm) où l'épaisseur e de la couche centrale varie entre 43 nm et 880 nm.

**C.1.c. Système ferromagnétique Sm-Co/X/Sm-Co' (X=Co, Co-Zr)**

Les systèmes Sm-Co/X/Sm-Co' (X=Co, Co-Zr) sont constitués également d'une couche centrale en matériau magnétique doux, comprise entre deux couches magnétiques



*Figure III-C-4:*  
 a) Schéma de l'orientation des moments magnétiques de Co et de Sm en l'absence de champ extérieur  
 b) Schéma de l'orientation des aimantations résultantes de chaque couche dans Sm-Co/X/Sm-Co' (X=Co, Co-Zr)

dures de Sm-Co de coercitivités différentes.

Les moments de cobalt sont couplés à travers toute l'épaisseur de l'échantillon (figure III-C-4a). En absence de champ magnétique appliqué, les aimantations de toutes les couches sont orientées parallèlement (figure III-C-4b). Le système est macroscopiquement ferromagnétique.

Les couches ont été élaborées comme décrit au paragraphe précédent, III.C.1.c..

## C.2. Cycles d'hystérésis

Les courbes d'aimantation des empilements décrits au paragraphe III.C.1 sont caractérisées par plusieurs transitions lorsque le champ magnétique appliqué parallèle à l'axe de facile aimantation varie (figures III-C-5,7,8). Ces transitions sont liées aux renversements successifs de l'aimantation dans chaque couche individuelle pour une valeur de champ extérieur, qui dépend de la coercitivité de la couche et du couplage magnétique entre couches.

### C.2.a. Processus d'aimantation dans le système ferrimagnétique Y-Co/Gd-Co/Y-Co

La courbe d'aimantation en fonction du champ, appliqué dans la direction de facile aimantation, mesurée pour l'échantillon  $YCo_{1,9}/GdCo_{2,3}/YCo_{1,9}$  (100nm/90nm/100nm) à 300 Kelvin, est montrée dans la figure III-C-5. Dans l'état saturé (III-C-4 1), les aimantations de toutes les couches sont alignées avec le champ extérieur. Dans cet état, les moments de cobalt des couches d'Y-Co sont parallèles et de même sens et les moments de cobalt de la couche de Gd-Co sont orientés antiparallèlement au sens du champ. Par conséquent les moments de cobalt devant changer de sens d'une couche à la suivante, nous supposons l'existence d'une large paroi de Bloch dans le sous-réseau de cobalt à chaque interface. Quand le champ diminue à partir de l'état saturé, l'existence de ces deux parois de Bloch explique la courbure observée en champ faible dans les courbes d'aimantation et l'existence d'une transition pour un champ positif  $\mu_0 H_t$  de 19,5 mT, le saut de moment à la transition étant de  $\Delta m_t \sim 24 \times 10^{-3} \text{ Am}^2/\text{m}^2$ . En champ nul, le système présente un moment rémanent bien défini: les moments de cobalt sont alignés à travers tout l'échantillon, après suppression des parois de Bloch, minimisant ainsi l'énergie totale en l'absence d'énergie Zeeman. Pour l'échantillon décrit ici, le moment magnétique de Y-Co est supérieur au moment de Gd-Co et reste donc aligné avec le champ en -dessous du champ de transition.

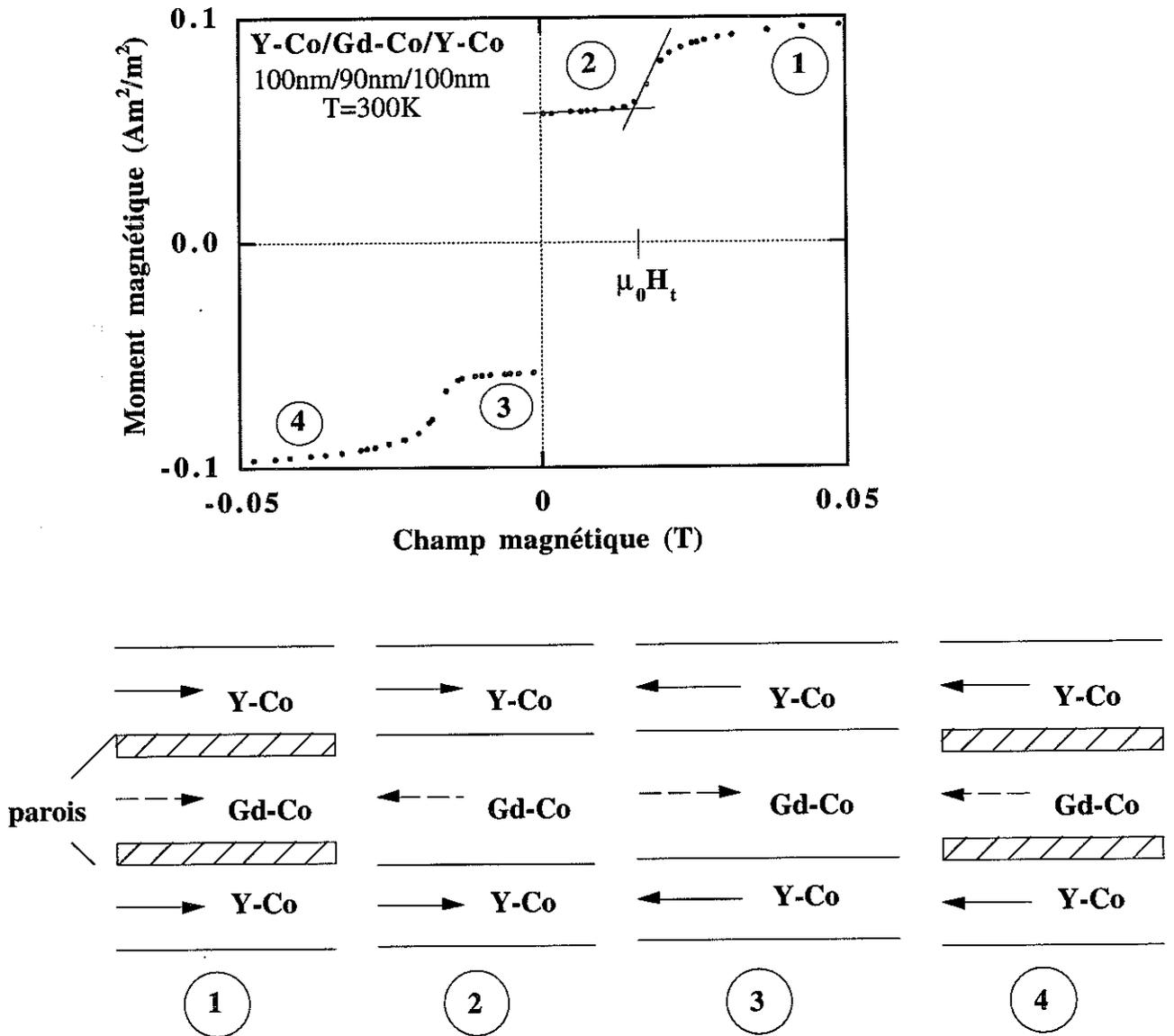


Figure III-C-5: Variation du moment magnétique d'un échantillon de Y-Co/Gd-Co/Y-Co en fonction du champ appliqué à 300 Kelvin et schéma d'orientation des aimantations dans chaque couche correspondant aux différents états de la courbe

Pour des échantillons avec des couches de Gd-Co plus épaisses, le moment magnétique de Gd-Co devient supérieur au moment de Y-Co et reste aligné avec le champ, la couche de Y-Co se renversant alors au champ critique. Ce comportement peut être montré par des mesures d'effet Kerr transverse, décrites au paragraphe I.C.2. Pour l'échantillon YCo<sub>1,9</sub>/GdCo<sub>2,3</sub>/YCo<sub>1,9</sub> (100nm/300nm/100nm) (figure III-C-6a), l'aimantation du cobalt des couches de Y-Co, qui est antiparallèle au champ en champ faible, se retourne

pour un champ critique  $\mu_0 H_t \sim 3 \text{ mT}$ . On observe une discontinuité du signal Kerr à la transition, puis pour un champ supérieur au champ de transition une augmentation

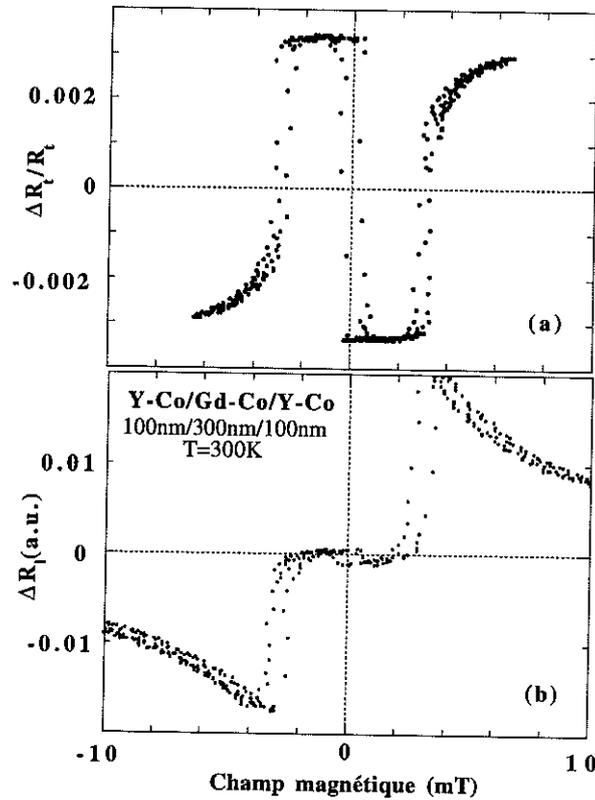


Figure III-C-6:

Pour  $\lambda=67 \text{ nm}$ , les effets Kerr magnéto-optiques sont sensibles essentiellement aux moments magnétiques de cobalt et sondent une profondeur de quelques dizaines de nanomètres en-dessous de la surface.

a) Le renversement des moments de cobalt induit une variation du signal d'effet Kerr transverse, grossièrement proportionnel à la composante de l'aimantation du cobalt parallèle au champ appliqué

b) La variation du signal de l'effet Kerr longitudinal dépend essentiellement de la composante de l'aimantation dans le plan et perpendiculaire au champ appliqué.

continue du signal jusqu'à la saturation. Nous expliquons ce comportement par l'existence d'une paroi de Bloch étendue dont la largeur décroît lorsque le champ augmente jusqu'à l'alignement de tous les moments de cobalt des couches d'Y-Co dans la direction du champ.

L'existence de ces parois de Bloch est également observée par effet Kerr longitudinal. La variation du signal d'effet Kerr longitudinal dépend essentiellement de la composante de l'aimantation de cobalt dans le plan de la couche et perpendiculaire au champ appliqué. En-dessous du champ de transition, il n'y a pas de composante perpendiculaire au champ appliqué, caractéristique d'un état mono-domaine pour chaque couche. Juste au-dessus

de la transition, le signal est maximal et décroît en champ croissant, en accord avec la décroissance progressive de la largeur de paroi. Ceci est une confirmation expérimentale de l'existence d'une paroi de Bloch plane parallèle à la surface.

La transition en champ plus faible, correspondant à la transition entre les états 2 et 3 des figures (figure III-C-5a,b), est due au renversement du moment total du sandwich. Ce cycle d'hystérésis central est caractérisé par un champ coercitif très faible entre 0,5 et 1mT et un moment rémanent en champ nul, qui correspond à la différence des moments des couches simples d'Y-Co et de Gd-Co couplées antiferromagnétiquement et alignés dans le plan des couches dans la direction du champ de recuit.

Quand le champ est appliqué perpendiculairement à l'axe facile (figure III-C-2), aucune transition n'a lieu et le processus d'aimantation correspond à une rotation progressive de l'aimantation de chaque couche de l'axe facile vers la direction du champ appliqué, avec création d'une paroi à chaque interface dans le milieu de cobalt.

### **C.2.b. Processus d'aimantation dans le système ferrimagnétique Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co'**

La figure III-C-7 montre le cycle d'hystérésis mesuré pour l'échantillon  $\text{SmCo}_{3,3}/\text{GdCo}_{1,62}/\text{SmCo}_{6,3}$  (45nm/82nm/50nm). Dans l'état saturé, les moments des couches de Sm-Co et le moment de gadolinium sont alignés parallèlement au champ, tandis que les moments de cobalt de la couche de Gd-Co sont orientés en sens inverse. Par conséquent il existe une paroi de Bloch au voisinage de chaque interface, tandis qu'il n'en existe pas en champ nul (figure III-C-7-1). Quand le champ est diminué à partir de l'état saturé, l'existence de ces deux parois de Bloch explique la courbure observée en champ faible dans les courbes d'aimantation, ainsi que la transition, qui a lieu pour une faible valeur de champ positive ( $H_t$ ). Remarquons qu'en champ nul, le moment mesuré est négatif, cela signifie que c'est le moment le plus grand qui se retourne à la transition, contrairement à ce qui se passe pour le système Y-Co/Gd-Co/Y-Co. En champ nul, tous les moments de cobalt sont alignés à travers tout l'échantillon, après suppression des parois de Bloch, minimisant ainsi l'énergie d'échange totale en l'absence d'énergie Zeeman. Par la suite l'application d'un champ en sens opposé ne change pas la valeur du moment magnétique global, ce qui indique une configuration mono-domaine pour chaque couche (figure III-C-7-2). L'augmentation du champ appliqué en sens inverse induit une seconde transition à  $H_1$ . Cette transition correspond au renversement d'aimantation dans la couche de Sm-Co la moins coercitive et est accompagnée par la création d'une seule paroi de Bloch dans la couche de Gd-Co pour minimiser les fortes interactions d'échange

entre moments de cobalt à travers tout l'échantillon (figure III-C-7-3). Une dernière transition se produit au champ  $H_2$ , quand la deuxième couche de Sm-Co avec un champ coercitif plus élevé se renverse avec création d'une seconde paroi de Bloch dans Gd-Co à la seconde interface (figure III-C-7-4).

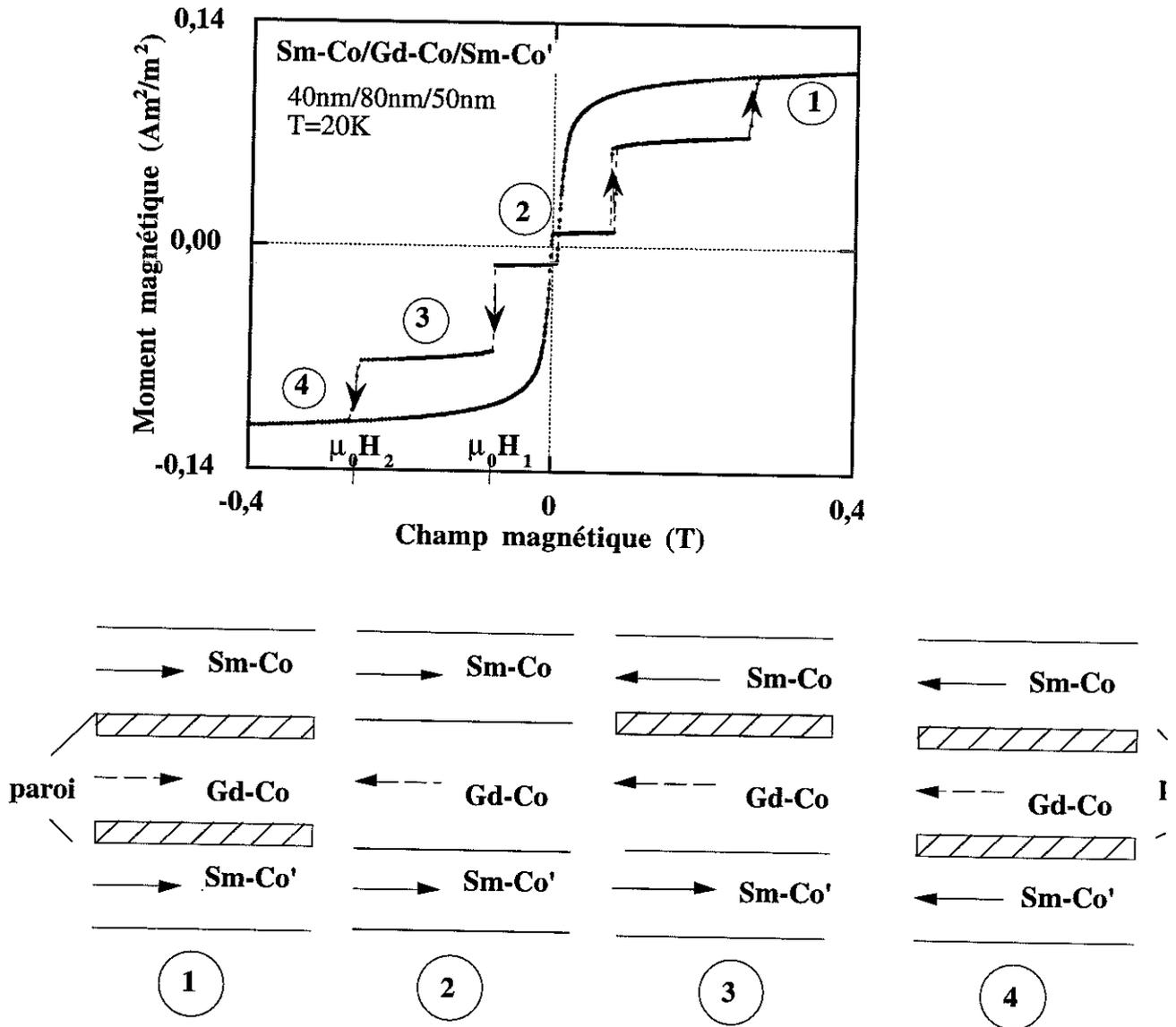


Figure III-C-7:  
Variation du moment magnétique d'un échantillon de Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co' en fonction du champ appliqué à 20 Kelvin et schéma d'orientation des moments dans chaque couche correspondant aux différents états de la courbe d'aimantation

Les moments magnétiques par unité de surface  $m_s$ , calculés pour les tri-couches à partir des aimantations  $M_s$  des couches simples de Sm-Co et de Gd-Co de même composition et de la relation

$$m_s = e_{\text{Sm-Co}} M_s^{\text{Sm-Co}} - e_{\text{Gd-Co}} M_s^{\text{Gd-Co}} \quad (\text{III.C.1})$$

sont en bon accord avec les aimantations des tri-couches mesurées en champ faible (tableau III-C-1). Cette observation confirme le couplage antiparallèle des aimantations des couches mono-domaines de Sm-Co et de Gd-Co dont les moments sont dans le plan et orientés parallèlement à l'axe de facile aimantation.

| épaisseur de la couche centrale<br>$e(\text{nm})$ | Aimantation spontanée mesurée<br>$m_s$<br>( $10^{-3}\text{Am}^2/\text{m}^2$ ) | Champ de transition<br>$\mu_0 H_t$ (mT) | Saut d'aimantation mesuré<br>$\Delta m_t$<br>( $10^{-3}\text{Am}^2/\text{m}^2$ ) | Aimantation spontanée calculée<br>$m_s$<br>( $10^{-3}\text{Am}^2/\text{m}^2$ ) |
|---|---|---|--|--|
| 43  | 27,3  | 34                                      | 70   | 21,5   |
| 80  | -1,7  | 15                                      | 141  | -14,5  |
| 142   |   | <0,5                                    | 226  | -74,8  |
| 175   | -105  | <0,5                                    | 317  | -107   |
| 283   | -214  | <0,5                                    | 540  | -212   |
| 530   | -429  | 0,9                                     | 1024   |  |
| 880   | -788  |   | 1881   | -793   |

Tableau III-C-1: Paramètres déduits des courbes d'aimantation à 10 Kelvin des échantillons Sm-Co /Gd-Co/Sm-Co' pour différentes épaisseurs  $e$  de la couche centrale

On remarque que les valeurs du champ appliqué, pour lesquelles les aimantations des couches de Sm-Co dans la tri-couche se retournent, sont plus élevées que les champs coercitifs des couches simples correspondantes (tableau III-C-2).

| Température<br>$T(\text{K})$ | champ coercitif d'une couche simple de SmCo <sub>8,2</sub><br>$\mu_0 H_{\text{coer1}}(\text{mT})$ | champ de retournement de SmCo <sub>8,2</sub> dans les tri-couches<br>$\mu_0 H_1(\text{mT})$ | champ coercitif d'une couche simple de SmCo <sub>4,1</sub><br>$\mu_0 H_{\text{coer2}}(\text{mT})$ | champ de retournement de SmCo <sub>4,1</sub> dans les tri-couches<br>$\mu_0 H_2(\text{mT})$ |
|------------------------------|---|---|---|---|
| 10                           | 70,3  | 110,3   | 209   | 328,2   |
| 80                           | 43,6  | 80,4  | 130   | 200,0   |
| 300                          | 15,4  | 31,8  |   | 63,6  |

Tableau III-C-2: Comparaison des champs de renversement d'aimantation de couches individuelles entre couche simple et la couche de même composition dans les tri-couches Sm-Co/ e Gd-Co/Sm-Co' ( $43\text{nm} < e < 880\text{nm}$ )

### C.2.c. Processus d'aimantation dans les systèmes ferromagnétiques Sm-Co/X/Sm-Co' (X=Co, Co-Zr)

La figure III-C-8 montre un exemple de cycle d'hystérésis d'un système ferromagnétique mesurée pour l'échantillon  $\text{SmCo}_{3,5}/\text{Co}_{0,95}\text{Zr}_{0,05}/\text{SmCo}_{6,3}$  (44nm/195nm/43nm) Dans l'état saturé, tous les moments de cobalt sont alignés dans la

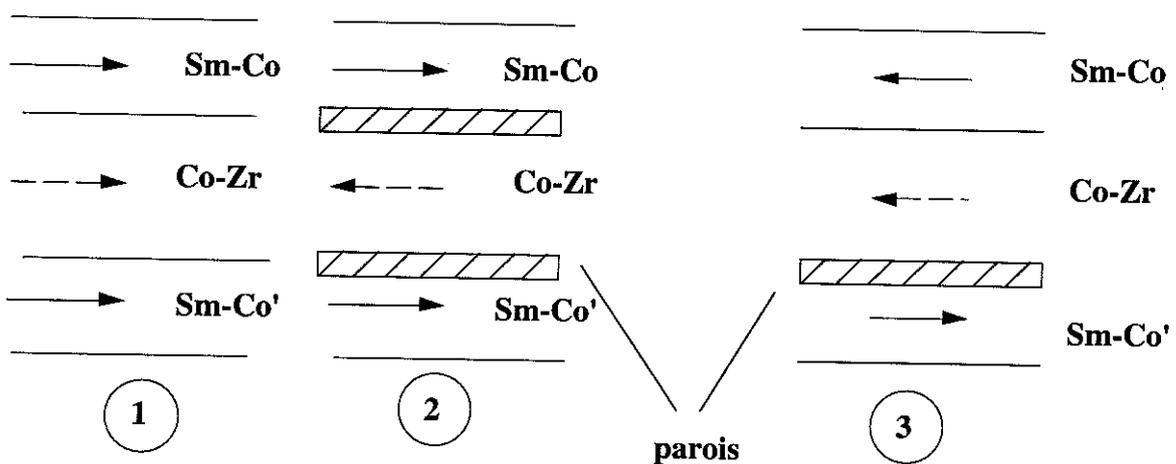
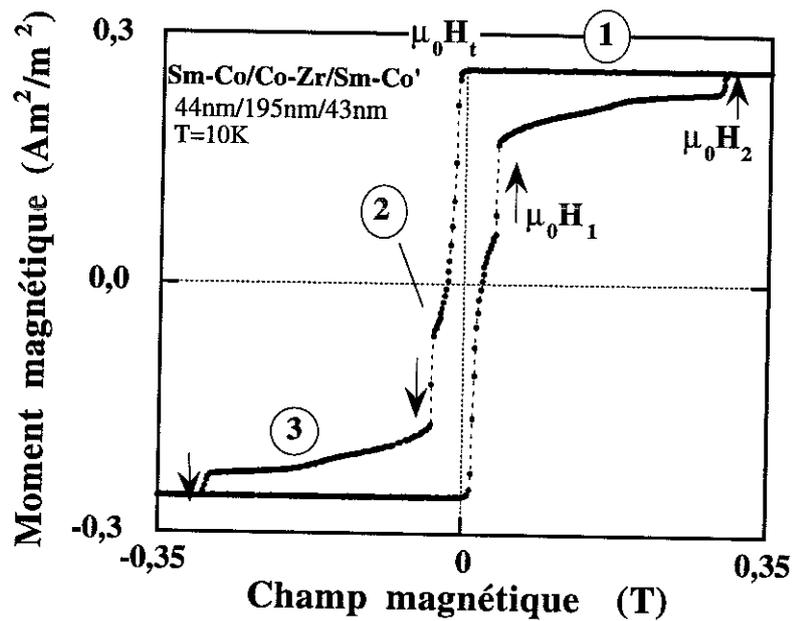


Figure III-C-8:  
Variation du moment magnétique de Sm-Co/X/Sm-Co' (X=Co, Co-Zr) en fonction du champ appliqué à 10 Kelvin (Les flèches indiquent des évolutions irréversibles)  
Schéma d'orientation des moments dans chaque couche correspondant aux différents états de la courbe d'aimantation

direction du champ et il n'existe pas de parois de Bloch dans cet état. Pendant la diminution du champ appliqué jusqu'à zéro, le moment magnétique global reste constant, ce qui est la signature d'une configuration mono-domaine pour chaque couche (figure III-C-8-1). L'application d'un champ négatif diminue le moment magnétique total. La première transition au champ négatif  $H_t$ , est attribuée au renversement de l'aimantation dans la couche douce centrale accompagné par la création d'une paroi à chaque interface (figure III-C-8-2). Les transitions suivantes à  $H_1$  et  $H_2$  sont dues aux renversements des moments magnétiques des couches extérieures de Sm-Co (figure III-C-8-3) et de Sm-Co' accompagnées de la suppression d'une paroi à chaque transition.

### C.3. Géométrie des parois dans les systèmes sandwich

La description des systèmes étudiés a montré que les processus d'aimantation s'expliquent qualitativement par des structures mono-domaines simples, avec présence possible d'une ou deux parois pour minimiser l'énergie d'échange dans le sous-réseau de cobalt.

La symétrie des systèmes sandwich de ces matériaux amorphes, et l'existence de couches mono-domaines impose une géométrie de paroi étendue à toute l'interface et dont les moments tournent dans des plans parallèles aux interfaces (figure III-C-9). Ces parois sont donc des parois de Bloch, mais dont la rotation des moments s'effectue suivant l'épaisseur de la couche. Cette situation est différente des parois de Bloch traditionnelles, dont la surface de la paroi est perpendiculaire aux surfaces du matériau (figure III-C-4), développant ainsi des charges magnétiques en surface peu favorables dans des couches trop minces.

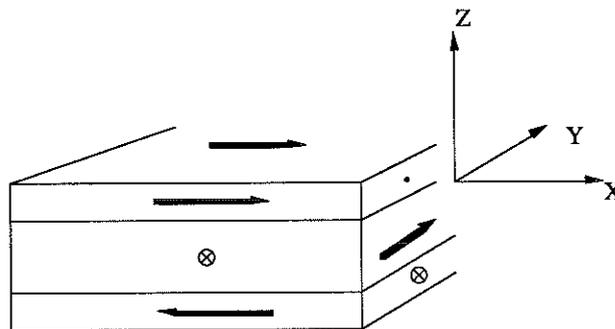


Figure III-C-9: Géométrie des parois de Bloch dans les systèmes sandwich

Remarquons que les parois de Bloch dont nous supposons l'existence dans les systèmes sandwich sont favorables du point de vue de l'énergie magnétostatique, car la distance entre pôles suivant  $Ox$  ou  $Oy$  est très grande devant l'épaisseur de la couche selon  $Oz$ . Cette géométrie de paroi dans ces systèmes sandwich sera montrée de façon quantitative par les simulations numériques décrivant les processus d'aimantation observés.

### III.D. Transition liée au retournement d'aimantation dans une couche en matériau doux couplée par l'échange

#### D.1. Observations expérimentales

Dans ce paragraphe nous discutons le retournement d'une couche en matériau magnétique doux dans une tri-couche dont les différentes couches sont couplées par l'échange. Dans nos échantillons, cette situation correspond à la première transition, qui se produit après saturation de l'échantillon, lorsque le champ appliqué est diminué et son sens éventuellement inversé.

Dans les systèmes composés de deux couches externes coercitives et d'une couche centrale en matériau magnétiquement doux (Sm-Co/X/Sm-Co' avec X=Gd-Co, Co-Zr, Co), cette transition est toujours liée au retournement de l'aimantation de la couche centrale. Pour des tri-couches faites entièrement de matériaux doux (telles que Y-Co/Gd-Co/Y-Co), ce sont les couches ayant les moments magnétiques les plus faibles qui se retournent.

Dans les systèmes du type Y-Co/Gd-Co/Y-Co ou Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co', le couplage antiferromagnétique entre couches constitutives conduit à une transition pour un champ  $H_t$  positif entre l'état saturé (figures III-C-5-1 et III-C-8-1) et un état ferrimagnétique macroscopique (figures III-C-5-2 et III-C-8-2) (paragraphe III.C.1.a,b et III.C.2.a,b), si on part de la saturation en champ positif. La figure III-D-1b montre un cas particulier où les aimantations des couches de Y-Co et Gd-Co se compensent presque complètement conduisant en une aimantation totale presque nul en champ faible.

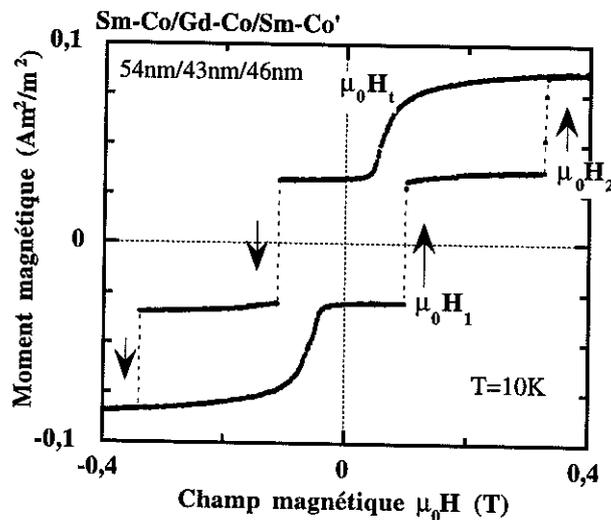


Figure III-D-1a: Courbe d'aimantation de Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co' (54nm/43nm/46nm) à 10 Kelvin (Les flèches indiquent des évolutions irréversibles.)

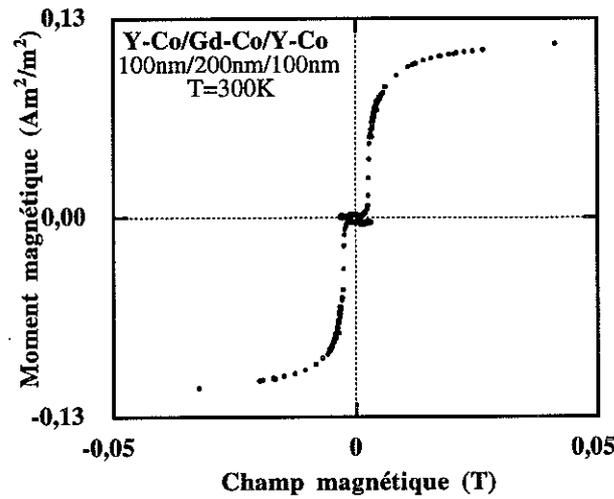


Figure III-D-1b:  
 Courbe d'aimantation de Y-Co/Gd-Co/Y-Co (100nm/200nm/100nm) à 300K

Pour les systèmes ferromagnétiques Sm-Co/Co/Sm-Co' et Sm-Co/Co-Zr/Sm-Co' saturés en champ positif, il faut appliquer des champs négatifs pour retourner l'aimantation de la couche centrale.

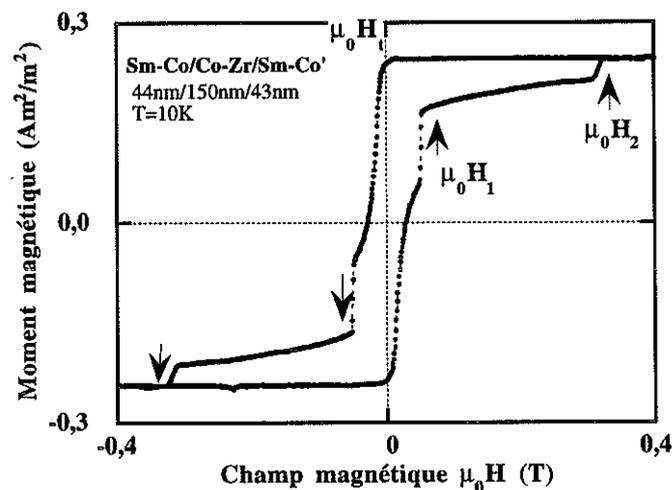


Figure III-D-2:  
 Courbe d'aimantation de SmCo/Co-Zr/Sm-Co' (44nm/150nm/43nm) à 10 Kelvin

Dans un système non-couplé, saturé en champ positif, le retournement de l'aimantation de Gd-Co, Co-Zr ou Co se ferait dans un faible champ négatif correspondant au champ coercitif du matériau.

Le retournement du moment magnétique de la même couche au milieu d'une tri-couche s'accompagne de la création ou de la suppression d'une paroi à chaque interface avec les couches externes à cause du couplage d'échange entre moments de cobalt à travers tout l'échantillon.

Le champ de transition est alors défini par le bilan énergétique entre l'énergie de paroi et l'énergie Zeeman, une configuration monodomaine étant toujours énergétiquement plus favorable en champ faible. Le signe du champ de transition dépend de l'orientation du moment Zeeman par rapport au moment du cobalt.

Pour une tri-couche ferrimagnétique saturée, la transition en champ décroissant est liée à la suppression de deux parois aux interfaces entre la couche centrale et les couches externes, conduisant à un retournement de l'aimantation de la couche douce couplée dans un champ positif (figures III-C-5,8-1->2).

Pour une tri-couche ferromagnétique saturée, le retournement du moment de la couche centrale est lié à la création de deux parois (figures III-C-9-1->2). Cette transition ne se passe que lorsqu'un champ suffisamment fort est appliqué en sens opposé de l'aimantation.

Comme le montre la figure III-D-4, cette transition est réversible par rapport au sens de variation du champ magnétique, l'écart observé à champ croissant et à champ décroissant étant très faible.

#### D.1.a. Effet de l'épaisseur

Le champ de transition dépend de l'épaisseur  $e$  de la couche dont l'aimantation est renversée et diminue lorsque  $e$  augmente (figures III-D-3,4,7).

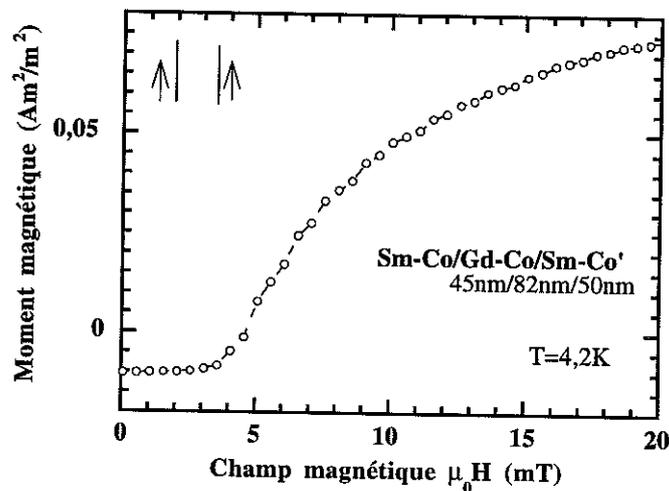


Figure III-D-3  
Transition entre l'état saturé et l'état à deux parois pour l'échantillon  
Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co' (45 nm/82nm/50nm)

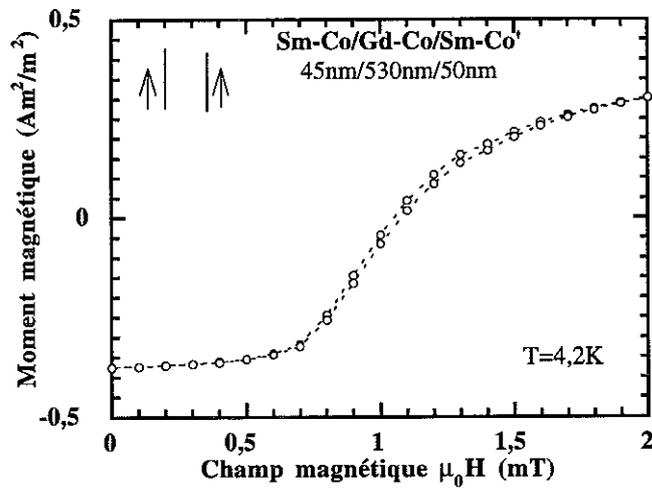


Figure III-D-4  
Transition entre l'état saturé et l'état à deux parois pour l'échantillon  
Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co (45 nm/530 nm/50nm)

Le champ de transition passe d'une valeur de  $\sim 34$  mT pour une épaisseur de la couche de Gd-Co de 43 nm à une valeur de  $\sim 0,8$  mT pour une couche de 530 nm d'épaisseur (figure III-D-7). Ce phénomène est caractéristique d'un système de dimensions réduites, où il y a compétition entre un terme d'énergie de surface lié à l'existence d'une énergie de paroi et l'énergie Zeeman, qui est un terme en volume.

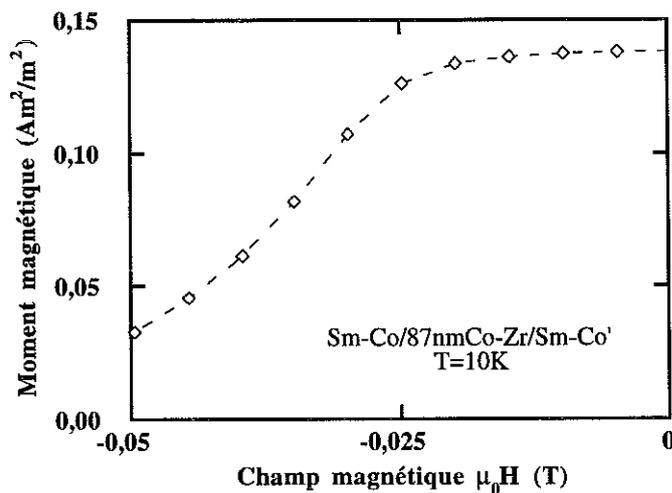


Figure III-D-5  
Transition entre l'état saturé et l'état à deux parois pour l'échantillon  
Sm-Co/Co-Zr/Sm-Co (44nm/87nm/43nm)

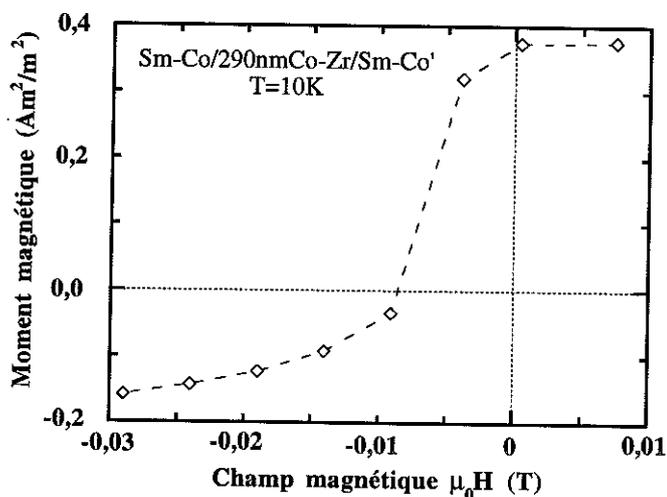


Figure III-D-6  
Transition entre l'état saturé et l'état à deux parois pour l'échantillon  
Sm-Co/Co-Zr/Sm-Co (44nm/290nm/43nm)

Le retournement de l'aimantation de la couche de cobalt ou de Co-Zr après saturation de l'échantillon exige la création de deux parois aux interfaces avec les couches de Sm-Co (figure III-C-9-1,2). Ce retournement est donc d'autant plus difficile, que la couche est plus mince. Ceci explique l'évolution du champ  $H_t$  avec l'épaisseur de la couche centrale, qui a son maximum pour l'épaisseur la plus faible (figure III-D-7).

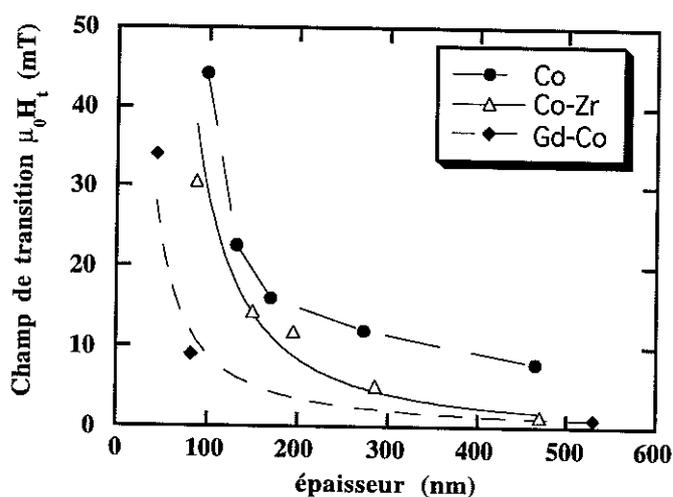


Figure III-D-7: Champ de transition en fonction de l'épaisseur de la couche centrale pour tous les systèmes Sm-Co/X/Sm-Co' (X=Co, Co-Zr, Gd-Co)

D.1.b. Effet de la température

La figure III-D-8 montre l'évolution des isothermes pour l'échantillon YCo<sub>1,9</sub>/GdCo<sub>2,3</sub>/YCo<sub>1,9</sub> (100nm/90nm/100nm) entre 5 et 300 Kelvin. Leur caractère général ne change pas en fonction de la température.

Pour cet échantillon, les aimantations des couches externes (Y-Co) restent toujours alignées avec le champ extérieur. Mais le changement de moment magnétique global à la transition ne correspond pas simplement à deux fois le moment de Gd-Co. Au-dessus de H<sub>t</sub>, à cause de l'existence des parois de Bloch, une partie des moments ne sont pas orientés dans le sens du champ. Néanmoins, le saut d'aimantation à la transition Δm<sub>t</sub> augmente à température décroissante, reflétant la variation thermique de Gd-Co.

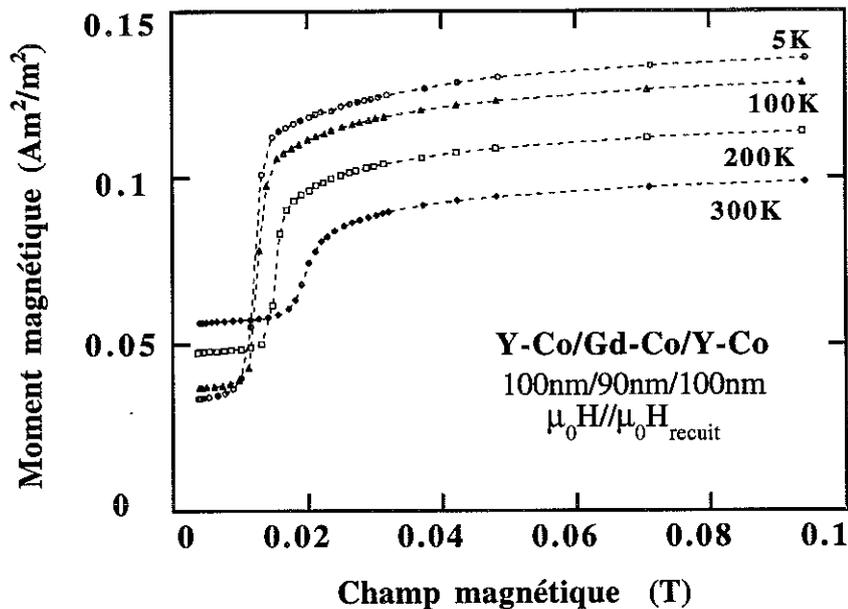


Figure III-D-8: Courbes d'aimantation à différentes températures entre 5 et 300 Kelvin

Pour des moments magnétiques dans le plan de la tri-couche et en tenant compte du couplage antiparallèle, le moment en champ faible peut être calculé à partir de

$$m_S(T) = e_{Y-Co} M_S^{Y-Co}(T) - e_{Gd-Co} M_S^{Gd-Co}(T) \quad (III.D.1)$$

où m<sub>S</sub> est le moment magnétique par unité de surface de la tri-couche, les M<sub>S</sub> sont les aimantations et e les épaisseurs des couches individuelles. A titre d'exemple, le tableau III-D-1

montre les moments magnétiques mesurés pour l'échantillon  $YCo_{1,9}/GdCo_{2,3}/YCo_{1,9}$  (140nm/60nm/140nm) et les moments magnétiques calculés pour la tri-couche à partir des moments des couches simples. Les moments spontanés  $m_s$  mesurés et calculés sont en bon accord et la variation d'aimantation  $\Delta m_t$  à la transition est de l'ordre de deux fois le moment de la couche de Gd-Co, puisque l'aimantation de la couche de Gd-Co a été retournée.

| Température<br>T(K) | Aimantation<br>spontanée<br>mesurée<br>$m_s(\text{Am}^2/\text{m}^2)$ | Champ de<br>transition<br>$\mu_0 H_t(\text{mT})$ | Saut<br>d'aimantation<br>mesuré<br>$\Delta m_t(\text{Am}^2/\text{m}^2)$ | Aimantation<br>spontanée<br>calculée<br>$m_s(\text{Am}^2/\text{m}^2)$ |
|---------------------|--|--|---|---|
| 5                   | 70,6   | 8,7  | 72,8  | 63,7  |
| 50                  | 68,9   | 9,3  | 71,4  | 62,2  |
| 100                 | 69,3   | 9,5  | 69,7  | 62,5  |
| 150                 | 69,9   | 9,9  | 58,4  | 62,5  |
| 200                 | 69,6   | 10,5   | 48,7  | 62,6  |
| 250                 | 68,3   | 9,8  | 25,6  | 62,0  |
| 300                 | 65,7   | 10,5   | 27,2  | 62,2  |

Tableau III-D-1: Paramètres déduits des isothermes de l'échantillon  $YCo_{1,9}/GdCo_{2,3}/YCo_{1,9}$  (140nm/60nm/140nm) et aimantations spontanées calculées à partir des couches simples

## D.2. Explication qualitative

La transition est associée à l'existence de deux parois de Bloch parallèles à la surface (figures III-C-5 et III-C-8). On utilise le terme "champ de transition  $H_t$ " lorsque le retournement de la couche est réversible et résulte de la stricte compétition entre énergie Zeeman et énergie de paroi (énergie d'échange et énergie d'anisotropie). Le champ de transition  $H_t$  est atteint, quand l'énergie Zeeman est suffisante pour compenser l'augmentation d'énergie  $2\gamma(H_t)$  associée à la création de deux parois:

$$\mu_0 H_t \Delta m_t = 2 \gamma(H_t) \quad (\text{III.D.2})$$

où  $\Delta m_t$  représente la variation du moment magnétique par unité de surface à la transition. Ce modèle est en accord avec la variation du champ de transition en sens inverse de l'épaisseur et donc du moment de la couche dont l'aimantation est renversée à la transition, que l'on

observe expérimentalement. Le fait que la transition dépende de l'épaisseur ne se produit pas dans un matériau massif. Il se produit ici, car il y a compétition entre un terme d'énergie de volume (Zeeman) et un terme d'énergie de surface (énergie de paroi).

Le même phénomène se produit lorsque le moment magnétique de la couche centrale diminue à température croissante: à haute température, le champ de transition est plus grand, parce que la variation du moment magnétique à la transition  $\Delta m_t$  est plus faible (figures III-D-7, 8, 9)

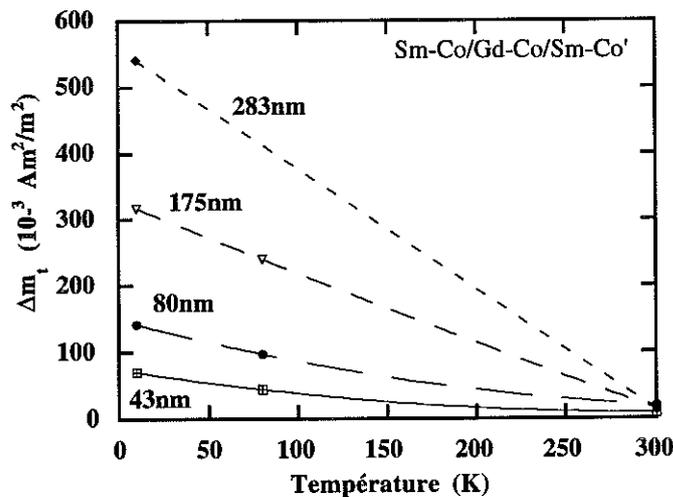


Figure III-D-9: Variation du moment magnétique à la transition en fonction de la température pour plusieurs épaisseurs e différentes du système Sm-Co/e Gd-Co/Sm-Co'

L'énergie de paroi correspond à l'augmentation d'énergie d'échange et d'anisotropie par rapport à l'état monodomaine de chaque couche. Elle peut être évaluée à partir des courbes

| Température<br>T(K) | Energie de<br>paroi<br>$\gamma_t(10^{-3}\text{J/m}^2)$ | Energie de<br>paroi<br>$\gamma_t(10^{-3}\text{J/m}^2)$ |
|---------------------|--|--|
|                     | (a)  | (b)  |
| 5                   | 0,460  | 0,317  |
| 50                  | 0,483  | 0,332  |
| 100                 | 0,441  | 0,331  |
| 150                 | 0,411  | 0,289  |
| 200                 | 0,336  | 0,256  |
| 250                 | 0,267  | 0,125  |
| 300                 | 0,232  | 0,143  |

Tableau III-D-2: Energies de paroi calculées à partir de la relation (III.D.2) pour YCo<sub>1,9</sub>/GdCo<sub>2,3</sub>/Y-Co<sub>1,9</sub>: a) (100nm/90nm/100nm), b) (140nm/60nm/140nm)

d'aimantation expérimentales, et des valeurs de  $H_t$  et de  $\Delta m_t$ , en utilisant la relation (III.D.2) (tableaux III-D-1,2). Les valeurs des énergies de paroi du système Y-Co/Gd-Co/Y-Co sont du même ordre de grandeur que ceux trouvés dans les systèmes analogues par J.M. Ndjaka [1990].

| Température<br>T(K) | Energie de paroi $\gamma_t$ ( $10^{-3} \text{J/m}^2$ ) |       |       |       |        |
|---------------------|--|-------|-------|-------|--------|
|                     | 43nm   | 80nm  | 175nm | 283nm | 530 nm |
| 10                  | 1,201  | 1,089 |       |       | 0,460  |
| 80                  | 0,761  | 0,393 | 0,456 |       |        |
| 300                 | 0,210  | 0,122 | 0,123 | 0,137 |        |

Tableau III-D-3: Energies de paroi calculées à partir de la relation (III.D.2) pour une série d'échantillons (Sm-Co) / (e Gd-Co) / (Sm-Co)' dont l'épaisseur e de la couche centrale varie entre 43 et 880 nm

De l'évaluation des énergies de paroi pour le système Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co' (tableau III-D-3), il ressort qu'à une température donnée l'énergie de paroi est d'autant plus grande, que l'épaisseur de la couche de Gd-Co, dans laquelle s'étendent les deux parois, est plus petite. Pour le système Y-Co/Gd-Co/Y-Co, la paroi s'étend dans les deux milieux doux et son énergie est plus grande pour une épaisseur totale plus petite (tableau III-D-2).

### D.3. Modèle analytique de paroi sans anisotropie

Pour analyser le comportement magnétique d'un système sans coercitivité du type Y-Co/Gd-Co/Y-Co, Dieny a développé un modèle analytique [1990], qui permet de montrer certaines propriétés caractéristiques de ce type de paroi.

Il considère une paroi créée au voisinage d'une interface séparant deux milieux semi-infinis, sans anisotropie d'aimantations  $M_1$  et  $M_2$  couplées antiferromagnétiquement. Ce modèle donne une énergie de paroi  $\gamma$  donnée par la relation:

$$\gamma = 4\sqrt{2} \mu_0 H A (\sqrt{M_1} + \sqrt{M_2} - \sqrt{M_1 + M_2}) \propto \sqrt{H A} \quad (\text{III.D.3})$$

et une largeur de paroi donnée par

$$\delta = \pi \sqrt{\frac{(M_1 + M_2) A}{2 M_1 M_2 \mu_0 H}} \propto \sqrt{\frac{A}{H}} \quad (\text{III.D.4})$$

où A est la constante d'échange entre atomes de cobalt. Ces relations rappellent les expressions en  $(AK)^{1/2}$  et en  $(A/K)^{1/2}$  donnant respectivement l'énergie et la largeur de paroi dans un milieu homogène caractérisé par une constante d'anisotropie K.

| Température<br>T(K) | Aimantation<br>Y-Co<br>M( $10^5$ A/m) | Aimantation<br>Gd-Co<br>M( $10^5$ A/m) | Constante<br>d'échange<br>A( $10^{-12}$ J/m)<br>(a) | Constante<br>d'échange<br>A( $10^{-12}$ J/m)<br>(b) |
|---------------------|---------------------------------------|--|---|---|
| 5                   | 3,54                                  | 5,91                                   | 23,0  | 15,3  |
| 50                  | 3,45                                  | 5,69                                   | 25,2  | 16,8  |
| 100                 | 3,32                                  | 5,53                                   | 23,6  | 18,6  |
| 150                 | 3,20                                  | 5,11                                   | 20,8  | 15,7  |
| 200                 | 3,08                                  | 3,95                                   | 16,0  | 13,7  |
| 250                 | 2,96                                  | 3,48                                   | 10,9  | 4,2   |
| 300                 | 2,84                                  | 2,86                                   | 9,0   | 6,3   |

Tableau III-D-4: Constantes d'échange calculées à partir de la relation (III.D.3) pour  $YCo_{1,9}/GdCo_{2,3}/YCo_{1,9}$  : a) (100nm/90nm/100nm), b) (140nm/60nm/140nm)

Le résultat important que montre ce modèle est, que la largeur de paroi et l'énergie de paroi dépendent de la valeur du champ appliqué, lorsque l'anisotropie est nulle ou très faible. La variation d'épaisseur avec le champ appliqué est en accord qualitatif avec les mesures d'effet Kerr (figure III-C-6).

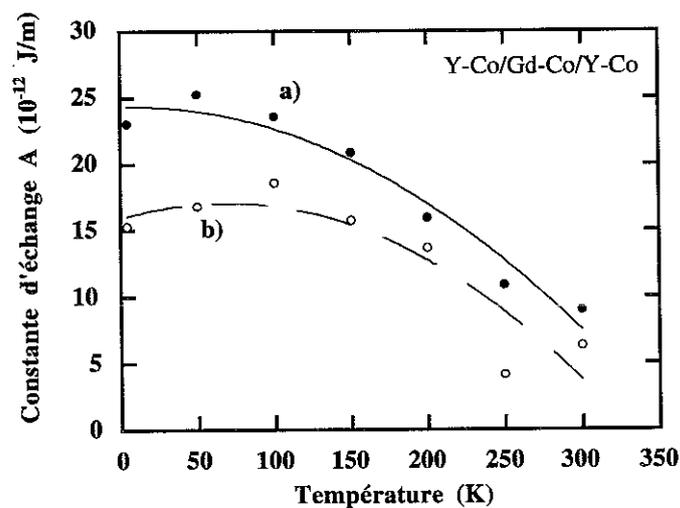


Figure III-D-10: Constantes d'échange calculées à partir de la relation (III.A.2) en fonction de la température pour  $YCo_{1,9}/GdCo_{2,3}/YCo_{1,9}$  : a) (100nm/90nm/100nm), b) (140nm/60nm/140nm) (les lignes sont des guides pour les yeux et non pas des fits)

A partir des valeurs expérimentales de  $M_1$ ,  $M_2$ , de la valeur de  $\gamma(H_t)$  évaluée à la transition à partir du bilan énergétique à la transition (relation III.D.2), il est possible à partir de la relation ci-dessus de calculer la constante d'échange  $A$  en fonction de la température (figure III-D-10) pour le système Y-Co/Gd-Co/Y-Co.

Avec ces résultats, la largeur de paroi à 5 Kelvin est donnée par  $\delta = 22,6 \text{ nm} / (\text{Tesla})^{1/2}$  pour l'échantillon  $\text{YCo}_{1,9}/\text{GdCo}_{2,3}/\text{YCo}_{1,9}$  (100nm/90nm/100nm) ( $\delta = 15,3 \text{ nm} / (\text{Tesla})^{1/2}$  pour l'échantillon 140nm/60nm/140nm) et  $\delta$  varie de 10 nm (6,8 nm) à 5 Tesla à 100 nm (68 nm) à 50 mT. Les épaisseurs de paroi calculées à partir de ce modèle sont comparables à l'épaisseur des couches analysées dans notre étude, ce qui montre la limite de validité du modèle analytique.

Avec la relation (III.D.2) relatant le bilan énergétique à la transition, la variation thermique du champ de transition est en accord qualitatif avec le modèle analytique, qui prévoit à partir des relations III.D.2 et 3 une variation inversement proportionnelle au carré du saut d'aimantation  $\Delta m_t$  soit

$$\mu_0 H_t(T) = \frac{32}{\Delta m_t^2(T)} A(T) (\sqrt{M_1(T)} + \sqrt{M_2(T)} - \sqrt{M_1(T)+M_2(T)})^2 \quad (\text{III.D.5})$$

En faisant varier la température de mesure, les variations de  $H_t$  avec  $\Delta m_t$  peuvent être étudiées pour un même échantillon. Le champ de transition varie de 12 mT à basse température à 20 mT à 300 Kelvin (figure III-D-11). Des relations (III.D.1) et (III.D.2) on attend que la variation thermique du champ de transition  $H_t$  doit être inversée par rapport à la variation thermique de

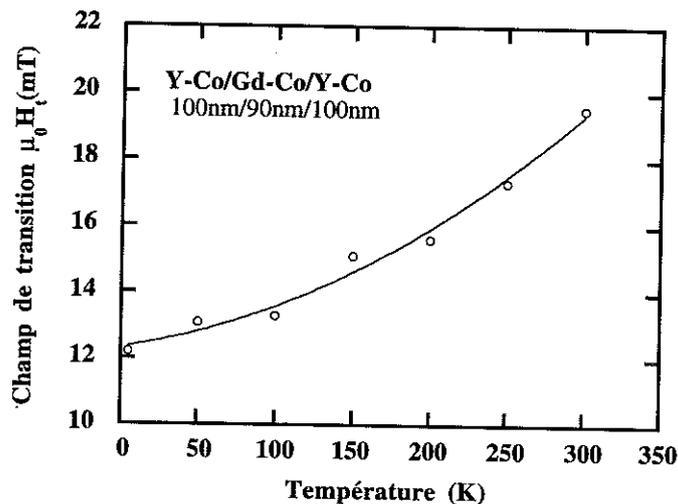


Figure III-D-11: Champ de transition du système  $\text{YCo}_{1,9}/\text{GdCo}_{2,3}/\text{YCo}_{1,9}$  (100nm/90nm/100nm) en fonction de la température (la ligne continue est un guide pour l'œil)

$\Delta m_t$  (III.D.5) puisque les variations thermiques de la constante d'échange et des moments des couches simples sont faibles devant le carré des variations du moment à la transition. La figure III-D-11 montre, que cette prédiction qualitative du modèle décrit bien la situation expérimentale. La vérification quantitative de cette relation nécessiterait des informations sur la variation thermique de la constante d'échange autres que celles déduites du modèle (tableau III-D-4).

Le modèle analytique ne décrit que de façon qualitative les résultats expérimentaux. Il ne permet pas de décrire un système où les dimensions des couches sont trop faibles par rapport aux largeurs de paroi, en particulier dans un système sandwich où deux parois s'étendent dans la couche centrale. L'approximation de deux milieux semi-infinis de chaque côté d'une seule interface où se développe la paroi est insuffisante pour décrire quantitativement ces systèmes. De plus pour décrire la variation de l'aimantation au passage de la transition, il faut tenir compte de la faible anisotropie induite par recuit sous champ dans ces systèmes (figure III-C-2), le champ d'anisotropie mesuré étant du même ordre de grandeur que le champ de transition.

### III.E. Renversement d'aimantation des couches coercitives dans des tri-couches couplées par l'échange

Nous discutons dans cette partie le renversement des couches de Sm-Co, qui interviennent dans plusieurs systèmes. Tous ces systèmes ont deux couches de Sm-Co de compositions différentes, qui conduisent à des coercitivités intrinsèques différentes. Nous avons désigné par  $H_1$  le champ de retournement de l'aimantation de la couche de Sm-Co la moins coercitive et par  $H_2$  le champ de retournement de la couche la plus coercitive.

#### E.1.a. Systèmes ferrimagnétiques

Pour le système Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co', les champs de retournement  $H_1$  et  $H_2$  des couches de Sm-Co (par exemple à 10 Kelvin  $\sim 110$  mT pour SmCo<sub>4,1</sub> et  $\sim 328$  mT pour SmCo<sub>8,2</sub>) sont supérieurs aux champs coercitifs des couches simples de même composition (70 mT et 209 mT). On n'observe pas d'évolution de  $H_1$  et  $H_2$  pour des épaisseurs de la couche centrale de Gd-Co variant entre 43 nm et 530 nm.

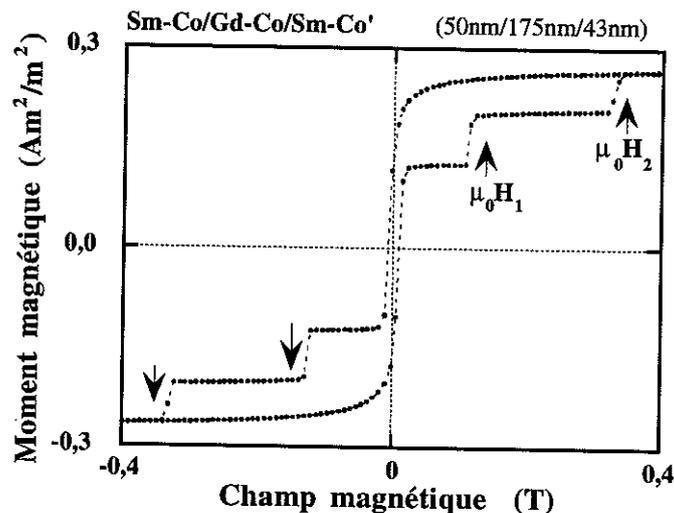


Figure III-E-1:  
Courbe d'aimantation de Sm-Co'/Gd-Co/Sm-Co' (50nm/175nm/43nm) à 10 Kelvin

#### E.1.b. Systèmes ferromagnétiques

Les systèmes concernés sont les systèmes à base de Co-Zr soit SmCo<sub>3,5</sub>/Co<sub>0,95</sub>Zr<sub>0,05</sub>/SmCo<sub>6,3</sub> (44nm/e/43nm) et ceux à base de cobalt SmCo<sub>3,0</sub>/Co/SmCo<sub>6,3</sub> (46nm/e/45 nm).

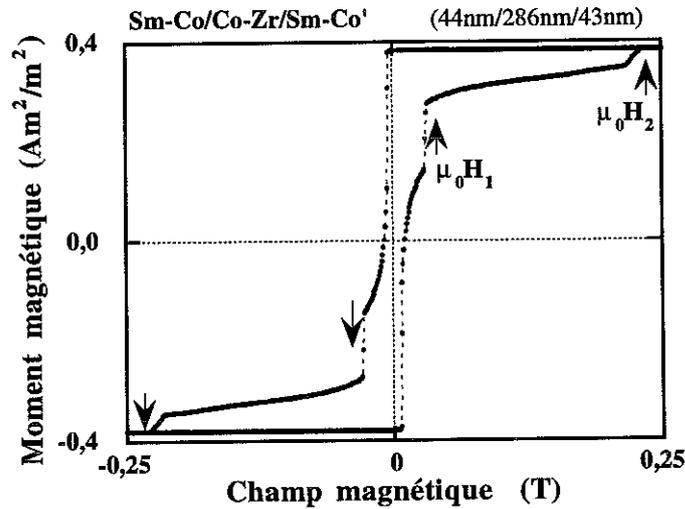


Figure III-E-2:  
 Courbe d'aimantation de Sm-Co/Co-Zr/Sm-Co' (44nm/286nm/43nm) à 10 Kelvin

Contrairement à ce qui se passe dans les systèmes ferrimagnétiques, les champs  $H_1$  et  $H_2$  sont presque toujours inférieurs aux champs coercitifs des couches simples de même composition (451 mT pour  $\text{SmCo}_3$ , 342 mT pour  $\text{SmCo}_{3,5}$  et 100 mT pour  $\text{SmCo}_{6,3}$ ).

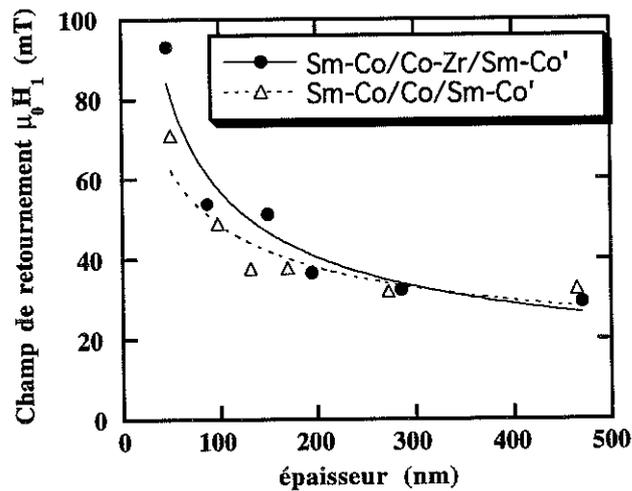


Figure III-E-3:  
 Champs  $H_1$  de retournement d'aimantation de la couche en Sm-Co moins coercitive dans  $\text{SmCo}_{3,0}/\text{Co}_{0,95}\text{Zr}_{0,05}/\text{SmCo}_{6,3}$  (44nm/e/43nm) et  $\text{SmCo}_{3,5}/\text{Co}/\text{SmCo}_{6,3}$  après saturation de l'échantillon en champ négatif en fonction de l'épaisseur de la couche centrale ( $T=10$  Kelvin)

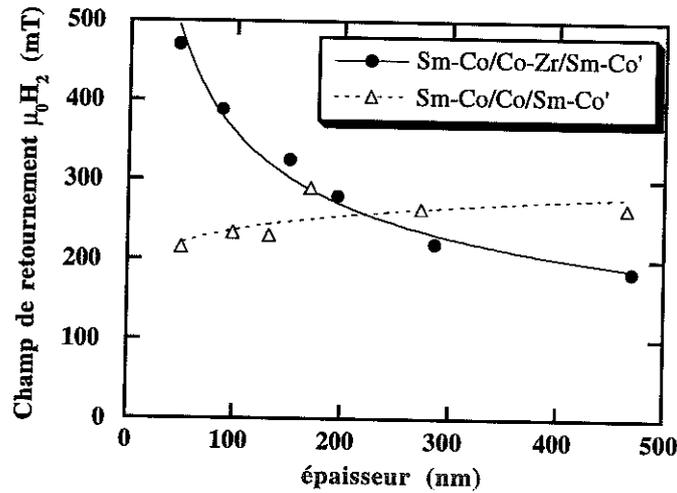


Figure III-E-4

Champs  $H_2$  de retournement d'aimantation de la couche de Sm-Co la plus coercitive dans  $SmCo_{3,0}/Co_{0,95}Zr_{0,05}/SmCo_{6,3}$  (44nm/e/43nm) et  $SmCo_{3,5}/Co/SmCo_{6,3}$  après saturation de l'échantillon en champ négatif en fonction de l'épaisseur de la couche centrale ( $T=10$  Kelvin)

De plus, comme le montrent les figures III-E-3 et 4, les valeurs des champs de retournement  $H_1$  et  $H_2$  dépendent de l'épaisseur  $e$  de la couche centrale et diminuent notablement lorsque  $e$  augmente dans une série donnée (à l'exception du  $H_2$  de la série avec le cobalt). Toutefois, l'échantillon le plus épais de la série ( $e \approx 1 \mu m$ ) ne suit plus cette diminution ( $\mu_0 H_1 = 50$  mT,  $\mu_0 H_2 = 235$  mT pour le cobalt et  $\mu_0 H_1 = 60$  mT,  $\mu_0 H_2 = 500$  mT pour Co-Zr).

### E.1.c. Discussion

Les champs de retournement de l'aimantation des couches constitutives dans une tri-couche sont décalés par rapport aux champs coercitifs des couches individuelles et dépendent des caractéristiques des couches voisines à cause du couplage d'échange entre couches. La création d'une paroi correspond à une augmentation d'énergie d'échange et d'anisotropie ( $\gamma$ ), qui ne peut être stabilisée que par une augmentation d'énergie Zeeman ( $2\mu_0 mH$ ). Par conséquent, on s'attend a priori à une augmentation du champ de retournement  $H_R$  par rapport au champ coercitif  $H_{Coer}$ , lorsqu'il est accompagné par la création d'une paroi:

$$H_R = H_{Coer} + \gamma(H_R) / 2 \mu_0 m \quad (\text{III.E.1.a})$$

et à une diminution, lors d'une suppression de paroi:

$$H_R = H_{Coer} - \gamma(H_R) / 2 \mu_0 m \quad (\text{III.E.1.b})$$

où  $m$  représente le moment magnétique de la couche de Sm-Co à retourner.

Nous avons réservé le terme "champ de retournement  $H_1$  ( $H_2$ )" pour le cas où ce champ dépend à la fois des propriétés magnétiques de la couche de Sm-Co, qui se retourne, et du couplage avec la couche douce voisine (ce type de transition est un processus irréversible indiqué par une flèche sur les courbes d'aimantation).

La différence de comportement entre les systèmes ferrimagnétiques et ferromagnétiques s'explique à partir d'une configuration en domaines différente, due à la nature du couplage entre les couches.

Dans le cas des *systèmes ferrimagnétiques*, le processus de retournement de chaque couche de Sm-Co doit s'accompagner de la création d'une paroi dans la couche de Gd-Co. En particulier, pour Gd-Co, le retournement de la couche de Sm-Co la moins coercitive au champ  $H_1$  s'accompagne simultanément de la création d'une paroi de Bloch dont l'énergie  $\gamma_1$  dépend du champ  $H_1$ , ce qui explique la variation de 70 mT à 110 mT des champs de retournement entre les couches simples et les couches couplées. Au champ  $H_2$ , il y a retournement de la couche de Sm-Co la plus coercitive avec création d'une nouvelle paroi dans la couche centrale, dont l'énergie  $\gamma_2$  est beaucoup plus grande que  $\gamma_1$  puisque  $|H_2| > |H_1|$ . Cette observation est en accord avec la variation beaucoup plus grande (de 209 mT à 328 mT) des champs de retournement de cette couche de Sm-Co entre la couche simple et la couche couplée.

Dans les *systèmes ferromagnétiques*, le retournement des couches de Sm-Co aux champs  $H_1$  et  $H_2$  est accompagné de la suppression d'une paroi (sauf pour quelques échantillons dont la couche centrale est très mince), ce qui pourrait expliquer à partir de la relation III.E.1.b. que les champs  $H_1$  et  $H_2$  sont inférieurs aux champs coercitifs des couches simples de même composition. Mais ce raisonnement n'explique pas la décroissance des champs  $H_1$  et  $H_2$  à épaisseur de la couche centrale croissante dans une série d'échantillons (figures III-E-3,4), car l'énergie de paroi est d'autant plus grande que l'épaisseur de la paroi est plus petite. Les mécanismes de retournement des couches coercitives doivent prendre en compte le couplage à la couche douce adjacente.

Dans le *système ferrimagnétique* à base de Gd-Co, pour retourner la couche de Sm-Co un mécanisme de nucléation doit prendre naissance dans la couche coercitive elle-même jusqu'à entraîner la création d'une paroi dans le milieu doux. Mais dans le cas d'un *système ferromagnétique* (dont la couche centrale est suffisamment épaisse) compte tenu de l'existence d'une paroi dans le milieu doux au voisinage de l'interface avec la couche de Sm-Co, on peut dire que la nucléation est déjà faite dans le milieu doux et qu'il doit y avoir propagation de cette paroi existante jusque dans la couche dure couplée. Ce mécanisme à l'origine du retournement de la couche de Sm-Co relève plus d'un mécanisme de rotation progressive des moments dans l'ensemble couche douce - couche dure couplées que d'un mécanisme de nucléation pure dans la couche coercitive. Il est plus difficile de prévoir l'évolution en fonction de l'épaisseur dans ce

cas: seules des simulations numériques pourraient apporter une justification de ce mécanisme ( voir chapitre IV).

## E.2. Renversement de la couche coercitive dans un cycle mineur

### E.2.a. Description expérimentale

Dans les systèmes à trois couches avec des couches coercitives, il est possible de décrire un cycle mineur dans la situation suivante. Après avoir saturé l'échantillon dans un champ (positif par exemple), on applique un champ en sens inverse jusqu'à renverser au champ  $-H_1$  la couche de Sm-Co la moins coercitive. En changeant alors le sens de variation du champ, on

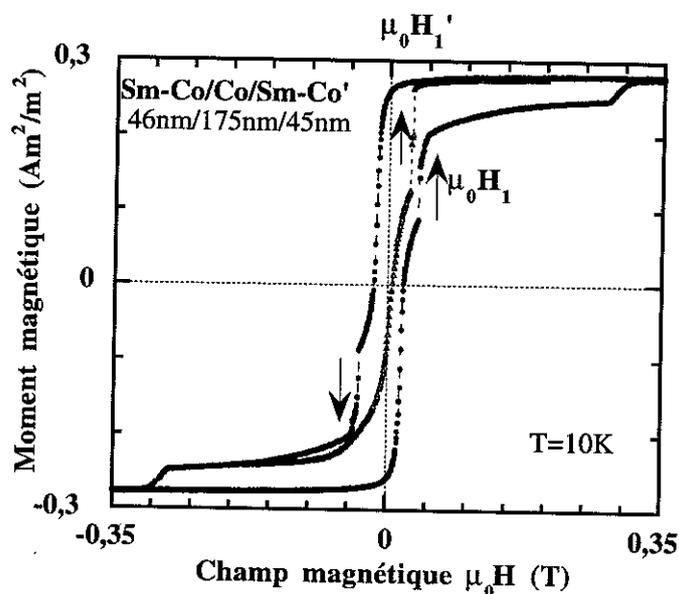


Figure III-E-5 Courbe d'aimantation avec cycle mineur à 10 Kelvin de l'échantillon  $SmCo_{3,0}/Co/SmCo_{6,3}$  (46nm/175nm/45 nm)

décrit un cycle mineur jusqu'au renversement pour un champ  $H_1'$  de la même couche de Sm-Co, pour revenir à l'état saturé. Les figures III-E-5,8,9 montrent des exemples de tels cycles mineurs. On remarque que pour plusieurs échantillons dont la couche centrale est constituée de Co-Zr ou de Co, le champ  $H_1'$  est inférieur au champ  $H_1$ , auquel on attendrait le retournement de la couche de Sm-Co. C'est le cas des systèmes ferromagnétiques. L'écart entre  $H_1$  et  $H_1'$  est d'autant plus grand que la couche centrale est plus mince (figures III-E-6,7). Ce champ est même négatif pour un échantillon à base de cobalt de 41 nm d'épaisseur. Pour les systèmes ferrimagnétiques étudiés (Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co'), on peut décrire également des cycles mineurs et il n'y a pas de différence appréciable entre  $H_1$  et  $H_1'$ .

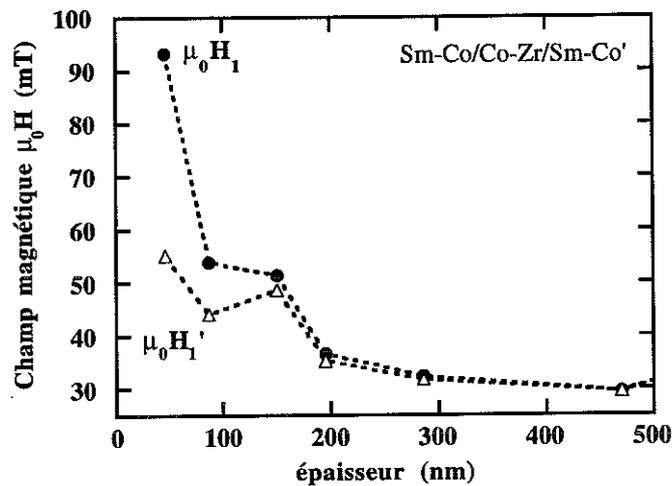


Figure III-E-6: Variation des champs de retournement d'aimantation de la couche  $SmCo_{6,3}$  en fonction de l'épaisseur de la couche de Co-Zr couplée dans  $SmCo_{3,5}/Co_{0,95}Zr_{0,05}/SmCo_{6,3}$  (44nm/e/43nm) à 10 Kelvin, où  $H_1$  correspond au retournement après saturation de l'échantillon en champ négatif et  $H_1'$  au retournement après orientation antiparallèle des moments des couches externes

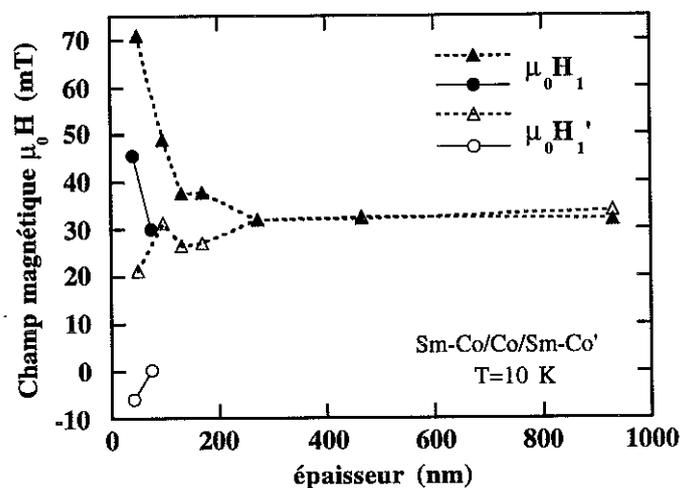


Figure III-E-7: Champs de retournement d'aimantation de la couche moins coercitive dans  $SmCo_{3,0}/Co/SmCo_{6,3}$  (46nm/e/45 nm) à 10 Kelvin, où  $H_1$  correspond au retournement après saturation de l'échantillon en champ négatif et  $H_1'$  au retournement après orientation antiparallèle des moments des couches externes

### E.2.b. Analyse de ces résultats

Le retournement de la couche de Sm-Co aux champs  $H_1$  et  $H_1'$  dépend du champ coercitif de la couche de Sm-Co et du couplage avec la couche voisine.

Pour les *systèmes ferrimagnétiques* (Gd-Co), au champ  $H_1$ , il y a passage d'un état monodomaine de l'ensemble des couches à un état avec une paroi. Le champ  $H_1$  correspond au champ coercitif de la couche de Sm-Co augmenté d'une quantité due à la création d'une paroi de Bloch (relation III.E.1.a). Au champ  $H_1'$  on passe d'un état à une paroi à l'état saturé de l'échantillon avec deux parois. Au champ  $H_1''$ , il y a donc également création d'une paroi, bien que dans des conditions assez différentes. Cela explique, qu'il n'y ait pas d'écart appréciable entre les champs  $H_1$  et  $H_1''$  pour les systèmes ferrimagnétiques.

Pour les *systèmes ferromagnétiques*, la situation est plus compliquée. Nous allons nous intéresser plus particulièrement à deux échantillons de la série Sm-Co/ e Co/ Sm-Co' d'épaisseurs  $e=41$  nm et  $e=75$  nm, dont les courbes d'aimantation sont présentées sur les figures III-E-8,9.

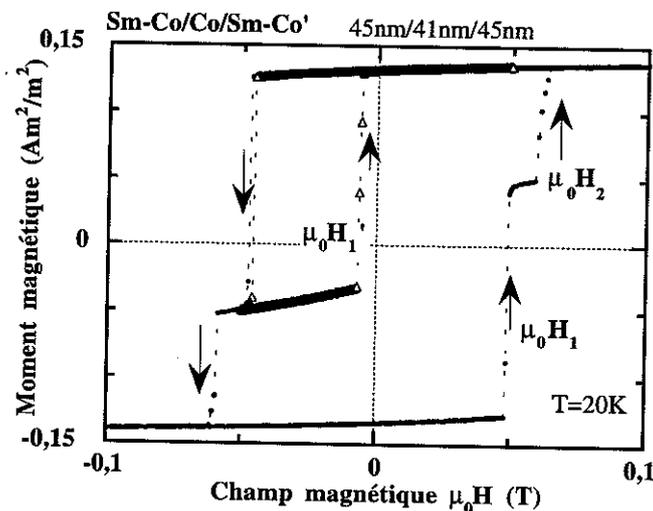


Figure III-E-8: Courbe d'aimantation avec cycle mineur, mesurée à 20 Kelvin, pour l'échantillon  $SmCo_{4,5}/Co/SmCo_9$  (45 nm/41nm/45 nm)

Si on applique un champ négatif à l'échantillon saturé en champ positif, le moment magnétique total dans l'échantillon avec  $e=75$  nm diminue (figure III-E-8), mais pas celui de la couche plus mince (figure III-E-7). La diminution du moment magnétique nécessite en effet le retournement de moments magnétiques de cobalt et la création d'au moins deux parois de Bloch dans la couche de cobalt. L'énergie de paroi étant d'autant plus grande que sa largeur est plus faible, il n'est pas possible d'en créer dans la couche la plus mince - au moins pour un champ inférieur au champ de retournement de la couche de Sm-Co la moins coercitive. En fait, pour ces deux échantillons, le moment magnétique de la couche centrale de cobalt et celui de Sm-Co sont retournés simultanément avec création d'une paroi de Bloch. Cette transition est particulièrement abrupte pour l'échantillon le plus mince. Le retournement de la deuxième couche de Sm-Co se fait dans un champ  $H_2$  proche de  $H_1$ , parce qu'il correspond à la suppression de la paroi de Bloch existante.

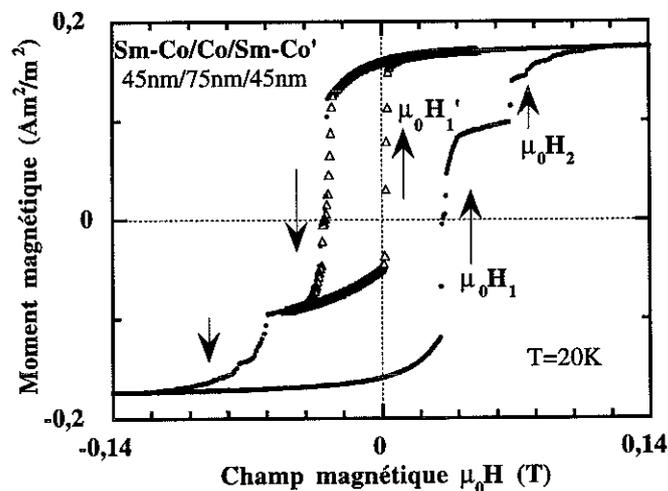


Figure III-E-9: Courbe d'aimantation avec cycle mineur, mesurée à 20 Kelvin, pour l'échantillon  $SmCo_{4,5}/Co/SmCo_9(45nm/75nm/45nm)$

Après application d'un champ  $-H_2 < H < -H_1$  à l'échantillon saturé en champ positif, la diminution de la valeur absolue du champ conduit à une transition vers l'état saturé pour un champ  $H_1'$ . Cette transition correspond au retournement de l'aimantation de la couche la moins coercitive de Sm-Co simultanément avec celle de la couche centrale en cobalt, mais elle a lieu pour un champ positif très faible ( $H_1' < H_1$ ) pour  $e=75$  nm, tandis qu'elle se produit dans un champ négatif pour  $e=41$  nm. Cette transition est associée à la suppression de la paroi de Bloch dans la couche de cobalt.

Les champs de retournement d'aimantation pour ce système couplé par l'échange s'expriment, à partir des relations (III.E.1.a) et (III.E.1.b) par

$$H_1 = H_{coer} + \gamma(H_1)/\mu_0 \quad 2m$$

$$H_1' = H_{coer} - \gamma(H_1')/\mu_0 \quad 2m$$

où les termes  $+\gamma(H_1)$  et  $-\gamma(H_1')$  correspondent respectivement à l'énergie de création d'une paroi dans le champ  $H_1$  et à l'énergie de suppression d'une paroi dans le champ  $H_1'$ . A partir de ces relations, et si on néglige la variation de l'énergie de paroi avec le champ appliqué ( $\gamma=\gamma(H_1)=\gamma(H_1')$ ) on peut estimer l'énergie de paroi

$$\gamma = \mu_0 (H_1 - H_1') \quad m \quad (III.E.2.c)$$

où  $m$  est le moment magnétique par unité de surface de la couche de Sm-Co dont l'aimantation est renversée. Une réflexion similaire a été faite par Tokunaga [1990] pour estimer l'énergie de paroi d'un système à anisotropie perpendiculaire.

A partir des valeurs expérimentales pour le moment magnétique et les champs de retournement on déduit  $\gamma(e=41nm)=2,0 \times 10^{-3} \text{ J/m}^2$  et  $\gamma(e=75 \text{ nm})=1,8 \times 10^{-3} \text{ J/m}^2$ .

Ces valeurs sont à comparer à l'énergie en champ nul d'une paroi sans anisotropie de largeur  $e$  donnée par la relation:

$$\gamma = \frac{J S^2 \pi^2}{a e} \quad (\text{III.E.3})$$

où  $J$  est la constante d'échange,  $S$  le spin,  $a$  la distance interatomique et  $e$  l'épaisseur de la couche, ces paramètres étant ceux, qui caractérisent la couche où se trouve la paroi.

Les énergies de paroi calculées à partir de cette relation avec les paramètres de la couche centrale de cobalt,  $\gamma(e=41\text{nm})=1,1 \times 10^{-3} \text{J/m}^2$  et  $\gamma(e=75 \text{ nm})=0,58 \text{ J/m}^2$ , sont du même ordre de grandeur que les énergies de paroi trouvées à partir de la relation III.E.2.c, qui utilise les champs de retournement.

### **III.F. Processus d'aimantation dans l'état à une paroi**

Les processus d'aimantation des tri-couches dépendent de l'histoire que l'on a fait subir à l'échantillon. Selon le cycle de températures ou la série de champs appliqués, différentes configurations peuvent être stabilisées.

Dans les tri-couches de type (Sm-Co)/X/(Sm-Co)', qui sont composées de couches externes magnétiquement dures avec des coercitivités différentes et une couche centrale X en matériau doux, une configuration peut être stabilisée, où les moments magnétiques des couches de Sm-Co pointent en sens opposés. Dans cet état, les processus d'aimantation dans la couche centrale sont presque réversibles et la susceptibilité pour un champ donné dépend de l'épaisseur de la couche.

#### **F.1. Création de l'état à une paroi**

Cet état est obtenu après saturation de l'échantillon (figure III-F-1-1) en appliquant un champ magnétique de sens opposé et d'amplitude entre  $H_1$  et  $H_2$  (figure III-F-1). Si l'échantillon a été saturé en champ positif, la configuration reste stable entre  $-H_2$  et  $H_1'$  (états 2 et 3 de la figure III-F-1). On obtient alors une variation réversible de l'aimantation, qui est due uniquement à la contribution de la couche centrale.

Dans cet état les couches de Sm-Co sont donc mono-domaines avec des aimantations en sens inverse et le couplage d'échange aux interfaces impose que les moments de cobalt de la couche centrale (Gd-Co, Co-Zr) à proximité de chaque interface soient orientés en sens opposés. On obtient bien, pour la répartition des moments magnétiques de cette couche, la géométrie d'une paroi de Bloch à  $180^\circ$ , qui s'étend sur toute la surface de l'échantillon, mais dont les faces externes sont fixées.

Ces matériaux (Gd-Co, Co-Zr) n'ont qu'une anisotropie très faible (car induite par un champ appliqué pendant la fabrication), et la largeur de paroi intrinsèque de ces systèmes est beaucoup plus grande que l'épaisseur de la couche centrale. De fait la largeur réelle de cette paroi est imposée par l'épaisseur de la couche centrale. En l'absence de champ magnétique appliqué, les moments magnétiques tournent régulièrement d'un bout à l'autre de la couche et l'énergie d'une telle paroi est donnée par la formule III.E.3.,  $\gamma = JS^2\pi^2/(ae)$ , et sera d'autant plus grande que son épaisseur est plus petite.

L'effet d'un champ magnétique est de faire tourner les moments magnétiques dans la direction du champ. Compte tenu du caractère amorphe du matériau, on attend un processus de rotation réversible, qui va dépendre de la couche centrale du système.

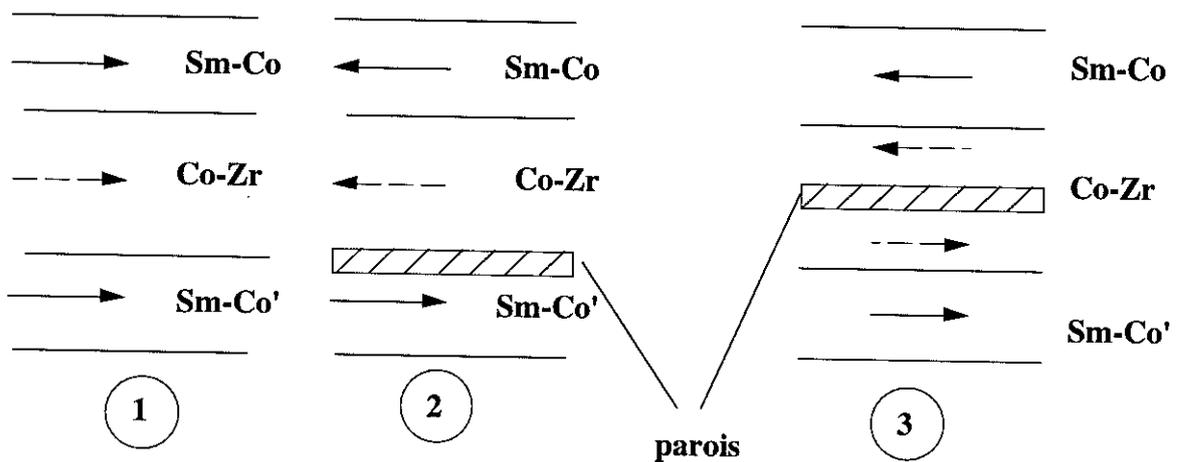
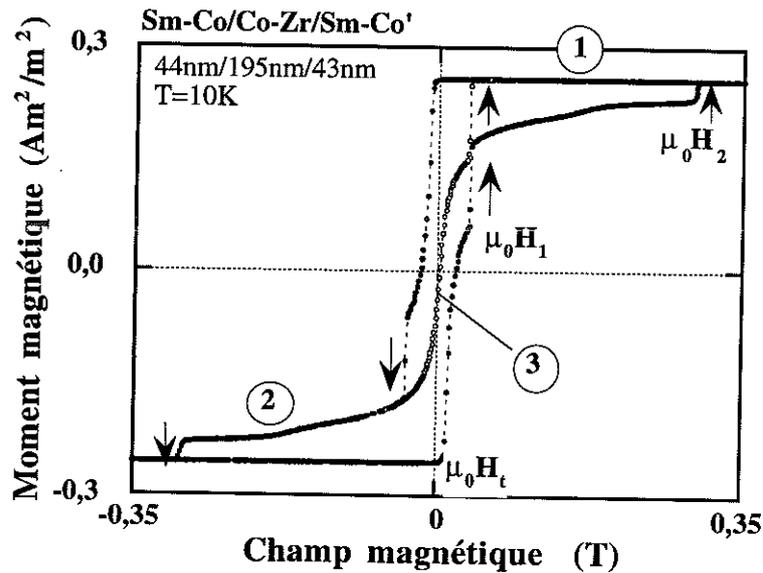


Figure III-F-1: Création de l'état à une paroi  
 a) Courbe d'aimantation de  $\text{SmCo}_{3,5}/195\text{nm Co}_{0,95}\text{Zr}_{0,05}/\text{SmCo}_{6,3}$  (44nm/195nm/43nm) avec cycles mineurs  
 b) Schéma correspondant aux différents états de la courbe a)

## F.2. Processus d'aimantation dans l'état à une paroi

Les figures III-F-2 et 3 présentent les cycles majeurs et les courbes d'aimantation dans l'état à une paroi de deux échantillons Sm-Co/e Gd-Co/ Sm-Co' d'épaisseurs  $e$  différentes ( $e=43$  nm, 530 nm).

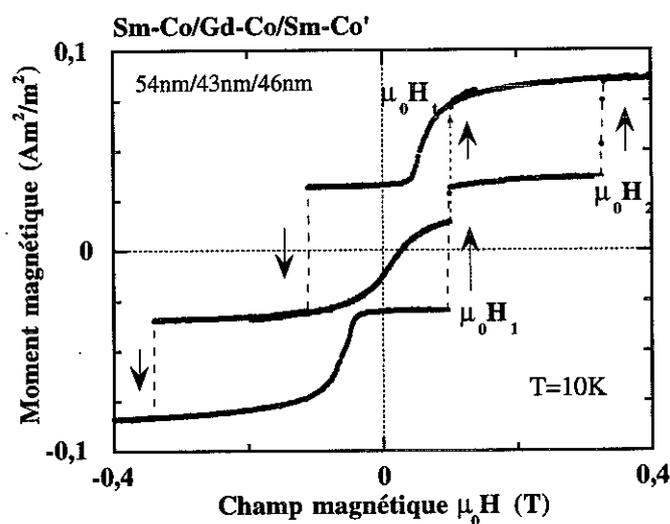


Figure III-F-2: Courbe d'aimantation de Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co' (54nm/43nm/46nm) avec cycle mineur à 10 Kelvin

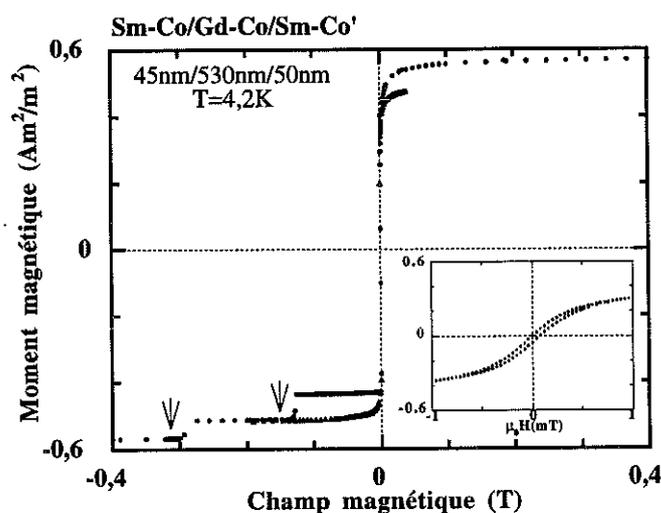


Figure III-F-3: Courbe d'aimantation de Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co' (45nm/530nm/50nm) avec cycle mineur à 4,2 Kelvin

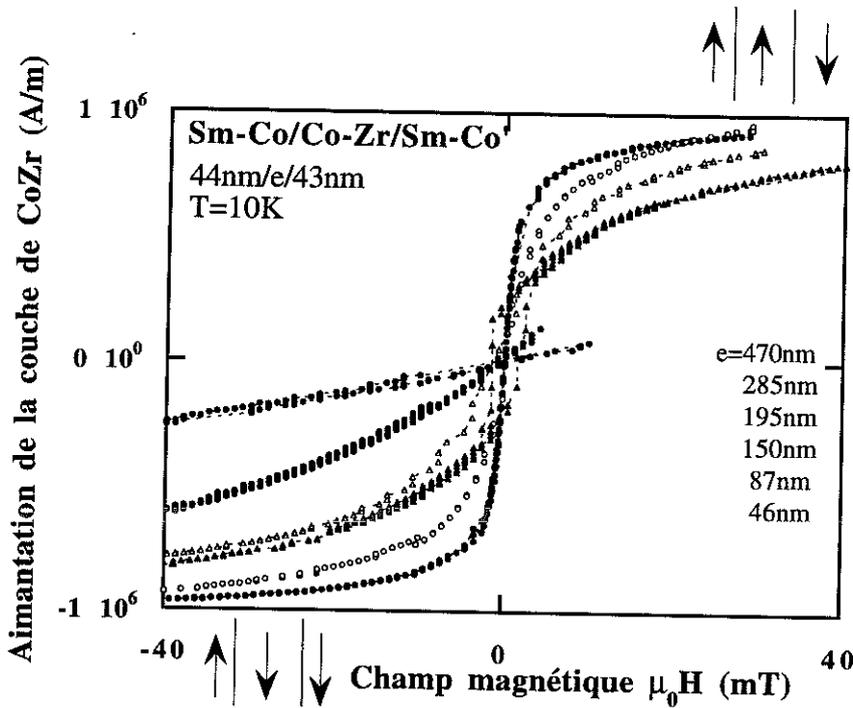


Figure III-F-4: Courbes d'aimantation dans l'état à une paroi à 10 Kelvin pour des échantillons Sm-Co/Co-Zr/Sm-Co' (44nm/e/43nm) avec des épaisseurs  $e$  entre 46 nm et 470 nm

Les courbes d'aimantation mesurées dans l'état à une paroi de Sm-Co/Co-Zr/Sm-Co' sont montrées dans la figure III-F-4 pour des épaisseurs de la couche centrale entre 46 nm et 470 nm. La susceptibilité en champ nul observée dans cet état croît de façon importante avec l'épaisseur de la couche centrale.

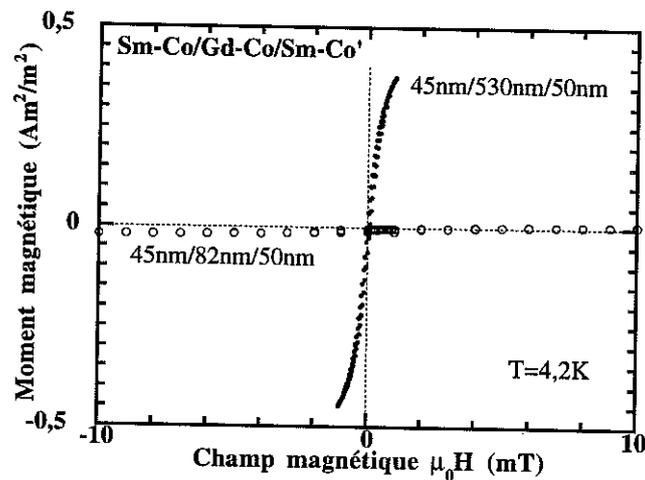


Figure III-F-5: Courbes d'aimantation à 4,2 Kelvin dans l'état à une paroi pour des échantillons Sm-Co/e Gd-Co/SmCo' ( $e=80\text{nm}$ , 530 nm)

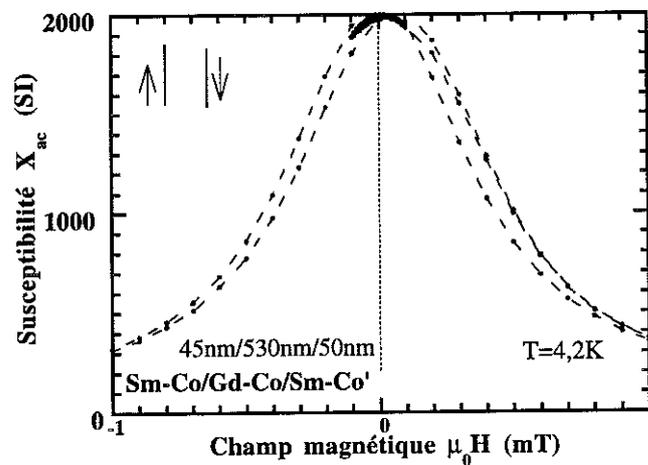


Figure III-F-6: Susceptibilité alternative en fonction du champ appliqué dans l'état à une paroi de Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co' (45nm/530nm/50nm)

La susceptibilité en champ nul la plus grande ( $\chi=2050$ ) a été mesurée pour un échantillon de Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co' de 530 nm d'épaisseur de sa couche centrale (figures III-F-5 et III-F-6), alors que l'échantillon de la même série d'une épaisseur de Gd-Co de 82 nm a une susceptibilité  $\chi=70$ . La figure III-F-7 montre, que la saturation dans cet état à une paroi pour 530 nm de Gd-Co est presque atteinte dans un champ inférieur à un mT, alors qu'il faut 40 mT pour saturer l'échantillon avec 82nm de Gd-Co.

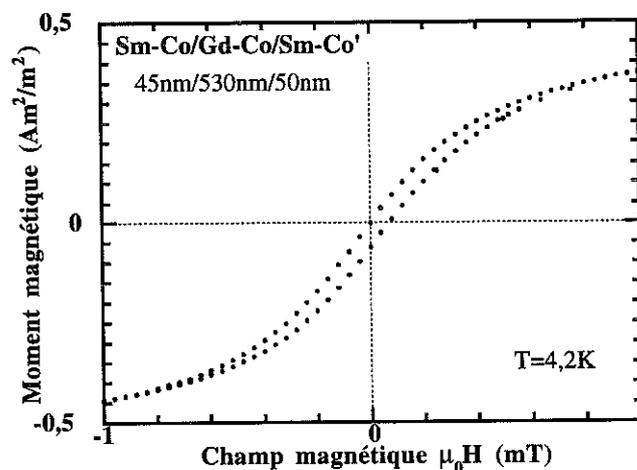


Figure III-F-7:  
Courbe d'aimantation de Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co' (45nm/530nm/50nm) dans l'état à une paroi

L'hystérésis observée est très faible ( $\sim 0,2$  mT), en accord avec un processus de rotation des moments sans accrochage notable.

Afin d'étudier plus en détail l'évolution de la susceptibilité avec l'épaisseur  $e$  de la couche centrale, une deuxième série d'échantillons avec  $e=43$  nm, 80 nm, 142 nm, 175 nm, 283 nm, 500 nm et 880 nm a été fabriquée. Les courbes d'aimantation dans l'état à une paroi de ces échantillons sont montrées dans la figure III-F-8. On observe toujours la croissance de la susceptibilité avec l'épaisseur, mais la valeur  $\chi \sim 2000$  pour  $e \sim 500$  nm n'a pas pu être reproduite.

De plus, les courbes d'aimantation montrent des cycles qui s'ouvrent de façon très nette. Cette série d'échantillons est de bien moins bonne qualité que la série précédente ne comportant que deux épaisseurs.

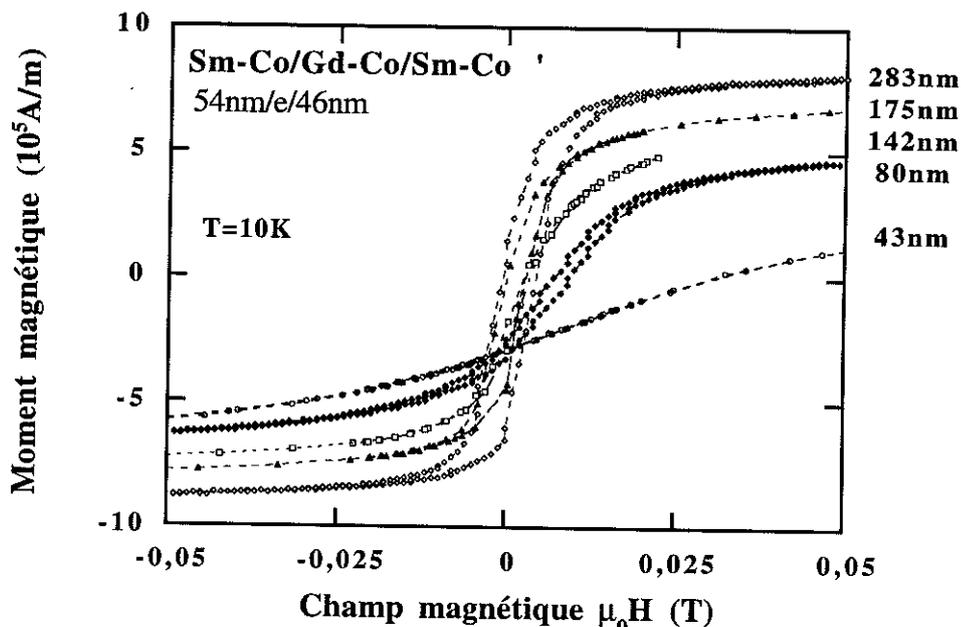


Figure III-F-8: Courbes d'aimantation dans l'état à une paroi à 10 Kelvin pour des échantillons  $\text{SmCo}_{4,5}/\text{GdCo}_{1,3}/\text{SmCo}_{8,2}$  (54nm/e/46nm) avec des épaisseurs  $e$  entre 43 nm et 283 nm

#### Remarque sur l'effet de la température

Une augmentation de la température de mesure provoque une diminution et un rapprochement des champs de retournement  $H_1$  et  $H_2$  des deux couches de Sm-Co. Dans certains cas, les valeurs de ces champs peuvent être confondues à température ambiante, ce qui rend impossible de configurer le système afin d'obtenir l'état à une paroi. C'est un effet dont il faut tenir compte lors du choix du matériau et de la composition des couches externes, si on cherche à construire un système, qui présente les propriétés de la paroi décrites dans ce

paragraphe à haute température. Les champs de retournement dépendent également du couplage entre couches et peuvent être influencés par le choix du matériau de la couche centrale. Pour un système ferromagnétique on s'attend à une diminution de  $H_1$  et  $H_2$  par le couplage (paragraphe III-B-3), effet, qui n'est pas favorable ici. Pour la plupart de nos couches réelles de Sm-Co/Co-Zr/Sm-Co' ou Sm-Co/Co/Sm-Co', il n'est effectivement pas possible de créer cet état à une paroi à température ambiante.

Les propriétés de cet état à une paroi dépendent également du moment magnétique de la couche magnétiquement douce, c-à-d du milieu où se trouve la paroi. Si le moment diminue fortement lorsque la température augmente pour la gamme de température considérée, comme pour Gd-Co entre 10 Kelvin et 300 Kelvin, on s'attend à une pareille diminution de la susceptibilité.

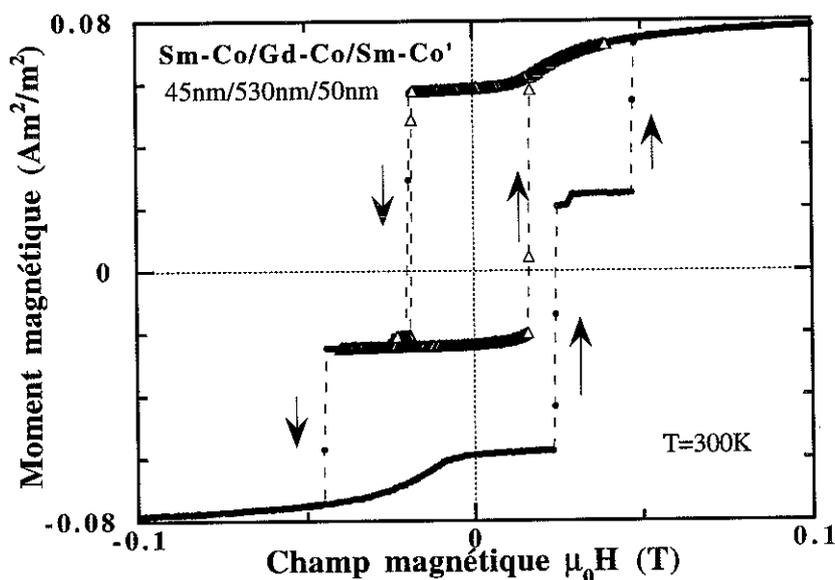


Figure III-F-9: Courbe d'aimantation de Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co' (45nm/530nm/50nm) avec cycle mineur à 300 Kelvin

La figure III-F-9 montre la courbe d'aimantation de Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co' (45nm/530nm/50nm) avec cycle mineur mesurée à température ambiante. Les champs de retournement des couches dures sont suffisamment séparés pour créer un état où leurs aimantations pointent en sens opposé. La susceptibilité observée dans cet état est très faible, dû au faible moment magnétique de la couche centrale en Gd-Co.

### F.3. Etude de la susceptibilité en fonction de l'épaisseur

Les processus d'aimantation dans l'état à une paroi présentés au paragraphe précédent montrent qu'ils dépendent fortement de l'épaisseur de la couche centrale. En particulier la susceptibilité en champ nul mesurée à basse température varie comme le carré de l'épaisseur de la couche centrale (figure III-F-10).

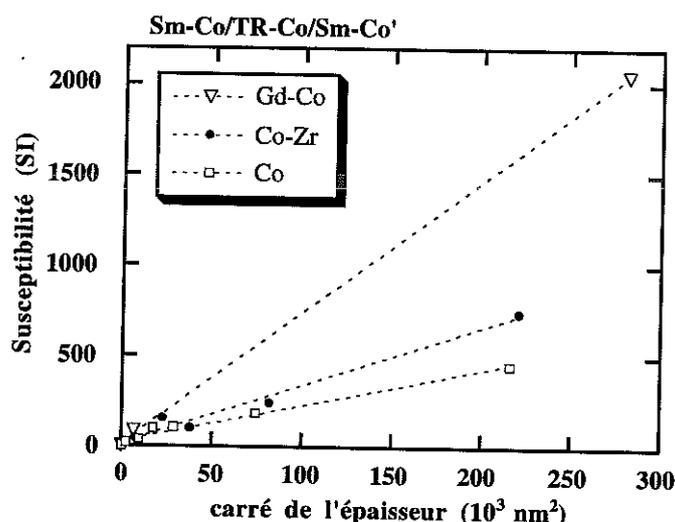


Figure III-F-10: Susceptibilités en champ nul de  $\text{Sm-Co}/X/\text{Sm-Co}'$  ( $X=\text{Co}, \text{Co-Zr}, \text{Gd-Co}$ ) dans l'état à une paroi en fonction du carré de l'épaisseur de la couche centrale

Pour les échantillons avec une couche centrale d'environ un micron d'épaisseur, les susceptibilités ( $\chi=840$  pour 975 nm Co-Zr et  $\chi=1032$  pour 930 nm Co) ne suivent plus la variation de la susceptibilité avec le carré de l'épaisseur  $e$ . Les valeurs des champs de retournement des courbes de Sm-Co ont déjà montré (paragraphe III.E.), que ces échantillons épais montrent un comportement différent. Il faudra préparer une série de couches comprenant des échantillons avec  $e \geq 0,5 \mu\text{m}$  pour voir à partir de quelle épaisseur on observe un changement de régime.

Il est possible de calculer la susceptibilité en champ nul ( $T=0$  Kelvin) d'une paroi à  $180^\circ$  sans anisotropie de largeur imposée  $e$  (annexe A.III). Le modèle suppose une chaîne de moments couplés par l'échange, dont les spins des extrémités ont des positions fixées  $\theta_1=0^\circ$  et  $\theta_N=180^\circ$ . En l'absence de champ magnétique l'angle  $\theta$  (angle que fait la direction d'un moment dans la chaîne avec le champ appliqué avec la direction de facile aimantation du système) est une fonction linéaire de l'épaisseur (figure III-F-11).

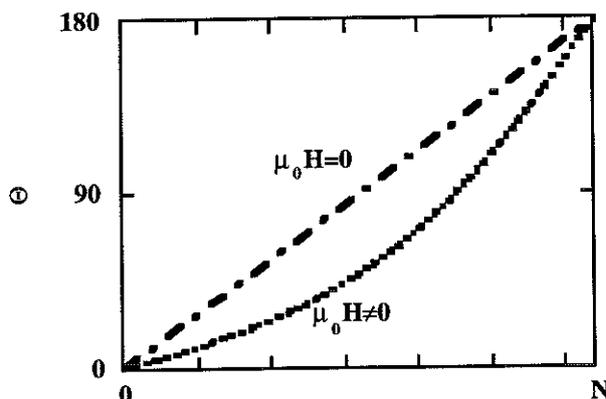


Figure III-F-11: Configuration de spins correspondant au modèle sans anisotropie

Le calcul est valable pour un faible champ. Il en résulte une loi où la susceptibilité varie comme le carré de l'épaisseur:

$$\chi_P = \frac{\mu_0 M_S^2 e^2}{4\pi^2 A} \quad (\text{III.F.1})$$

Le résultat de ce modèle est en accord avec les observations effectuées sur les systèmes Sm-Co/X/Sm-Co' où X=Co-Zr, Co, Gd-Co pour lesquels l'anisotropie de la couche centrale est négligeable (chapitre II.B.). L'expression III.F.1 donne le bon ordre de grandeur de la susceptibilité observée (par exemple, pour l'échantillon de Co-Zr de 470 nm avec une valeur de  $A=1,5 \times 10^{-12}$  J/m [Ouahmane H., 1988] la susceptibilité calculée est de  $\sim 250$  SI alors que la mesure a donné  $\chi=740$ ).

Ce modèle permet également de comprendre que la valeur de susceptibilité la plus grande ait été obtenue pour un échantillon à base de Gd-Co de 530 nm. En effet,  $\chi_P$  est en fait inversement proportionnel à l'intégrale d'échange  $J_{\text{Co-Co}}$  du système considéré. Ce qui est cohérent avec la température de Curie plus faible de Gd-Co par rapport à celle de Co-Zr. De plus l'aimantation  $M_S$  de Gd-Co est la plus grande.

#### F.4. Méthodes d'observation directe de la paroi: réflectométrie de neutrons polarisés avec analyse de polarisation

La réflectométrie de neutrons polarisés avec analyse de polarisation est une technique permettant de mesurer la configuration des moments magnétiques dans une couche mince (paragraphe I.C.3). Nous nous sommes intéressés à cette méthode, parce qu'elle constitue un moyen d'observation directe de la paroi.

Pendant les mesures, l'échantillon avait son axe de facile aimantation orienté parallèlement à la direction des spins polarisés des neutrons. Dans ce cas, les réflectivités  $R^{++}$  et  $R^{--}$  dépendent à la fois de la diffusion nucléaire et de la diffusion magnétique par la composante de l'aimantation le long de l'axe facile. Le signal  $R^{+-}$  correspond à la composante de l'aimantation dans le plan de la couche et perpendiculaire à l'axe de facile aimantation. Qualitativement, cette technique permet donc de distinguer l'état mono-domaine de nos tris-couches, tel qu'il est obtenu après saturation de l'échantillon, où l'on s'attend à l'absence du signal  $R^{+-}$ , et l'état avec présence de rotation de spins dans le plan de la couche conduisant à un signal  $R^{+-}$  notable. Une analyse quantitative des spectres de réflectométrie mesurés dans l'état à une paroi doit permettre d'obtenir le profil magnétique en fonction de la profondeur et ainsi caractériser la paroi.

Une des difficultés pour la mise en oeuvre de cette expérience provient de la configuration de l'échantillon dans l'état mono-domaine ou dans l'état à une paroi. Il faut qu'il soit parfaitement orienté et avoir la possibilité d'appliquer des champs suffisamment forts et de valeur bien définie pour obtenir les états en question.

Les figures III-F-12 et 13 montrent les résultats de mesures préliminaires.

La figure III-F-12 montre le spectre mesuré pour un échantillon de Sm-Co/43nm Gd-Co/Sm-Co' à  $T=300$  K, après saturation. Il n'y a pas de signal  $R^{+-}$ , ce qui confirme, que tous les moments dans le plan de la couche sont orientés parallèlement à l'axe facile. Les calculs utilisant des paramètres chimiques et magnétiques mesurés par ailleurs (RBS, VSM), rendent bien compte des valeurs expérimentales.

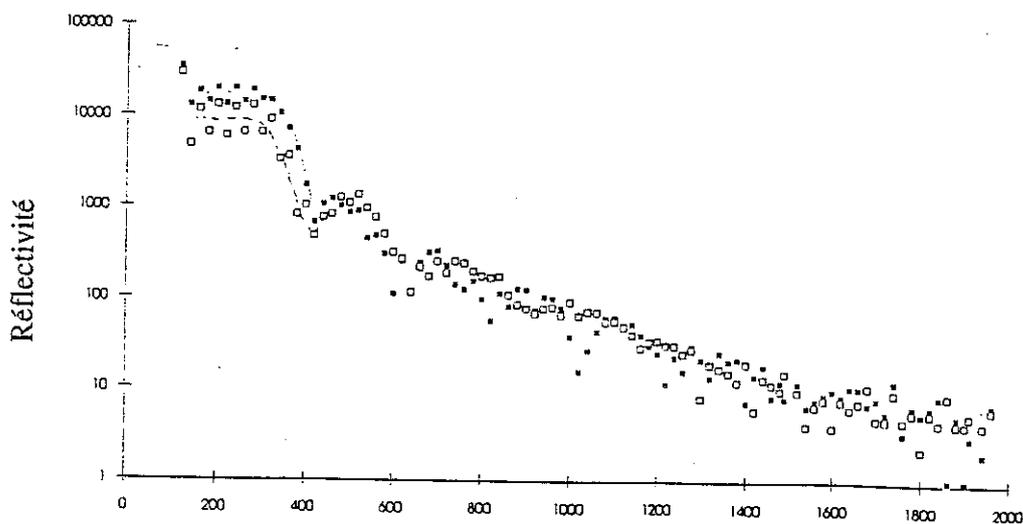


Figure III-F-12:  
Profil de réflectivité pour Sm-Co/43nm Gd-Co/Sm-Co' dans l'état monodomaine à  $T=300$ K

La figure III-F-13 montre le spectre obtenu pour le même échantillon à  $T=80$  K après configuration des couches de Sm-Co en sens opposés (état à une paroi dans le modèle). Le signal  $R^{+-}$  important mesuré dans cette configuration, confirme l'existence d'une composante de l'aimantation perpendiculaire à l'axe facile et au champ appliqué et donc la présence d'une rotation de spins dans le plan.

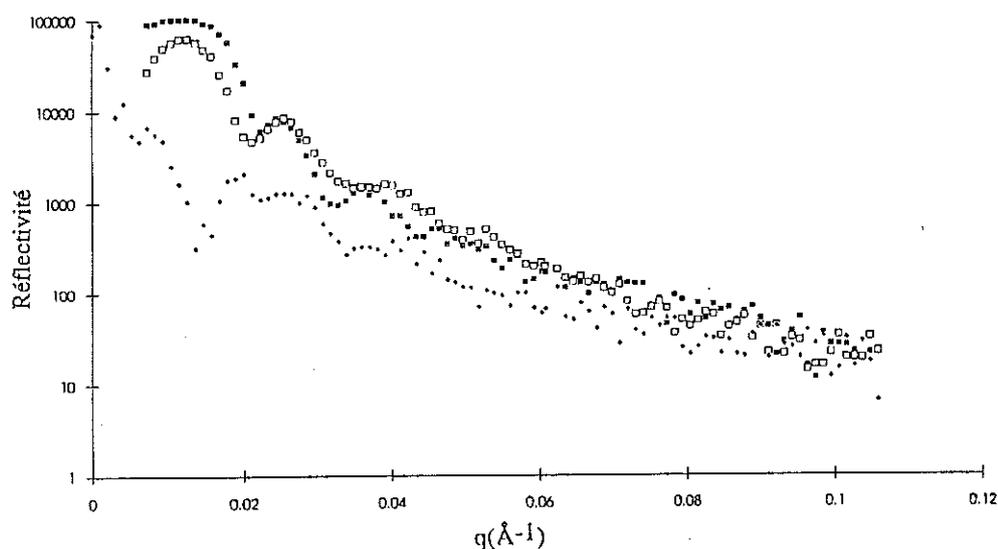


Figure III-F-13:  
 Profils de réflectivité pour Sm-Co/43nm Gd-Co/Sm-Co' dans l'état à une paroi à  $T=80$ K  
 (carrés:  $R^{++}$  et  $R^{--}$ , losanges:  $R^{+-}$ )

La réflectométrie se révèle une technique prometteuse pour l'observation des parois supposées dans nos analyses. Cependant les échantillons mesurés n'ont pas été préparés en fonction de cette expérience: le samarium et le gadolinium sont les éléments les moins bien adaptés à des études neutroniques à cause de leur absorption très importante. Des essais préliminaires ont montré, qu'il est possible, sans affecter son champ de retournement, de réduire l'épaisseur de la couche de surface en Sm-Co, dont le rôle est d'imposer un sens déterminé des moments magnétiques à chacune des interfaces de la couche centrale.

Nous proposons de préparer une série de tri-couches de Sm-Co/Co-Zr/Sm-Co' de différentes épaisseurs de la couche de Co-Zr avec une couche de Sm-Co en surface aussi mince que possible et d'effectuer une étude systématique de la configuration des moments dans les différents états possibles: état monodomaine, état à une seule paroi et état à deux parois.

### Conclusion du chapitre III

La fabrication de systèmes sandwich tels que Sm-Co/Co-Zr/ Sm-Co' ou Y-Co/Gd-Co/Y-Co constitués de seulement trois couches aux propriétés intrinsèques (moment magnétique, échange, anisotropie, coercitivité, épaisseur) différentes a permis d'observer des propriétés originales et en particulier des processus d'aimantation très variés.

Les propriétés de ces systèmes dépendent essentiellement de l'existence de couplage d'échange entre les différentes couches, qui se fait par l'intermédiaire des atomes de cobalt présents dans toute la tri-couche. Ce couplage d'échange peut conduire à des arrangements macroscopiques ferro- ou ferrimagnétiques et à des états magnétiques mono-domaines ou caractérisés par l'existence d'une seule paroi ou de deux parois dans les couches.

Une interprétation qualitative des processus d'aimantation ainsi que la géométrie des systèmes impose l'existence de parois de Bloch étendues à toute la surface de l'échantillon et dont la rotation des moments s'effectue dans la direction de l'épaisseur des couches. Nous avons commencé l'étude de ces parois par réflectométrie de neutrons: cette technique devrait apporter une "visualisation" assez précise de la configuration des moments magnétiques.

La présence de couches coercitives dans ces systèmes conduit à l'existence de cycles mineurs dans les processus d'aimantation, qui ne sont pas sans rappeler les cycles théoriques présentés par Néel [1958] décrivant les propriétés de couples formés de deux grains ferromagnétiques en interaction.

Enfin certaines propriétés obtenues sont caractéristiques de systèmes de dimensions réduites. Le champ de transition entre un état mono-domaine et un état à une seule paroi de Bloch à chaque interface dépend de l'épaisseur des couches au sein desquelles se développe la paroi. De même la susceptibilité dans l'état à une paroi dépend également de l'épaisseur de la couche centrale du sandwich dans laquelle il est possible de la stabiliser.

## CHAPITRE IV:

### Description des processus d'aimantation au moyen de simulations numériques

|  |     |
|--|-----|
| IV.A. Technique de calculs.....  | 135 |
| A.1. Modèle à une dimension .....  | 135 |
| A.2. Méthode.....  | 136 |
| IV.B. Simulation de systèmes expérimentaux.....                          | 138 |
| B.1. Sm-Co/Co-Zr/Sm-Co' .....  | 138 |
| B.1.a. Simulation des processus d'aimantation dans l'état à une paroi .. | 138 |
| B.1.b Transition liée à la couche douce.....                             | 141 |
| B.1.c. Renversement d'une couche coercitive.....                         | 145 |
| B.2 Sm-Co/Co/Sm-Co' .....  | 148 |
| B.3. Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co' .....  | 150 |
| B.2.a. Simulation des processus d'aimantation dans l'état à une paroi .. | 150 |
| B.2.b Transition liée au renversement de la couche douce .....           | 153 |
| B.4 Y-Co/Gd-Co/Y-Co .....  | 155 |
| IV.C. Discussion .....   | 157 |
| C.1. Température de Curie.....   | 157 |
| C.2. Echange à l'interface.....  | 158 |
| C.3. Influence de l'anisotropie .....                                    | 159 |
| Conclusion du chapitre IV .....  | 161 |



## CHAPITRE IV

### Description des processus d'aimantation au moyen de simulations numériques

Le chapitre précédent a montré la grande diversité des cycles d'aimantation que l'on peut obtenir dans les tri-couches. Nous avons proposé une analyse qualitative de ces processus d'aimantation à partir de configurations en domaines assez simples dépendant du cycle de champ effectué et de la valeur du champ magnétique appliqué. Chaque couche peut être soit dans un état mono-domaine, soit le siège d'une ou plusieurs parois de Bloch. Compte tenu de la géométrie de ces tri-couches et des couplages magnétiques entre couches, ces parois de Bloch sont parallèles aux interfaces et doivent s'étendre sur toute la surface de l'échantillon. Les largeurs de parois de ces systèmes sont du même ordre de grandeur que les épaisseurs des couches et les méthodes analytiques ne permettent pas de décrire qualitativement les processus d'aimantation.

En revanche, les techniques de simulations numériques apparaissent bien adaptées pour la description quantitative de ces systèmes, car elles peuvent prendre en compte le nombre de couches du système, les caractéristiques propres de chaque couche (moment magnétique, échange, anisotropie, épaisseur) ainsi que la valeur de l'échange aux interfaces.

#### IV.A. Technique de calculs

##### A.1. Modèle à une dimension

Nous avons entrepris des calculs numériques basés sur un modèle unidimensionnel afin de simuler les processus d'aimantation observés dans les tri-couches. Compte tenu du caractère amorphe des différents matériaux constitutifs des tri-couches, on peut admettre, que les propriétés magnétiques de chaque couche sont invariantes dans un plan parallèle aux interfaces et ne dépendent que de la coordonnée ( $z$ ) dans une direction perpendiculaire aux plans des interfaces.

La configuration magnétique de chaque couche peut alors être modélisée par une chaîne (figure IV-A-1), qui s'étend perpendiculairement au plan de l'échantillon et comprend  $N$  moments magnétiques, séparés par une distance interatomique  $a$ , évaluée à partir du volume atomique ( $a=V^{1/3}$ ). On suppose que les spins tournent en restant dans un plan parallèle aux interfaces et leur orientation est donnée par leur position angulaire  $\theta_i$  par rapport à la direction de facile

aimantation. Les courbes d'aimantation sont calculées à partir de la configuration de spins, qui minimise l'énergie du système

$$E = E_1 + E_2 + E_3 + E_{12} + E_{23} \quad (\text{IV.A.1})$$

où  $E_{12} = J_{12} \mathbf{S}_{1N} \mathbf{S}_{21}$ ,  $E_{23} = J_{23} \mathbf{S}_{2N} \mathbf{S}_{31}$  et où  $E_\alpha$  (avec  $\alpha=1,2$  ou  $3$ ) désigne l'énergie totale associée à chaque couche constitutive du sandwich, avec

$$E_\alpha = - \sum_{i=1}^{N_\alpha} 2J_\alpha \mathbf{S}_{\alpha i} \mathbf{S}_{\alpha i+1} - \mu_\alpha B \sum_{i=1}^{N_\alpha} \cos \theta_i + K_\alpha \sum_{i=1}^{N_\alpha} \sin^2 \theta_i$$

où  $-\sum 2J_\alpha \mathbf{S}_{\alpha i} \mathbf{S}_{\alpha j}$  est l'énergie d'échange ( $J_\alpha$  représente l'intégrale d'échange entre atomes de cobalt et  $\mathbf{S}_{\alpha i}$  le spin du cobalt),  $-\mu_\alpha B \sum \cos \theta_i$  l'énergie Zeeman lorsque le champ

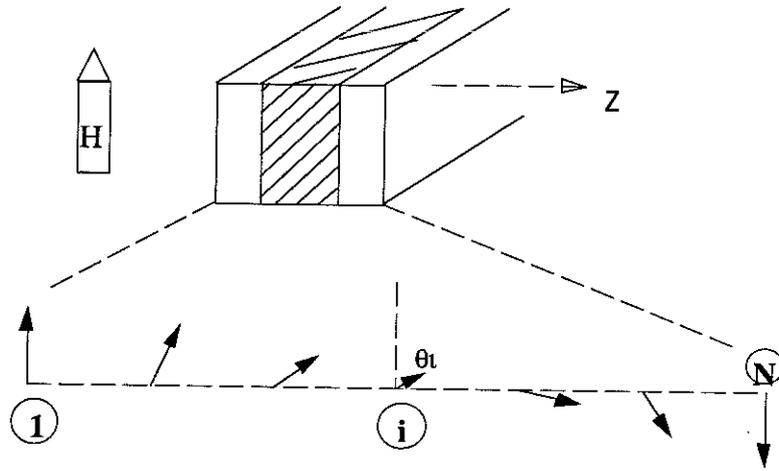


Figure IV-A-1:

Schéma du modèle à une dimension pour la configuration de spins dans une tri-couche

magnétique est appliqué suivant l'axe facile et où  $\mu_\alpha$  est le moment magnétique ramené par atome de cobalt et le terme  $K_\alpha \sum \sin^2 \theta_i$  permet de décrire l'anisotropie macroscopique induite, dans ces matériaux amorphes, par un champ appliqué pendant le dépôt. On néglige donc les interactions terre rare - terre rare et on suppose les interactions terre rare - cobalt infinies, c.à.d. un couplage rigide, dans un alliage donné. On néglige l'énergie dipolaire, car les moments sont dans le plan. Le modèle permet de prendre en compte l'échange à l'interface.

## A.2. Méthode

Les simulations ont été effectuées avec un programme pour ordinateur, qui cherche la configuration de spins minimisant l'énergie (IV.A.1) pour un champ magnétique  $B$  donné et calcule la valeur de l'aimantation correspondante. Le programme a été écrit en langage C++.

Nous avons utilisé un PC 486-DX4 à 100 MHz ainsi qu'une station de travail Indy de Silicon Graphics, les deux machines fonctionnant sous système Unix.

Les données entrées dans le programme sont les paramètres caractérisant les différentes couches ( $J_\alpha$ ,  $K_\alpha$ ,  $S_\alpha$ ,  $\mu_\alpha$ ), le nombre de spins  $N_\alpha$  de chaque couche, une configuration de spin de départ et une liste de champs magnétiques "appliqués" successivement. Les données à la sortie du programme sont les courbes d'aimantation  $M(H)$  avec l'énergie correspondante  $E(M,H)$  et la configuration de spins correspondant à chaque champ.

La procédure de minimisation d'énergie sur laquelle est basée le programme consiste à faire varier les orientations des spins et à comparer les énergies des différentes configurations afin de converger vers la configuration à l'équilibre. Il s'agit donc de minimiser l'énergie du système dépendant de  $N$  paramètres (pour nos systèmes nous avons utilisé jusqu'à  $N=2000$  spins). Les variables du problème, qui sont les  $N$  angles  $\theta_i$  définissant la position moyenne de chacun des moments magnétiques dans le plan, forment l'espace des paramètres ou l'espace des phases. Chaque point de cet espace à  $N$  dimensions représente donc une configuration particulière de l'orientation des moments.

La procédure de minimisation se fait en deux étapes. Dans une première phase, l'algorithme de minimisation est basé sur la méthode du gradient conjugué (voir annexe A.IV.: le principe de la méthode), qui permet à partir du gradient d'énergie en chaque point de l'espace des phases de se déplacer de façon optimale dans cet espace pour converger le plus rapidement possible vers un minimum. Cette méthode devenant peu efficace au voisinage du minimum d'énergie, dans une deuxième étape, c'est en testant l'effet d'une petite variation de chaque angle  $\theta_i$ , dans un ordre aléatoire, que le système converge vers sa position d'équilibre. Le programme considère que la position d'équilibre est atteinte lorsqu'une variation de  $\Delta\theta=10^{-4}$  deg de l'un quelconque des angles  $\theta_i$  de la chaîne ne modifie pas l'énergie de la configuration.

Pour chaque valeur de champ, la configuration de spins de départ pourrait être une configuration donnée par une orientation aléatoire des moments magnétiques. En pratique, puisque l'on cherche à décrire une courbe d'aimantation, la configuration de départ, qui est prise, est la configuration d'équilibre obtenue par la simulation pour le champ précédent. Cette façon de procéder permet de gagner du temps de calcul lorsque deux configurations successives sont assez proches l'une de l'autre. Les temps de calcul s'allongent considérablement lorsque l'aimantation varie beaucoup avec le champ appliqué, en particulier au voisinage du champ de transition.

Comme il n'est pas possible de décrire les processus de renversement des moments à partir de l'état sans parois, deux séries de simulations seront effectuées pour chaque échantillon, chacune avec des configurations de départ différentes. Une configuration de départ où les aimantations des deux couches de Sm-Co sont de même sens vont permettre de décrire le passage de l'état à deux parois de Bloch vers l'état mono-domaine. Une configuration de départ

où les aimantations des couches de Sm-Co sont en sens inverse décrira les processus d'aimantation de l'état à une seule paroi.

## **IV.B. Simulation de systèmes expérimentaux**

### **B.1. Sm-Co/Co-Zr/Sm-Co'**

Nous avons simulé les courbes d'aimantation de Sm-Co/ e Co-Zr/Sm-Co' pour  $e=87$  nm, 150 nm, 195 nm, 285 nm et 470 nm par des chaînes comprenant  $N=370, 640, 830, 1215$  et 2000 spins, si l'on suppose que la distance interatomique est  $a=0,235$  nm. Des mesures sur des couches simples de Co-Zr donnent un moment magnétique  $\mu_{\alpha}$  par formule de Co-Zr de  $1,55 \mu_B$  et un champ d'anisotropie dans le plan inférieur à 3 mT (paragraphe II.B.5). L'anisotropie est donc négligeable devant l'échange et sera pris égal à zéro. J reste le seul paramètre ajustable pour décrire l'ensemble des processus d'aimantation de tous les échantillons.

#### **B.1.a. Simulation des processus d'aimantation dans l'état à une paroi**

Au paragraphe III.B.4 nous avons discuté les courbes d'aimantation des processus quasi réversibles observés pour les systèmes Sm-Co/X/Sm-Co' ( $X=Gd-Co, Co-Zr, Co$ ) dans une configuration où les moments des couches externes pointent en sens opposé. Ces courbes d'aimantation dépendent de l'épaisseur.

Dans un premier temps nous nous sommes limités à la simulation de la configuration magnétique de la couche centrale en tenant compte des configurations des moments des couches externes par les conditions aux limites  $\theta_1=0^\circ$  et  $\theta_N=180^\circ$ , ce qui revient à dire que les couches dures de Sm-Co ont une anisotropie infinie et que les couplages d'échange aux interfaces entre les deux couches sont infinis. La figure IV-B-1 montre les courbes d'aimantation expérimentales et simulées pour différentes épaisseurs de la couche centrale de Co-Zr, pour la valeur  $J=340$  K de l'intégrale d'échange entre atomes de cobalt. Un très bon accord est obtenu entre les courbes expérimentales et calculées. Remarquons que la simulation permet de décrire la pente de la courbe d'aimantation en champ faible, l'approche à la saturation ainsi que le changement de courbure.

Les figures IV-B-2 montrent des configurations de moments magnétiques résultant de la simulation, c'est à dire leur angle  $\theta_i$  en fonction de leur position  $i$  dans la chaîne, pour différentes valeurs de champ. Ces configurations varient pour un même matériau (défini par

$\mu_{\text{Co-Zr}}$ ,  $J_{\text{Co-Co}}$ ,  $K_{\text{Co-Zr}}$ ) en fonction de l'épaisseur, simulée par le nombre de moments  $N$  dans la chaîne.

Pour une faible épaisseur, la paroi s'étend sur toute la couche lorsque le champ appliqué est faible. Pour une grande épaisseur, l'extension de la paroi pour la même valeur du champ appliqué (par exemple 20 mT), est beaucoup plus petite. Pour une couche épaisse, il suffit d'une faible variation de champ appliqué pour déplacer la paroi d'une interface à l'autre, ce qui conduit à une plus grande susceptibilité. Le processus d'aimantation est associé à une rotation des moments dans la paroi plutôt qu'à un déplacement de celle-ci, au sens classique du terme, compte tenu de la largeur de la paroi par rapport à la largeur de la couche. On retrouve le résultat du modèle analytique, où la largeur de paroi diminue avec le champ appliqué.

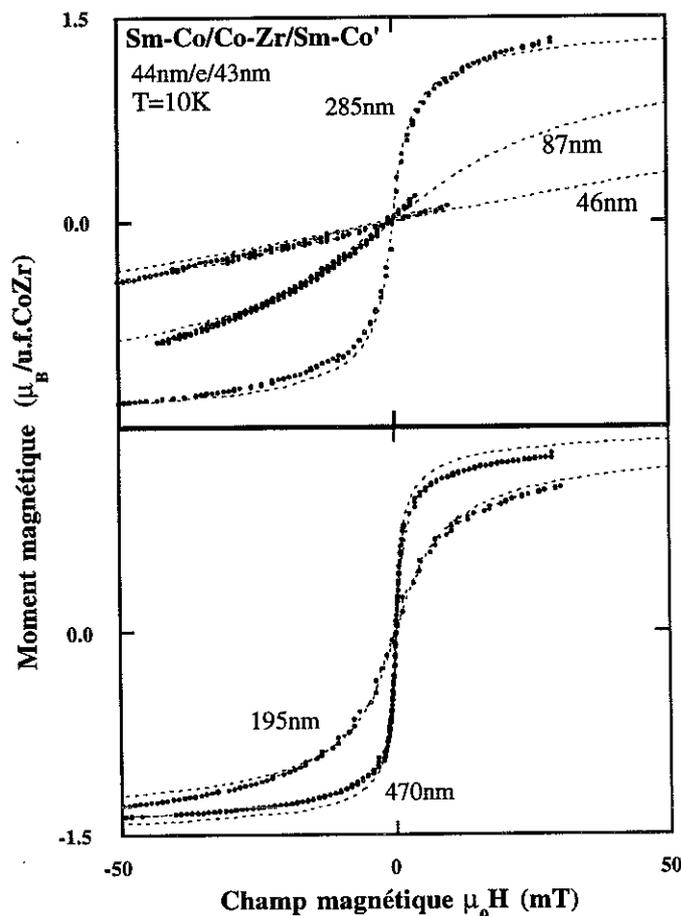


Figure IV-B-1: Courbes d'aimantation des systèmes (Sm-Co)/(Co-Zr)/(Sm-Co)' expérimentales et simulées pour différentes épaisseurs  $e$  de la couche centrale

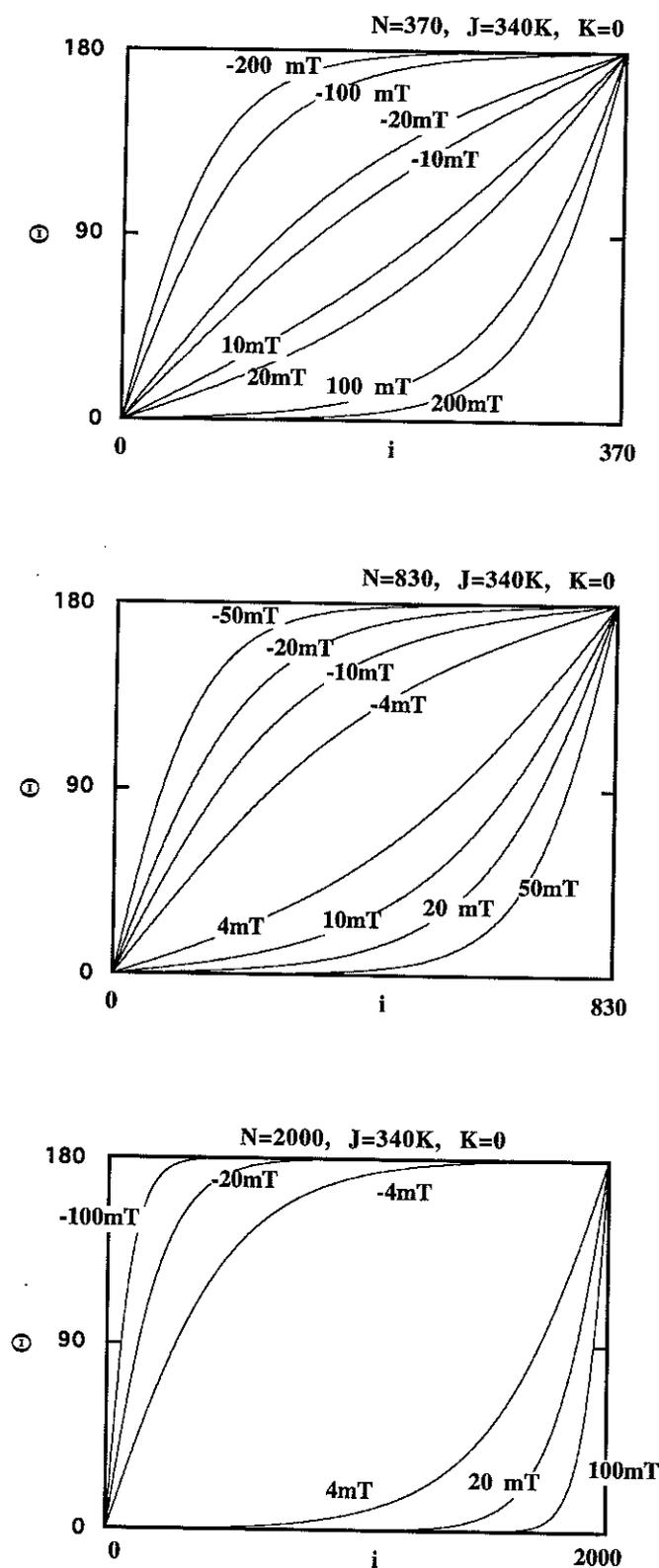


Figure IV-B-2: Configurations de spins calculées avec des contraintes  $\Theta_I=0^\circ$  et  $\Theta_N=180^\circ$  pour  $J=340\text{ K}$ ,  $K=0$ ,  $N=370$ ,  $N=830$  et  $N=2000$  correspondant à des épaisseurs de 46 nm, 195 nm et 470 nm

### B.1.b Transition liée à la couche douce

Au paragraphe III.D. nous avons discuté la transition associée au retournement de l'aimantation dans une couche constituée d'un matériau doux, couplée par l'échange aux couches adjacentes. Cette transition est accompagnée par la création ou la suppression d'une paroi à chaque interface de la tri-couche, selon le sens de variation du champ magnétique.

Comme pour la simulation des processus d'aimantation dans l'état à une seule paroi, nous nous sommes limités à la simulation de la configuration magnétique de la couche centrale en tenant compte des configurations des moments des couches externes par les conditions aux limites  $\theta_1=0^\circ=\theta_N=0^\circ$ . Remarquons que lors des simulations, nous faisons évoluer le champ dans un sens qui va d'un état à deux parois vers l'état sans paroi. En effet, comme nous

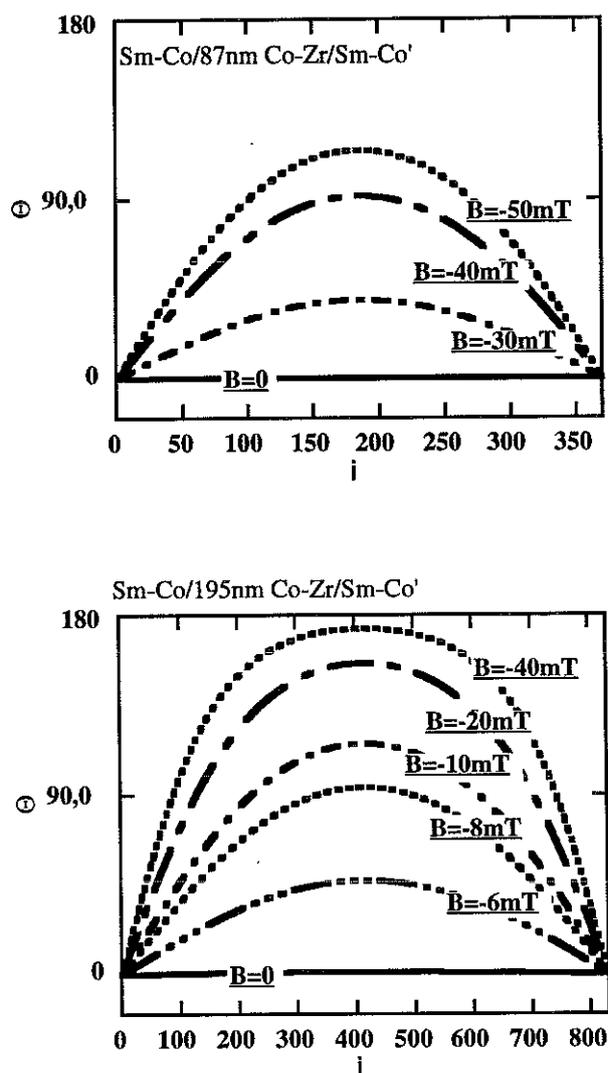
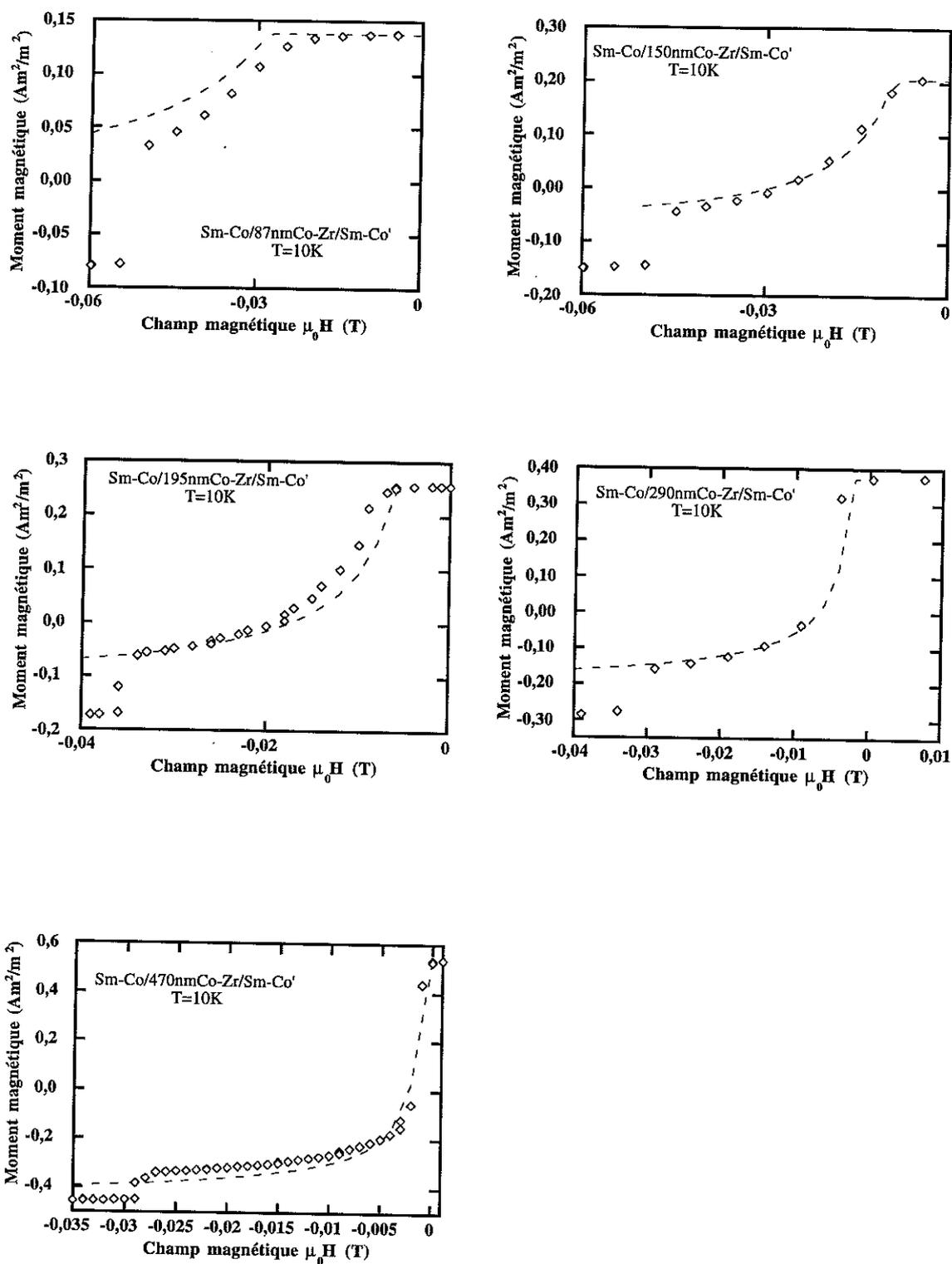


Figure IV-B-3: Configurations de spins calculées avec des contraintes  $\theta_1=0^\circ$ ,  $\theta_N=0^\circ$  pour  $J=340$  K,  $K=0$  et  $N=370$  et  $N=830$  correspondant à des épaisseurs 87 nm et 195 nm



Figures IV-B-4:  
 Courbes d'aimantation expérimentales (losanges) et simulées (trait discontinu) à la transition de Sm-Co/ e Co-Zr/Sm-Co'

utilisons comme configuration de départ celle obtenue pour le champ précédent dans le calcul, il ne serait pas possible, à partir d'un état où les moments de cobalt sont parfaitement alignés dans la direction du champ, d'obtenir des renversements de moments sans introduire quelques fluctuations dans l'orientation des moments. Pratiquement, à partir d'une configuration initiale  $\theta_1=0^\circ$ ,  $\theta_N=0^\circ$  et  $\theta_i=180^\circ$  pour  $i \neq 1$  et  $i \neq N$ , le calcul commence pour une valeur de champ négatif et finit pour un champ nul. Nous utilisons les mêmes paramètres que ceux utilisés pour l'état à une paroi, en particulier la valeur  $J=340$  K.

La figure IV-B-3 montre les configurations de spins correspondantes. Pour une épaisseur de la couche centrale plus grande, il est plus facile de créer deux parois, une à chaque interface, et de retourner le moment de la couche centrale. Pour une même valeur de champ, la largeur de paroi est plus petite dans l'échantillon plus épais.

Les courbes d'aimantation résultant des simulations sont comparées aux courbes expérimentales sur les figures IV-B-4.

Un très bon accord est obtenu entre courbes d'aimantation mesurées et calculées. Il est remarquable, que les processus d'aimantation des deux états différents (transition et état à une paroi) et dans toute la série d'échantillons peuvent être simulés avec le même jeu de paramètres, caractéristique du matériau ( $\mu_{\text{Co-Zr}}$ ,  $J_{\text{Co-Co}}$ ,  $K_{\text{Co-Zr}}$  et  $a$ ), où  $\mu_{\text{Co-Zr}}$ ,  $K_{\text{Co-Zr}}$  et  $a$  sont des paramètres déterminés à partir des données expérimentales.

Les résultats des simulations présentés jusqu'à présent ont été obtenus par calcul de la configuration des moments de la couche centrale seulement, en remplaçant la configuration des couches externes par des conditions limites. Les courbes d'aimantation simulées rendent bien compte des courbes expérimentales, sauf pour l'épaisseur de Co-Zr la plus faible ( $e=46$  nm) et dans une moindre mesure pour l'échantillon avec  $e=87$  nm (figure IV-B-4).

Les simulations avec des couches externes à anisotropie infinie (cas des conditions aux limites) pour l'échantillon le plus mince de cette série ( $e=46$  nm) montrent, que pour cette épaisseur il n'est pas possible de retourner l'aimantation de la couche centrale complètement avec création d'une paroi à chaque interface située dans la couche centrale pour un champ inférieur au champ de retournement de la couche de Sm-Co moins coercitive (figures IV-B-5 et 7a).

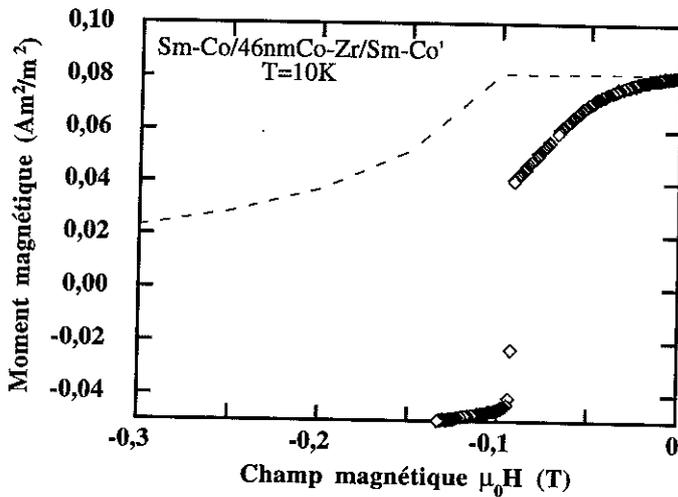


Figure IV-B-5: Courbes d'aimantation expérimentale et simulée pour la transition dans Sm-Co/e Co-Zr/Sm-Co' ( $e=46\text{nm}$ )

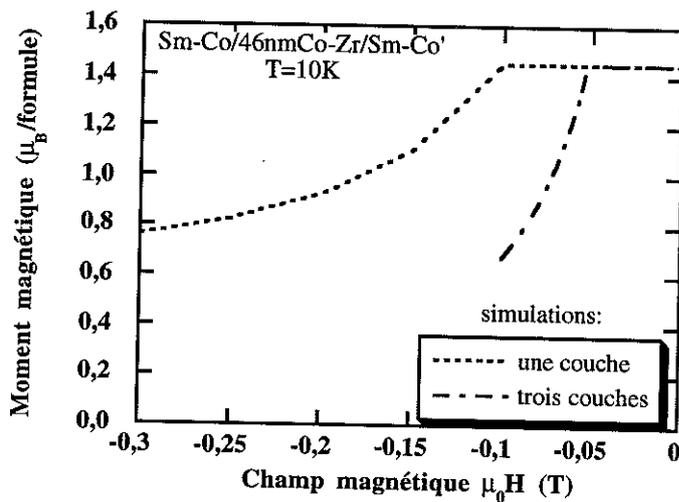


Figure IV-B-6 Courbes d'aimantation simulées avec une couche et avec trois couches à la transition dans Sm-Co/e Co-Zr/Sm-Co' ( $e=46\text{nm}$ )

Des calculs avec des couches externes présentant une anisotropie élevée mais finie (cas réel avec trois couches) de l'échantillon Sm-Co/46 nm Co-Zr/Sm-Co' permettent de décrire de façon beaucoup plus satisfaisante le renversement partiel des moments de cobalt de la couche centrale (figure IV-B-6), avant le retournement de la couche de Sm-Co pour un champ de  $\sim -0,1$  Tesla. Les configurations (figures IV-B-7b) correspondantes montrent l'extension de la paroi dans les couches dures de Sm-Co. Ce phénomène ne peut plus être négligé pour une couche centrale suffisamment mince. Comme pour l'échantillon de 43 nm, pour celui de 87 nm

d'épaisseur de Co-Zr, la prise en compte des couches externes de Sm-Co permettraient d'améliorer l'accord entre la courbe expérimentale et la courbe calculée (IV-B-3).

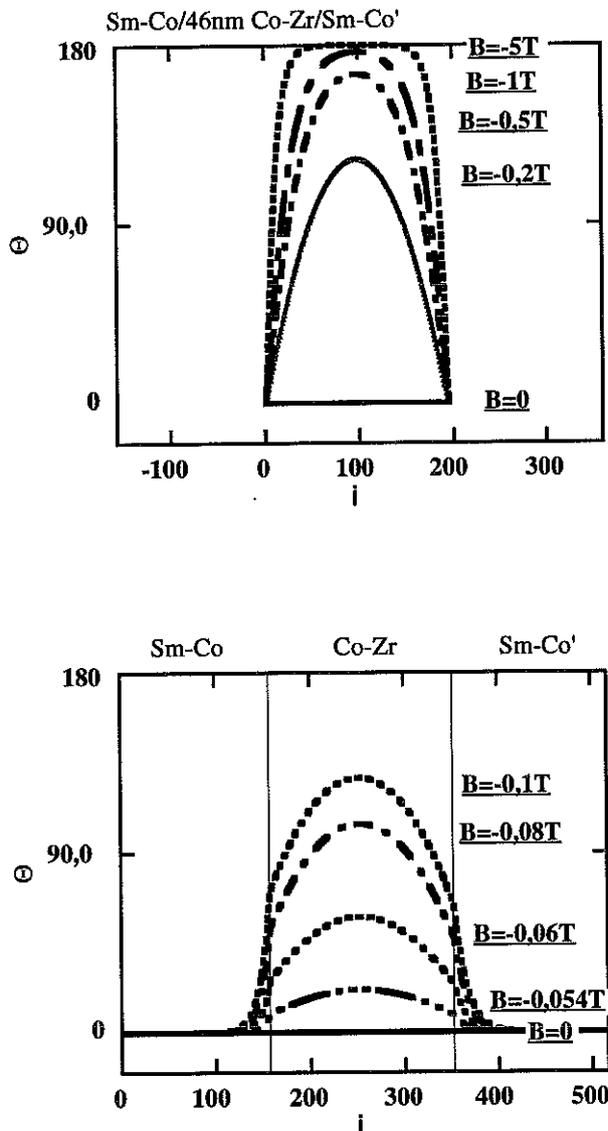


Figure IV-B-7: Configurations de spins calculées pour Sm-Co/46nm Co-Zr/Sm-Co' en simulant a) la couche centrale avec contraintes, b) les trois couches

### B.1.c. Renversement d'une couche coercitive

Pour les systèmes ferromagnétiques tels que Sm-Co/Co-Zr/Sm-Co', les champs de retournement  $H_1$  et  $H_2$  des couches coercitives de Sm-Co sont inférieurs aux champs coercitifs des couches simples de même composition et augmentent lorsque l'épaisseur de la couche de Co-Zr diminue (III.E.1.b.). Puisqu'avant le retournement de la couche de Sm-Co, l'interface

entre la couche de Sm-Co et celle de Co-Zr est le siège d'une paroi, nous avons suggéré (III.E.1.c) que le mécanisme de retournement de la couche de Sm-Co résultait d'une propagation de la paroi existant essentiellement dans la couche douce couplée.

Un tel mécanisme peut parfaitement être simulé numériquement de façon à vérifier le sens de variation du champ  $H_1$  en fonction de l'épaisseur.

Dans une première étape nous avons effectué des simulations avec deux couches, la couche douce centrale et la couche externe la moins coercitive, pour la zone de champ où l'on s'attend au retournement de l'aimantation dans la dernière. L'orientation des moments dans la couche la plus coercitive est prise en compte par la contrainte  $\theta_1=0^\circ$ . La couche de Sm-Co la moins coercitive est simulée par  $N=165$ ,  $J_{Co-Co}=120$  K et  $K=0,18$  K, la couche de Co-Zr étant décrite à partir des paramètres utilisés précédemment.

Pratiquement, les simulations partent d'une valeur de champ appliqué négative pour laquelle les couches de Sm-Co sont encore saturées en sens positif, mais il y a déjà un renversement partiel des moments de la couche centrale. A partir de cette configuration, la valeur absolue du champ appliqué est augmentée.

Les courbes d'aimantation et les configurations de moments correspondantes obtenues par cette procédure montrent, qu'il y a d'abord continuation du renversement partiel du moment de la couche centrale puis retournement brutal du moment de la couche de Sm-Co.

Les simulations pour des épaisseurs différentes,  $N=195$ , 370 et 830 de la couche centrale montrent que le champ de retournement de la même couche de Sm-Co est plus grand pour une épaisseur de la couche centrale plus petite. Cette évolution est en accord avec les observations expérimentales (figure IV-B-8).

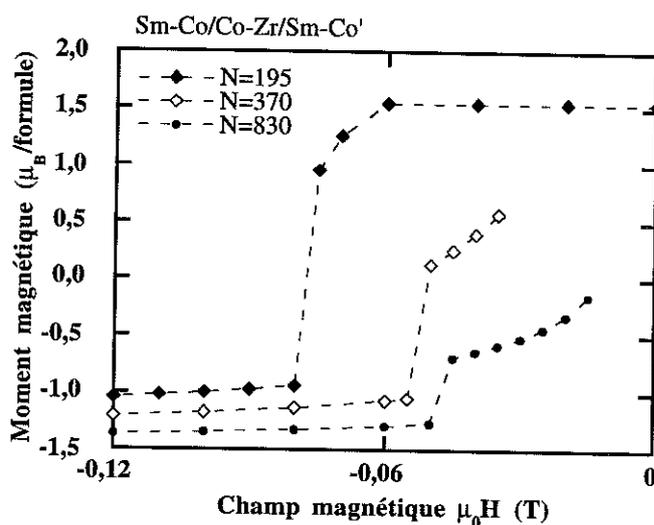


Figure IV-B-8: Simulation du retournement de la couche de Sm-Co la moins coercitive dans Sm-Co/Co-Zr/Sm-Co' pour trois épaisseurs différentes de la couche centrale ( $e=46$  nm, 87 nm, 195 nm)

Ces résultats montrent que dans ce cas les champs de retournement des couches coercitives de Sm-Co ne sont pas liés aux champs coercitifs de ces couches, mais plutôt à l'anisotropie de ces couches et à la difficulté de la paroi, qui a pris naissance dans la couche douce de Co-Zr, de se propager dans le matériau plus dur. Cela explique donc que les champs de retournement sont plus faibles que les champs coercitifs des couches simples et que les valeurs des champs de retournement augmentent lorsque l'épaisseur de la couche douce de Co-Zr couplée à celle de Sm-Co diminue.

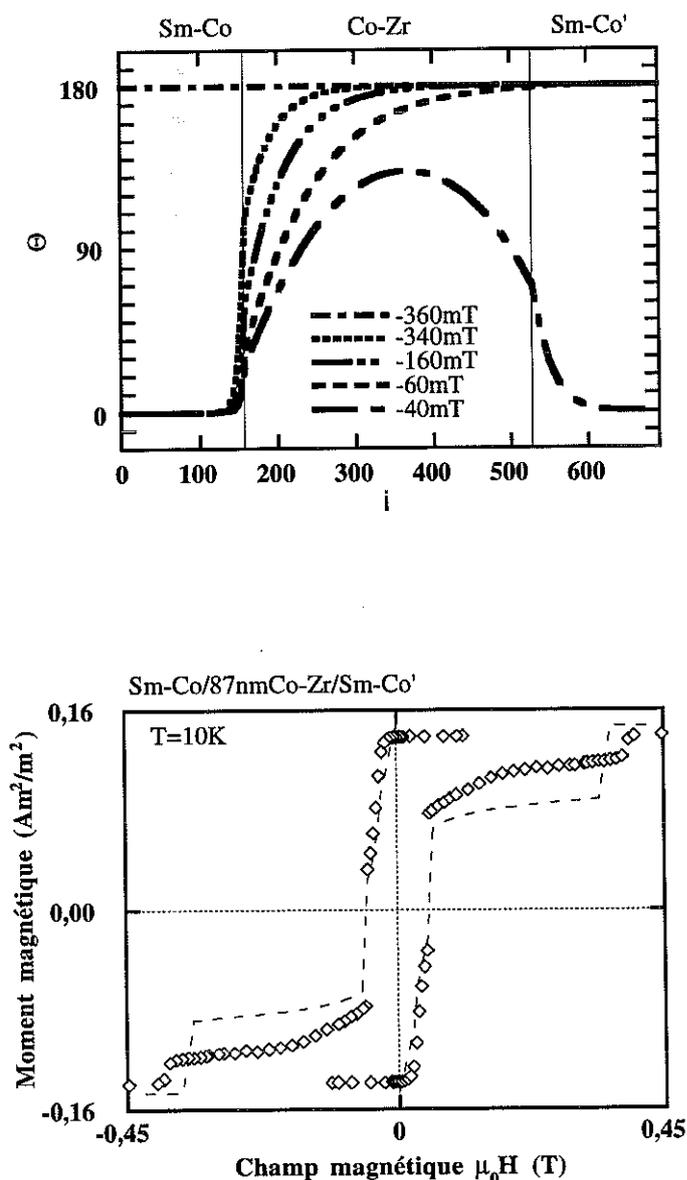


Figure IV-B-9:  
Simulation du retournement des couches de Sm-Co dans Sm-Co/87nm Co-Zr/Sm-Co

A partir d'une connaissance précise des paramètres (échange, moment, anisotropie, épaisseur), il est donc en principe possible d'effectuer des calculs sur les trois couches simulant les processus d'aimantation. Si les paramètres de la couche de Co-Zr sont bien définis, ceux des couches de Sm-Co (en particulier la constante d'anisotropie) sont moins bien définis. Ces résultats de calculs très récents sont présentés sur la courbe IV-B-9 avec les configurations correspondantes. Ils montrent le retournement brutal et successif de chacune des couches de Sm-Co pour des champs proches de la réalité à partir de paramètres pas trop éloignés de ceux des couches minces de Sm-Co.

Des mesures d'aimantation avec le champ appliqué perpendiculaire à la direction de facile aimantation des couches dures de Sm-Co, devraient permettre d'apporter des informations supplémentaires sur l'anisotropie de ces couches de façon à limiter les possibilités d'ajustement des paramètres. Il apparaît toutefois que l'ensemble de ces simulations confortent l'analyse faite sur le mécanisme de retournement des couches dures à partir de la propagation de parois de Bloch depuis la couche douce couplée.

## B.2 Sm-Co/Co/Sm-Co'

Pour les échantillons Sm-Co/e Co/Sm-Co' ( $e=41$  nm,  $75$  nm) analysés au paragraphe III.E.2., on observe une très faible susceptibilité dans l'état à une paroi, la pente étant plus faible pour l'échantillon le plus mince. Pour simuler ce processus, nous avons pris la même constante d'échange  $J=340$  K que pour Co-Zr et un moment magnétique  $m=1,7 \mu_B$ , celui du cobalt métallique. Les courbes d'aimantation simulées correspondantes rendent compte de cette

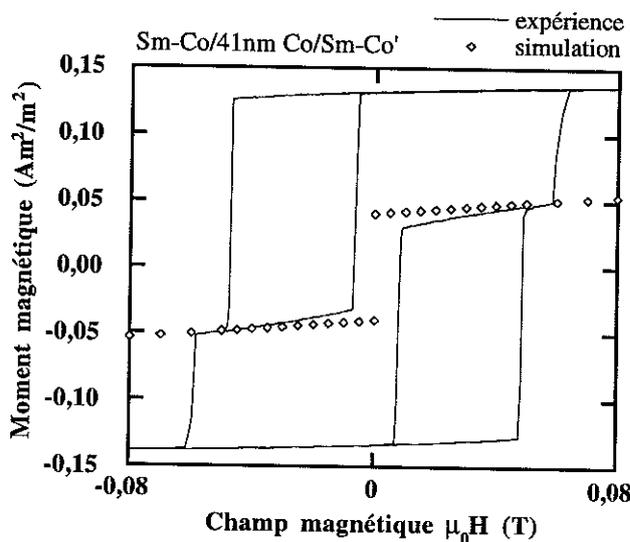


Figure IV-B-9: Courbes d'aimantation expérimentales à  $T=10$  K de Sm-Co/41nm Co/Sm-Co' avec cycles mineurs (trait continu) et simulations ( $N=164$ ,  $J=340$  K;  $K=0$ ) avec contraintes  $\theta_I=0^\circ$  et  $\theta_N=180^\circ$  (losanges)

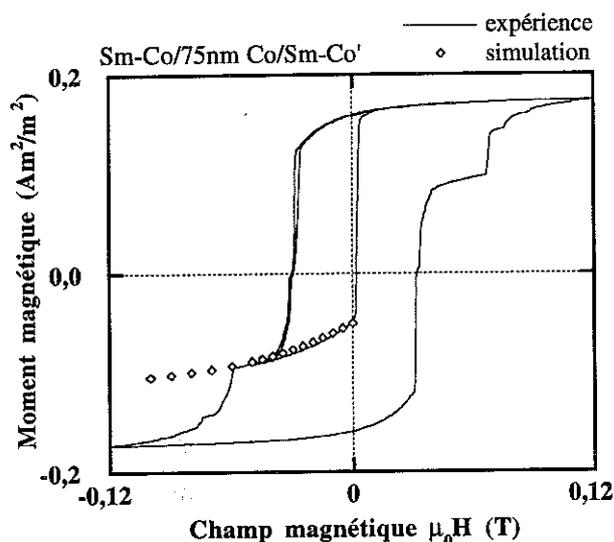


Figure IV-B-9: Courbes d'aimantation expérimentales à  $T=10$  K de Sm-Co/75nm Co/Sm-Co' avec cycles mineurs (trait continu) et simulations ( $N=300$ ;  $J=340$  K;  $K=0$ ) (losanges)

faible susceptibilité (figure IV-B-9), qui correspond à un faible déplacement de la paroi lorsque le champ appliqué varie (figure IV-B-10), ainsi que de sa variation avec l'épaisseur de la couche centrale.

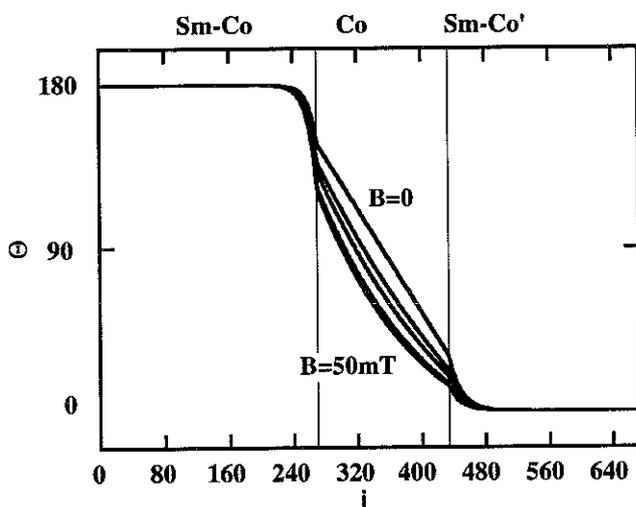


Figure IV-B-10: Configurations de spins calculées à  $B_a=50$  mT, 40 mT, 30 mT, 20 mT, 0 mT pour une simulation à trois couches correspondant à Sm-Co/41 nm Co/Sm-Co'

La susceptibilité de l'état à une paroi est plus grande pour la simulation avec trois couches, allant dans le sens des courbes expérimentales, compte tenu de l'extension de la paroi dans les couches dures de Sm-Co (figure IV-B-10). Cette extension dépend de l'anisotropie de chaque couche de Sm-Co. Les valeurs des constantes d'anisotropie sont celles déduites des courbes d'aimantation des couches simples.

### B.3. Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co'

Pour la simulation de couches de Gd-Co, on tient compte du fait, que le moment magnétique, qui intervient pour le couplage d'échange entre moments de cobalt, n'est pas identique au moment Zeeman (moment de l'alliage Gd-Co), qui est orienté en sens opposé de celui du cobalt. Comme l'interaction d'échange est prépondérante entre atomes de cobalt (paragraphe II.A.2.), à un site de la chaîne de simulation correspond un moment magnétique par unité de formule ramenée par atome de cobalt, par exemple  $Gd_{0,56}Co$ .

A partir de la densité trouvée pour ce système (paragraphe II.B.2.b.)  $\rho=7,5 \text{ g/cm}^3$  et de la masse molaire on estime la distance moyenne entre deux atomes de cobalt à  $a=0,3 \text{ nm}$ , ce qui définit le nombre de moments par chaîne pour la simulation.

Une difficulté supplémentaire pour la description du système à base de Gd-Co provient du décalage en composition des couches de Gd-Co en fonction de l'épaisseur. Suite à des analyses RBS, nous avons mis en évidence ce décalage par des mesures de SIMS, qui donnent le profil de composition de chaque élément du matériau en fonction de l'épaisseur (voir paragraphe I.B.2.). Cela signifie que les échantillons ayant des épaisseurs de la couche de Gd-Co différentes ont une composition moyenne différente (variant entre  $Gd_{0,56}Co$  et  $Gd_{0,77}Co$ ) et donc un moment moyen par site de Gd-Co variant d'un échantillon à un autre ( $2,5 \mu_B$ /formule  $Gd_{0,56}Co$  à  $4,0 \mu_B$ /formule  $Gd_{0,77}Co$ ). Pour trois échantillons ( $e=43 \text{ nm}$ ,  $82 \text{ nm}$ ,  $530 \text{ nm}$ ), nous avons fait des simulations en tenant compte de la composition moyenne exacte et du moment exact par site.

Comme pour la série avec du Co-Zr, nous avons effectué des simulations sur la seule couche de Gd-Co en tenant compte des couches externes de Sm-Co, en fixant la position des moments aux deux extrémités de la chaîne de Gd-Co. Dans l'état à une seule paroi nous imposons les conditions aux limites  $\theta_1=0^\circ$ ,  $\theta_N=180^\circ$ .

#### B.2.a. Simulation des processus d'aimantation dans l'état à une paroi

Pour les échantillons Sm-Co/43nm  $Gd_{0,56}Co$ /Sm-Co', Sm-Co/82nm  $Gd_{0,62}Co$ /Sm-Co' et Sm-Co/530nm  $Gd_{0,77}Co$ /Sm-Co', il y a accord entre les courbes d'aimantation expérimentales de l'état à une paroi et les simulations d'une couche avec contraintes pour les paramètres montrés au tableau IV-B-1 (figure IV-B-11).

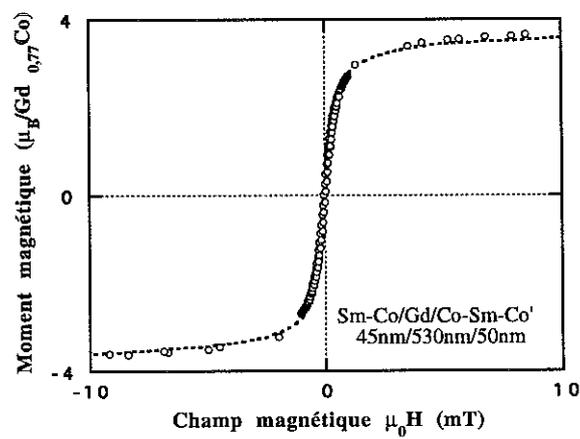
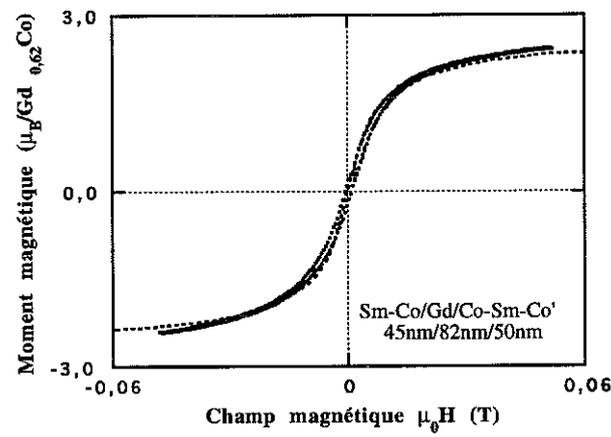
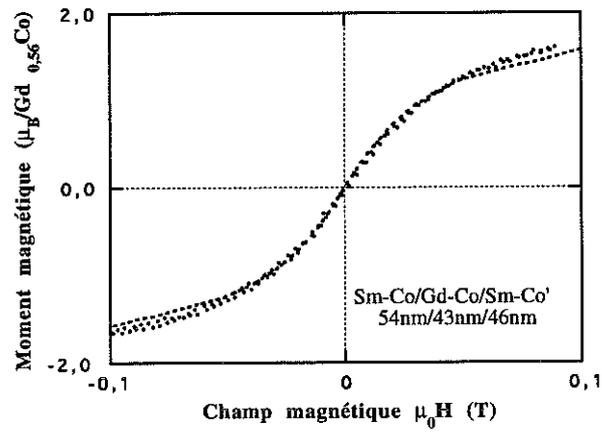
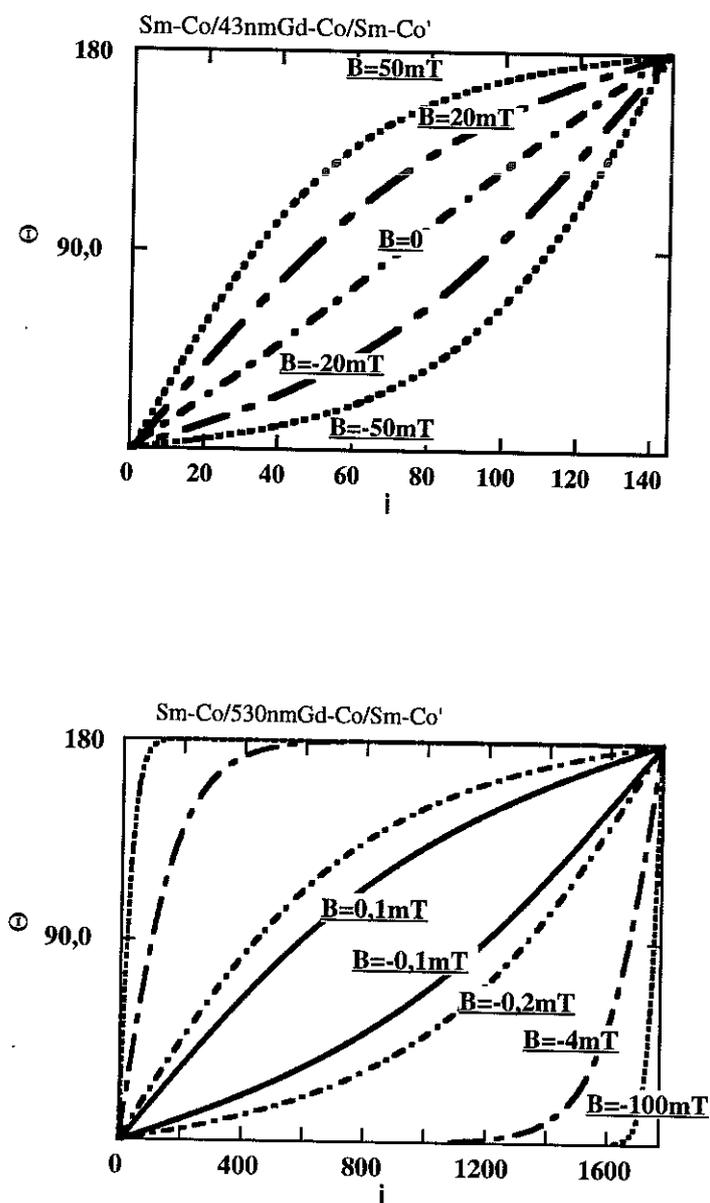


Figure IV-B-11: Courbes d'aimantation expérimentales et simulées de Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co' ( $e=43$  nm, 82 nm, 530 nm) pour l'état à une paroi

|  | $\mu_{\text{Gd-Co}}$<br>[ $\mu\text{B}/\text{formule}$ ] | N    | $J_{\text{Co-Co}}$<br>[K] | K     |
|--|--|------|---------------------------|-------|
| Sm-Co/43nm Gd <sub>0,56</sub> Co/Sm-Co'  | 2,5  | 145  | 135                       | 0,010 |
| Sm-Co/82nm Gd <sub>0,62</sub> Co/Sm-Co'  | 2,9  | 275  | 80                        | 0     |
| Sm-Co/530nm Gd <sub>0,77</sub> Co/Sm-Co' | 4  | 1770 | 200                       | 0     |

Tableau IV-B-1: Paramètres de simulation pour Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co

Figure IV-B-12: Configurations de spins calculées avec des contraintes  $\theta_I=0^\circ$ ,  $\theta_N=180^\circ$  pour  $N=145$  et  $1770$  correspondant aux échantillons Sm-Co/e Gd-Co/Sm-Co' ( $e=43\text{ nm}$ ,  $530\text{ nm}$ )

## B.2.b Transition liée au renversement de la couche douce

A la transition les moments des deux couches de Sm-Co restent parallèles et de même sens et la simulation a été effectuée sur la seule couche de Gd-Co en imposant les conditions aux limites  $\theta_1=0^\circ$ ,  $\theta_N=0^\circ$ . Le calcul commence pour une valeur de champ positif, qui tend ensuite vers zéro, et avec une configuration de moments initiale  $\theta_i=180^\circ$  pour  $i \neq 1$  et  $i \neq N$ . Les configurations de moments reportées sur les figures IV-B-13 représentent l'orientation de chaque moment de cobalt dans la chaîne par rapport à la direction du champ appliqué. Il faut de plus se rappeler que dans l'alliage de Gd-Co, le moment total est de sens opposé à celui du cobalt.

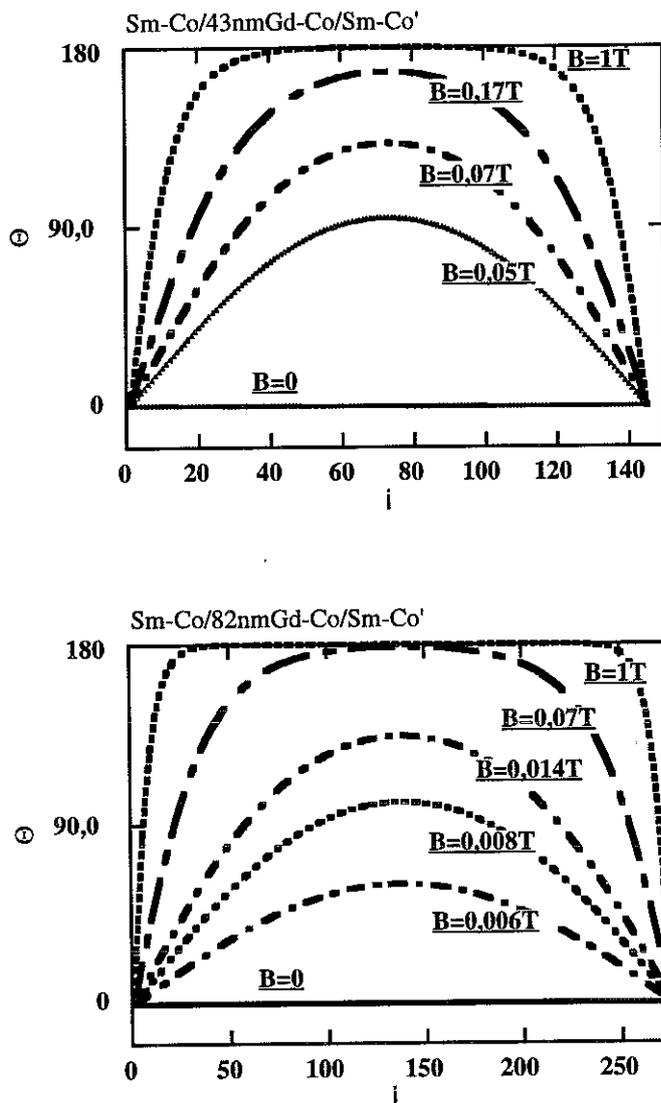


Figure IV-B-13:

Configurations de moments magnétiques calculées avec des contraintes  $\theta_1=0^\circ$ ,  $\theta_N=0^\circ$  pour la transition de Sm-Co/e Gd-Co/Sm-Co' ( $e=43 \text{ nm}$ ,  $82 \text{ nm}$ )

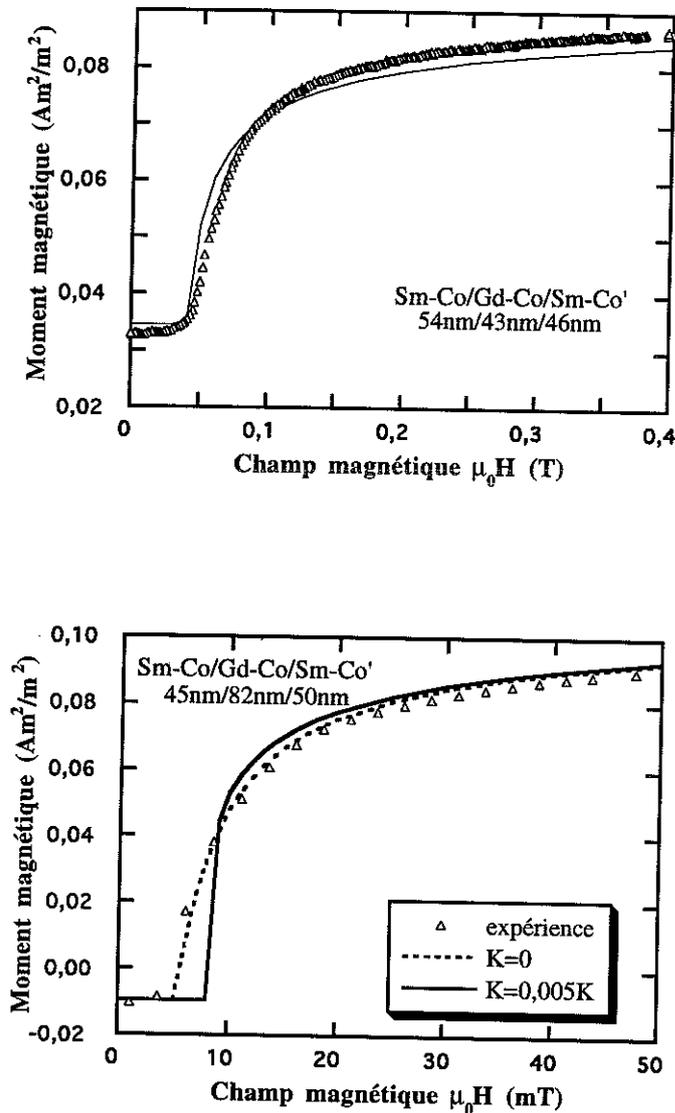


Figure IV-B-14: Courbes d'aimantation expérimentales (cercles) et simulées (trait continu) à la transition de Sm-Co/e Gd-Co/Sm-Co' ( $e=43\text{nm}$ ,  $82\text{nm}$ )

Les simulations de la transition effectuées avec les paramètres reportés dans le tableau IV-B-1 rendent bien compte des courbes expérimentales de Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co' ( $e=43\text{nm}$ ,  $82\text{nm}$ ). Ce sont les mêmes paramètres, qui décrivent la variation d'aimantation dans l'état à une paroi du même échantillon.

Sur la figure IV-B-14 pour Sm-Co/82 nmGd-Co/Sm-Co', nous montrons en plus de la courbe expérimentale et la simulation avec les paramètres du tableau, le résultat que l'on obtient en remplaçant  $K=0$  par une anisotropie  $K=0,005\text{K}$ . Ce résultat montre, qu'il suffit d'une très faible anisotropie pour que la transition devienne plus abrupte, tendant vers une transition du premier ordre.

Pour les simulations des échantillons à base de Gd-Co, il est possible pour chaque échantillon de trouver un jeu de paramètres (en fait essentiellement  $J_{Co-Co}$ ) permettant de décrire les processus d'aimantation dans chaque type de configuration de parois. Mais il est difficile de justifier l'évolution du paramètre  $J_{Co-Co}$  d'un échantillon à l'autre (tableau IV-B-1). Il faut se rappeler que dans cette série d'échantillons la composition du Gd-Co variait au cours du dépôt conduisant à des compositions moyennes différentes d'un échantillon à l'autre.

#### B.4 Y-Co/Gd-Co/Y-Co

Le système Y-Co/Gd-Co/Y-Co est composé de trois couches en matériau magnétiquement doux. Pour simuler ses processus d'aimantation, il est indispensable de calculer simultanément l'évolution de la configuration des moments dans les trois couches constitutives.

Les constantes J et K caractérisant les propriétés magnétiques de Y-Co et Gd-Co ont des valeurs proches. Pour ce système sans coercitivité, c'est l'aimantation de la couche dont le moment total est le plus faible qui se retourne. Par exemple, pour le système d'épaisseurs 140nm/60nm/140nm, c'est l'aimantation de la couche de Gd-Co qui se renverse à la transition.

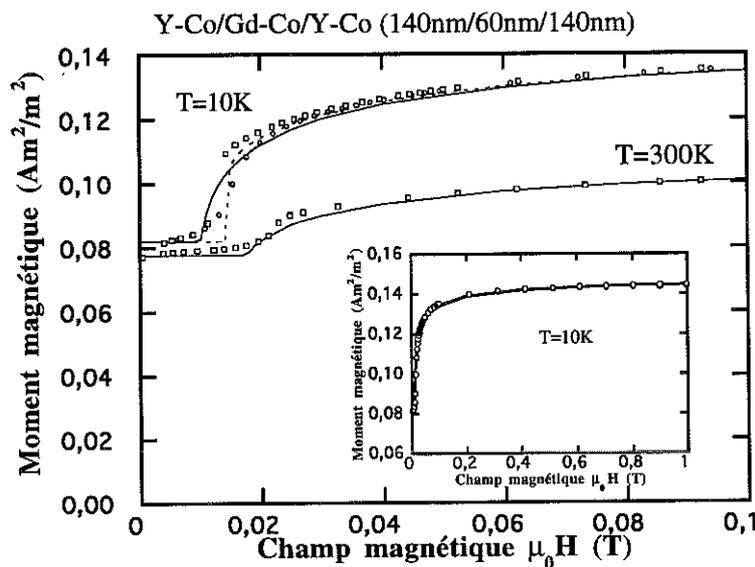


Figure IV-B-15: Courbes d'aimantation expérimentales (ronds) et simulées (traits) pour le système  $YCo_{1,9}/GdCo_{2,3}/YCo_{1,9}$  (140nm/60nm/140nm)

La figure IV-B-15 montre les courbes d'aimantation de l'échantillon  $\text{YCo}_{1,9}/\text{GdCo}_{2,3}/\text{YCo}_{1,9}$  (140nm/60nm/140nm) mesurées à  $T=10$  K et  $T=300$  K, ainsi que les courbes simulées.

On trouve un accord entre calcul et expérience à 10 Kelvin en prenant pour chaque couche de Y-Co les paramètres  $N_{\text{Y-Co}} = 465$ ,  $J_{\text{Co-Co}}(\text{Y-Co}) = 250$  K,  $K_{\text{Y-Co}} = 0$ ,  $\mu_{\text{Y-Co}} = 0,97 \mu\text{B}/\text{Co}$  et pour la couche de Gd-Co les paramètres  $N_{\text{Gd-Co}} = 160$ ,  $J_{\text{Co-Co}}(\text{Gd-Co}) =$

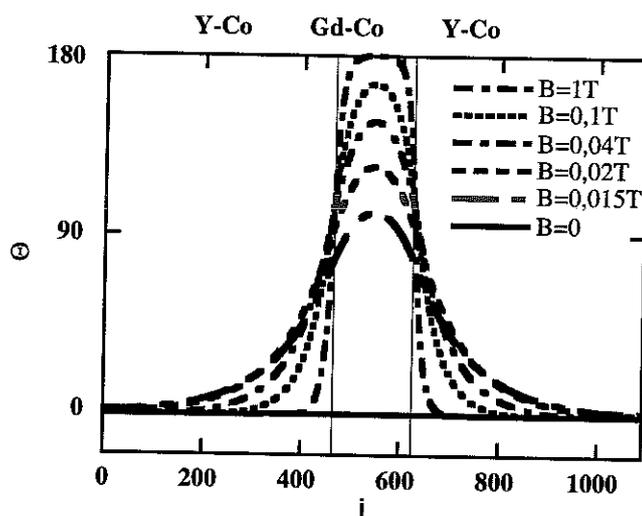


Figure IV-B-16: Configurations de spins calculées pour un système à trois couches correspondant à Y-Co-Gd-Co/Y-Co (140nm/60nm/140nm)

140 K,  $K = 0,001$  K,  $\mu_{\text{Gd-Co}} = -1,64 \mu\text{B}/\text{Gd}_{0,43}\text{Co}$ ,  $2S_J(\text{Gd-Co}) = 1,4 \mu\text{B}/\text{Co}$ . L'effet de la température est simulé par la variation des moments magnétiques correspondante avec  $m_{\text{Y-Co}}(300\text{K}) = 0,78 \mu\text{B}/\text{Co}$ ,  $m_{\text{Gd-Co}} = -0,80 \mu\text{B}/\text{Gd}_{0,43}\text{Co}$  et  $2S_J(\text{Gd-Co}) = 1,12 \mu\text{B}/\text{Co}$ . Le trait discontinu dans la figure IV-B-15 correspond à une simulation pour  $T=10$  K avec les mêmes paramètres pour les moments et l'échange, mais avec  $K=0,005$  K. Avec une anisotropie plus élevée, la transition devient plus brutale, la courbe expérimentale se trouvant entre les deux courbes calculées. Les moments magnétiques correspondent aux moments mesurés pour des couches simples (chapitre II).

Les configurations de spins correspondantes (figure IV-B-16) montrent, que la paroi s'étend de chaque côté de l'interface, comme on s'y attend quand il y a un matériau doux de chaque côté.

Si on définit la largeur de la paroi  $\delta$  par la largeur de la zone où les spins tournent de  $145^\circ$ , des configurations simulées on déduit des largeurs de paroi entre  $\delta=5,4$  nm pour 5 T et plus de

$\delta=57$  nm pour 0,05T. Ces valeurs sont du même ordre de grandeur que les largeurs de parois déduites de l'expérience à partir de la relation  $\delta \sim \frac{1}{\sqrt{H}}$  (III.D.4).

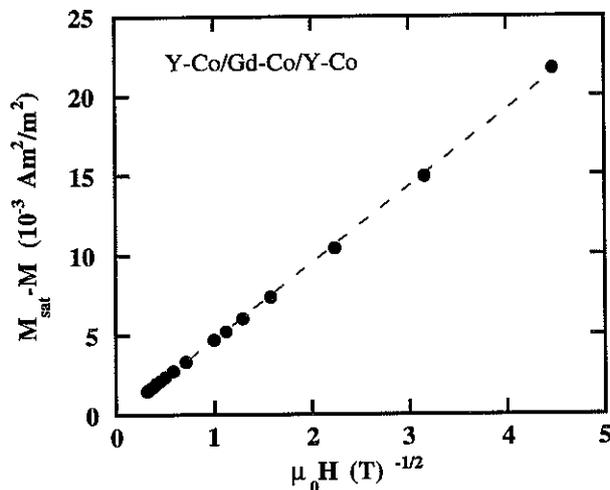


Figure IV-B-17:

Approche à la saturation de la courbe d'aimantation simulée pour Y-Co/Gd-Co/Y-Co (140nm/60nm/140nm)

Pour les courbes simulées, l'approche de l'aimantation à la saturation,  $M_{\text{sat}} - M$  varie comme l'inverse de la racine du champ appliqué  $H^{-1/2}$  (figure IV-B-17) comme dans le modèle analytique de Dieny [Dieny B., 1990] cité au chapitre III. Ce comportement n'a pas pu être vérifié expérimentalement sur nos échantillons, parce que des mesures suffisamment propres pour des valeurs de champ suffisamment fortes n'étaient pas disponibles.

## IV.C. Discussion

### C.1. Température de Curie

La valeur de l'intégrale d'échange entre atomes de cobalt est reliée à la température de Curie  $T_C$  du matériau considéré (Co-Zr, Gd-Co ou Y-Co) par la formule

$$T_C = \frac{2}{3} z J S(S+1)$$

où  $z$  représente le nombre de premiers voisins (avec  $J$  et  $T_C$  en Kelvin).

Pour le système à base de Co-Zr, avec la valeur de l'intégrale d'échange  $J_{\text{Co-Co}}(\text{Co-Zr})=340$  K déterminée par simulation numérique, la stricte application de la formule ci-dessus dans un modèle 1D ( $z=2$ ) conduit à une valeur pour  $T_C$  de 625 K, qui ne tient pas compte des

interactions d'échange d'un atome de cobalt de la chaîne considérée avec les atomes de cobalt premiers voisins situés dans les chaînes adjacentes.

La prise en compte de ces interactions entre chaînes dépend de la structure amorphe exacte du matériau considéré (voir II.A.2.). Dans un modèle de structure amorphe décrite par un empilement compact de sphères, un atome donné a douze premiers voisins situés dans trois plans consécutifs perpendiculaires à la direction de la chaîne du modèle 1D, chacun de ces plans comprenant successivement trois, six et trois premiers voisins. Ce modèle de chaîne ne prend pas en compte les six premiers voisins du plan, situés dans des chaînes adjacentes: le calcul précédent ne prendrait donc en compte que la moitié des interactions, ce qui conduirait à une température de Curie  $T_C=1250$  K. Cette valeur est assez réaliste pour un matériau de composition  $\text{Co}_{0,95}\text{Zr}_{0,05}$  comparée à la valeur de la température de Curie du cobalt métallique ( $\sim 1380\text{K}$ ). Dans une structure amorphe modélisée par un arrangement cubique simple, moins réaliste, le modèle 1D ne prendrait en compte qu'un tiers des interactions, ce qui conduirait à une valeur de la température de Curie de  $1875$  K, valeur certes trop forte, mais dont l'ordre de grandeur est encore raisonnable.

Pour les échantillons à base de Gd-Co, la valeur de  $J_{\text{Co-Co}}(\text{Gd-Co})=135$  K obtenue dans les simulations conduit dans le premier modèle de structure cristallographique cité précédemment à une valeur de  $T_C=430$  K, valeur en accord avec les variations thermiques mesurées pour ces composés (paragraphe II.B.2.a).

## C.2. Echange à l'interface

Dans les systèmes que nous avons étudiés, les interactions d'échange sont essentiellement entre atomes de cobalt dans chacune des couches et également entre atomes de cobalt aux interfaces. Dans les simulations présentées, nous avons donc pris le même paramètre d'échange  $J_{\text{Co-Co}}$  aux interfaces que dans les couches.

Nous avons testé l'effet d'une modification de l'échange aux interfaces, qui pourraient résulter de la préparation des échantillons. Nous avons effectué des simulations sur le système Sm-Co / Gd-Co / Sm-Co' (54nm/43nm/46nm) et le système Y-Co / Gd-Co / Y-Co (140nm/60nm/140nm) en faisant varier l'échange à l'interface (figures IV-C-1). Le résultat montre, qu'une réduction de l'échange à l'interface conduit à une diminution du champ de transition, mais que le champ de transition n'est pas sensible à de faibles variations de l'échange aux interfaces.

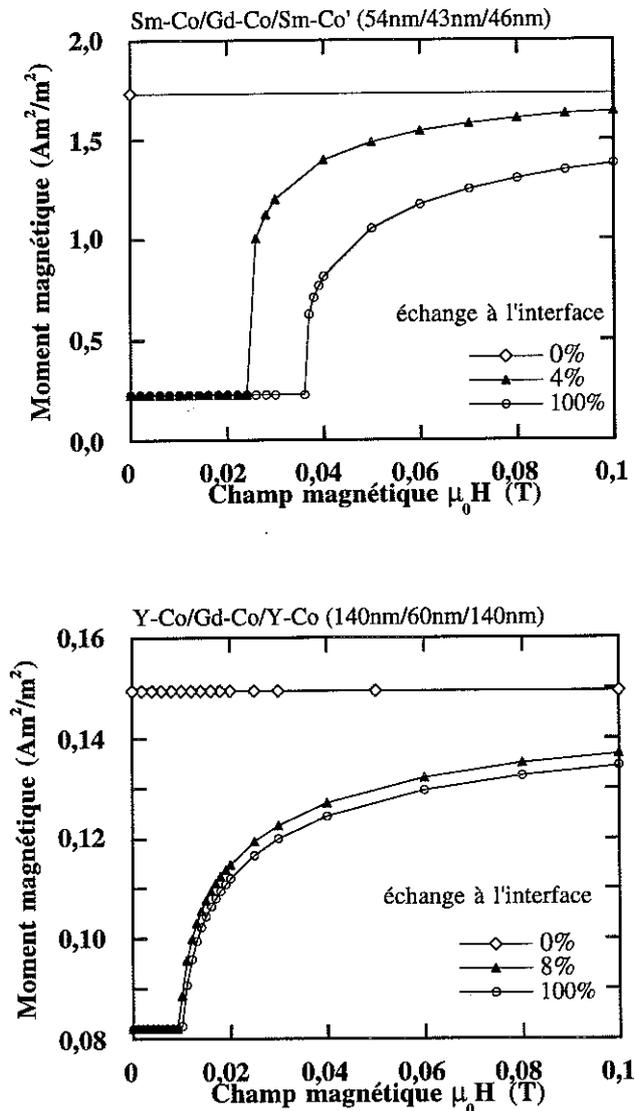


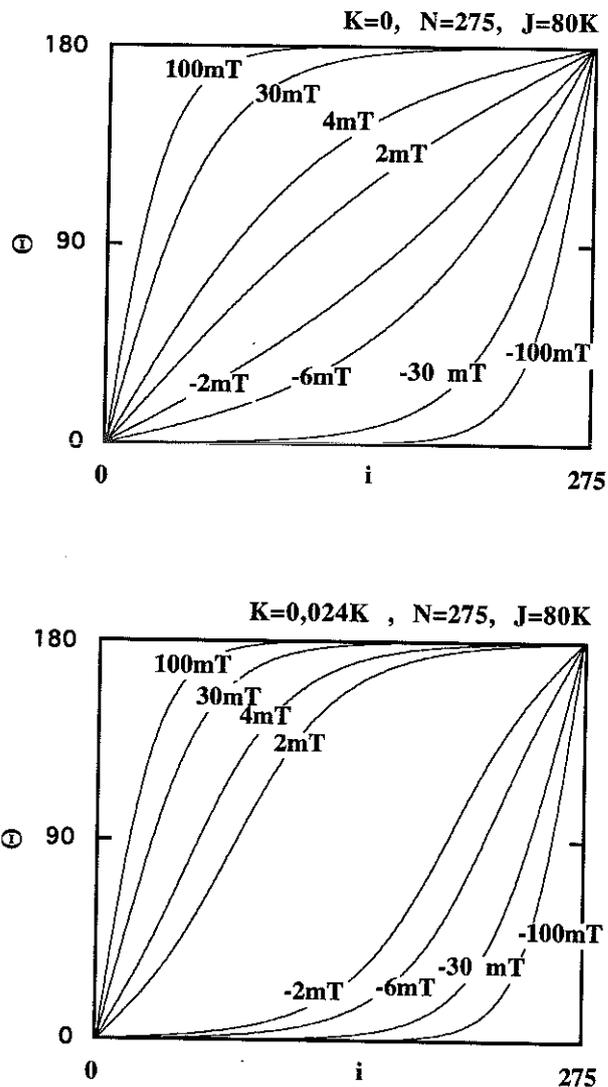
Figure IV-C-1: Courbes d'aimantation à la transition calculées en simulant trois couches avec différentes valeurs de la constante d'échange aux interfaces (0%, 4% ou 8% et 100% de l'échange à l'intérieur d'une couche)

### C.3. Influence de l'anisotropie

Dans ces matériaux à anisotropie très faible, la largeur de la paroi n'est pas une grandeur intrinsèque au matériau, mais ne dépend en fait que des dimensions de la couche centrale, dans laquelle la paroi est confinée.

Les figures IV-C-2 montrent les configurations de moments calculées pour une couche avec contraintes  $\theta_1=0^\circ$  et  $\theta_N=180^\circ$  pour  $J_{Co-Co}=80$  K et  $N=275$  avec et sans anisotropie ( $K=0$  et  $K=0,024$  K). Ces paramètres correspondent à ceux de la simulation avec  $K=0$ , qui rend

compte de la courbe d'aimantation expérimentale de Sm-Co/82 nm Gd-Co/Sm-Co' dans l'état à une paroi.



Figures IV-C-2: Configurations de moments magnétiques calculées pour  $J=80$  K,  $N=275$  avec et sans anisotropie

On observe, que le déplacement de la paroi entre les deux interfaces pour une variation de champ donnée est plus grand pour le système avec anisotropie, conduisant à une susceptibilité en champ faible plus grande (figure IV-C-3).

Ce résultat montre, qu'une anisotropie assez faible d'environ  $K=0,024$  Kelvin permet de doubler la susceptibilité. Cette augmentation de susceptibilité serait encore plus grande pour un échantillon avec une couche centrale plus épaisse. Pour obtenir des matériaux à forte susceptibilité nous suggérons de fabriquer des systèmes sandwich du type

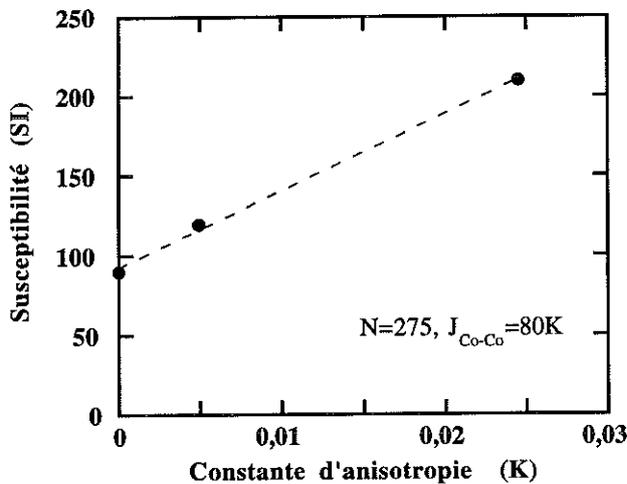


Figure IV-C-3: Évolution de la susceptibilité des courbes d'aimantation simulées avec contraintes  $\Theta_I=0^\circ$  et  $\Theta_N=180^\circ$  en fonction de la constante d'anisotropie

Sm-Co/Gd<sub>1-y</sub>Tb<sub>y</sub>Co<sub>2</sub>/Sm-Co' où il est possible de remplacer 5 à 10% de gadolinium par du terbium, ce qui permet d'augmenter l'anisotropie macroscopique induite sans que la couche ainsi fabriquée devienne coercitive.

### Conclusion du chapitre IV

Les simulations numériques que nous avons effectuées sur plusieurs de nos systèmes expérimentaux décrivent particulièrement bien les processus d'aimantation observés. Ces résultats justifient le modèle de parois, dont nous avons supposé l'existence. La géométrie des systèmes tri-couches, le fort couplage aux interfaces nécessitent l'existence de parois de Bloch étendues et parallèles aux interfaces: ces parois idéales sont bien décrites par le modèle de paroi à une dimension que nous avons utilisé et qui suppose l'invariance des propriétés dans un plan parallèle aux interfaces. Les systèmes étudiés apparaissent de ce point de vue comme des systèmes modèles pour la compréhension des mécanismes gouvernant les processus d'aimantation. Il paraît intéressant de pouvoir décrire l'ensemble des processus d'aimantation du système Sm-Co/Co-Zr/Sm-Co' à partir d'un seul paramètre ajustable ( $J_{Co-Co}$ ) en plus des paramètres déterminés à partir de données expérimentales.

Les simulations permettent de tester l'influence de certains paramètres ainsi que les mécanismes à l'origine des processus d'aimantation. Le calcul permettant de décrire le retournement d'une couche coercitive couplée à une couche faite d'un matériau doux est particulièrement intéressant de ce point de vue.



# CHAPITRE V: Propriétés dynamiques

|                                    |     |
|------------------------------------|-----|
| V.A. Technique expérimentale ..... | 165 |
| V.B. Résultats expérimentaux.....  | 166 |
| V.C. Analyse des résultats.....    | 168 |
| Conclusion.....                    | 170 |



# CHAPITRE V

## Propriétés dynamiques

Les systèmes étudiés apparaissent à plus d'un point de vue comme des systèmes modèles, pour les études de micromagnétisme. En particulier, les parois de Bloch étendues que nous avons décrites ont des propriétés intrinsèques. Leur déplacement est lié à des processus de rotation de moments, où les défauts ne devraient pas intervenir dans ces matériaux amorphes.

De ce fait, ces systèmes sont de bons candidats à des comportements également idéaux à haute fréquence. D'une part, du fait de l'épaisseur des couches de ces systèmes le comportement dynamique ne devrait pas être gêné par les effets de peau. Compte tenu du caractère amorphe et de la géométrie de ces parois, ces systèmes devraient conserver des perméabilités élevées dans une large gamme de fréquence. D'autre part, la résonance ferromagnétique dépend de la géométrie de l'échantillon [Kittel C., 1948] et la géométrie en couches minces de nos échantillons est bien adaptée à des études quantitatives.

Nous présentons dans ce chapitre les tout premiers résultats obtenus sur deux de nos échantillons.

### V.A. Technique expérimentale

Une canne de mesure a été construite pouvant s'installer dans un cryostat permettant d'effectuer des mesures entre 1,5 K et 300 K et de produire des champs suffisants pour configurer l'échantillon dans l'état désiré.

L'échantillon est placé dans une petite bobine plate comprenant quatre spires, d'impédance  $Z_2=R_2+iL_2\omega$ . Cette bobine est connectée par l'intermédiaire d'un câble coaxial d'impédance caractéristique  $Z_c$  à un analyseur d'impédance HP 4191A, capable d'alimenter la bobine de détection entre 1 MHz et 1000 MHz. L'impédance mesurée par l'analyseur est  $Z_1=R_1+iX_1$ , qui permet de calculer la self inductance  $L_2$  de la bobine de mesure (voir calcul en annexe V). La différence de self inductance  $L_2$ , avec et sans échantillon est proportionnelle à la susceptibilité de l'échantillon.

### V.B. Résultats expérimentaux

Nous avons mesuré à la température de 10 K à différentes fréquences entre 1 et 300 MHz en fonction du champ statique appliqué, la susceptibilité alternative des deux échantillons Sm-Co/530nm Gd-Co/Sm-Co' et Sm-Co/470nm Co-Zr/Sm-Co' (dans l'état à une paroi et à la transition), qui ont les plus grandes susceptibilités.

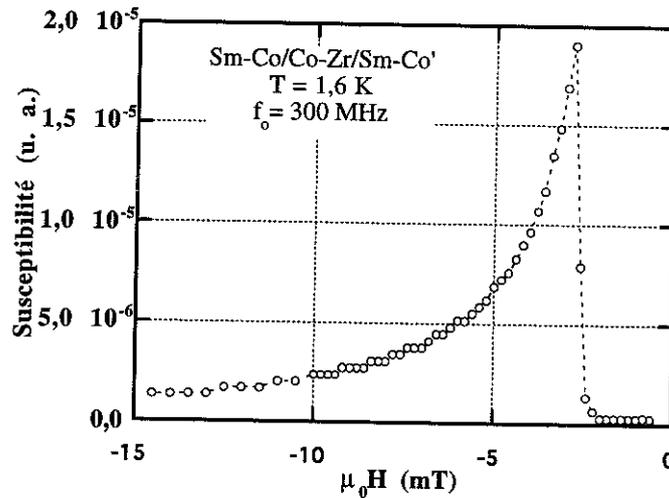


Figure V-B-1: Susceptibilité alternative à 300 MHz en fonction du champ appliqué mesurée à la transition pour l'échantillon Sm-Co/470nm Co-Zr /Sm-Co'.

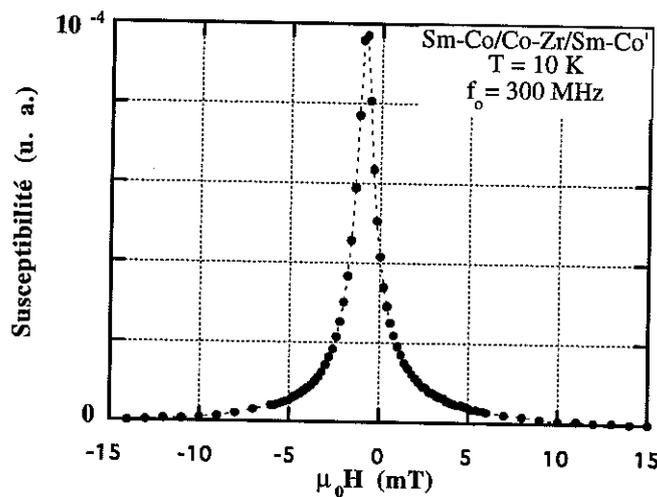


Figure V-B-2:  
Susceptibilité alternative à 300 MHz en fonction du champ appliqué mesurée dans l'état à une paroi à 180° pour l'échantillon Sm-Co/ 470nm Co-Zr/Sm-Co'.

Les figures V-B-1 à V-B-4 montrent les susceptibilités mesurées dans les deux états de configuration possibles en champ faible pour ces deux échantillons d'environ 500 nm

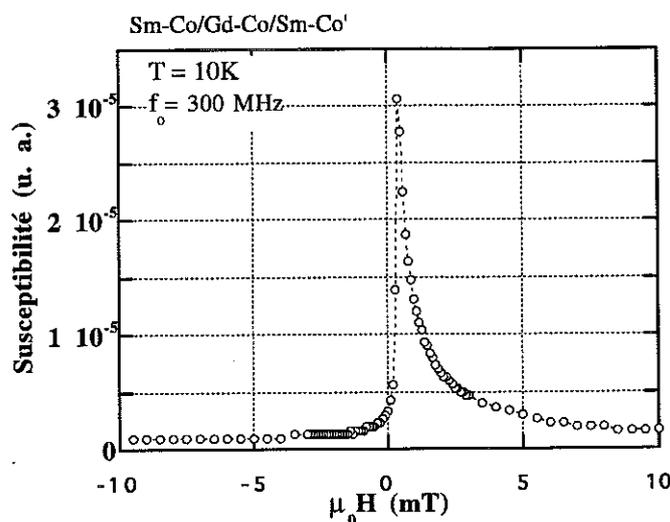


Figure V-B-3: Susceptibilité alternative à 300 MHz en fonction du champ appliqué mesurée à la transition pour l'échantillon Sm-Co/530nm Gd-Co/Sm-Co'.

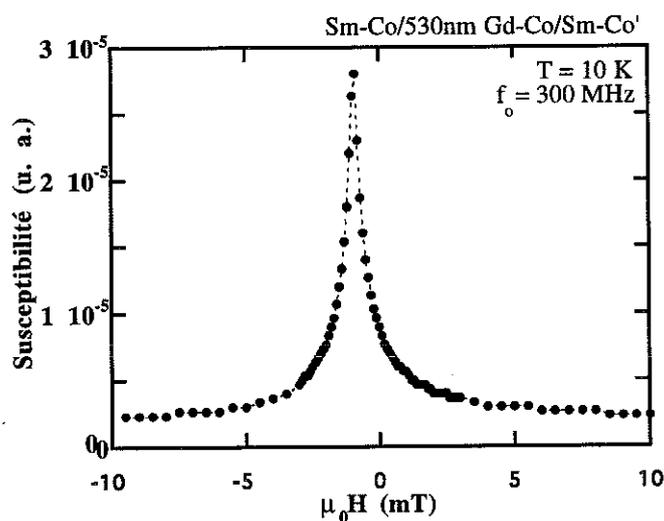


Figure V-B-4:  
Susceptibilité alternative à 300 MHz en fonction du champ appliqué mesurée dans l'état à une paroi à 180° pour l'échantillon Sm-Co/530nm Gd-Co/Sm-Co'.

d'épaisseur.

Les deux états de configuration se distinguent très nettement. La susceptibilité dans l'état à une paroi est caractérisée par un pic de susceptibilité symétrique par rapport au

champ appliqué alors que la susceptibilité à la transition est dissymétrique, en accord avec les courbes d'aimantation dans la zone de champ correspondante.

Dans l'état à une seule paroi, le maximum de susceptibilité devrait se produire en champ nul. L'écart est dû au champ rémanent de la bobine supraconductrice qui produit le champ statique. En revanche, à la transition entre l'état monodomaine et l'état à deux parois, au champ rémanent de la bobine supraconductrice près, le maximum de susceptibilité est en champ positif pour l'échantillon ferrimagnétique à base de Gd-Co et en champ négatif pour l'échantillon ferromagnétique à base de Co-Zr.

### V.C. Analyse des résultats

De l'ensemble des courbes de susceptibilité  $\chi$  (H) à différentes fréquences, on peut déduire le maximum de susceptibilité en fonction de la fréquence dans chacun des

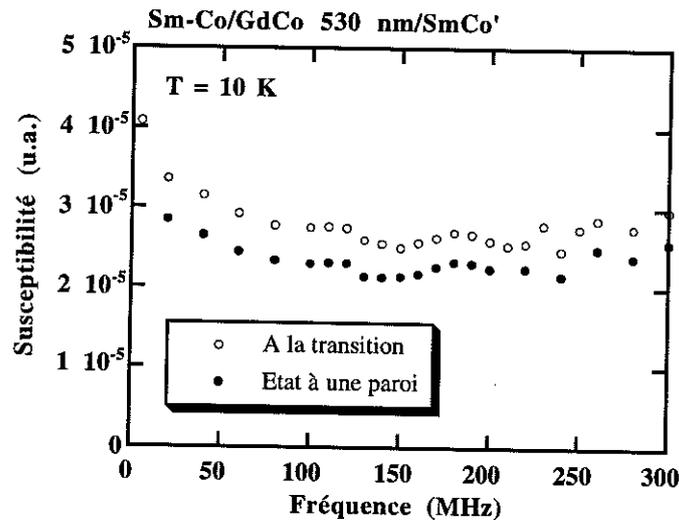


Figure V-B-5: Maximum de la susceptibilité en fonction de la fréquence à la transition et dans l'état à une paroi

deux états. La figure V-B-5 montre cette variation pour l'échantillon avec du gadolinium-cobalt. Cette susceptibilité reste à peu près constante dans toute la gamme de fréquence jusqu'à 300 MHz et aucune résonance propre n'a été mise en évidence.

Un moment magnétique  $\vec{M}$  placé dans un champ magnétique a un mouvement de précession autour de la direction du champ magnétique appliqué  $\vec{B}_0$ , qui est déterminé par l'équation du mouvement

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = \gamma(\vec{M} \wedge \vec{B}_0) \quad (\text{V.C.1})$$

où  $\gamma=e/2m$  est le rapport gyromagnétique.

Ce mouvement peut être mis en évidence au moyen d'un champ radiofréquence, qui permet d'obtenir un phénomène de résonance lorsque la fréquence  $\omega$  de ce champ est égale à la fréquence propre du système qui est la fréquence de Larmor  $\omega_0=\gamma B_0$ .

Kittel a montré que dans un matériau ferromagnétique, cette fréquence de résonance dépend non seulement du champ appliqué  $B_0$  mais également du champ démagnétisant et donc de la forme de l'échantillon ainsi que de l'anisotropie du matériau. A partir de l'équation du mouvement ci-dessus où le champ appliqué est remplacé par le champ interne  $B$  tenant compte du champ appliqué, du champ démagnétisant et d'un champ d'anisotropie  $B_a$ , permettant de décrire l'anisotropie du système, Kittel [1948] montre que pour un ellipsoïde dont les axes principaux sont suivant  $Ox$ ,  $Oy$ ,  $Oz$  la fréquence de résonance  $\omega_0$  est donnée par

$$\omega_0^2 = \gamma^2 [B + (N_y - N_z) \mu_0 M_S] [B + (N_x - N_z) \mu_0 M_S] \quad (\text{V.C.2})$$

pour un champ  $B$  suivant  $Oz$ ,  $N_x$ ,  $N_y$ ,  $N_z$  étant les coefficients de champ démagnétisant respectivement suivant  $Ox$ ,  $Oy$ ,  $Oz$ .

Pour nos échantillons en couches minces avec  $Oz$  dans le plan et par exemple  $Oy$  perpendiculaire au plan ( $N_x=N_z=0$ ,  $N_y=1$ ) la fréquence de résonance est donnée par

$$\omega_0 = \gamma B \sqrt{1 + \mu_0 \frac{M_S}{B}} \quad (\text{V.C.3})$$

où  $B$  est un champ qui tient compte du champ appliqué et du champ d'anisotropie.

*Évaluation de la fréquence de résonance dans l'état à une paroi:*

Dans l'état à une paroi, compte tenu du couplage d'échange entre couches et des conditions imposées aux moments magnétiques aux interfaces, ce sont les interactions d'échange qui s'opposent à l'alignement de tous les moments dans la direction du champ et qui produisent une anisotropie conduisant aux processus d'aimantation décrits au chapitre III (exemple figure III-F-7). Cet état conduit à une susceptibilité  $\chi_p$  en champ faible donnée par la relation (III.F.1). Pour atteindre la saturation  $M_S$  il faudrait, compte tenu de cette susceptibilité  $\chi_p$ , un champ  $B = \mu_0 M_S / \chi_p$  jouant le rôle d'un champ d'anisotropie.

On en déduit une expression de la fréquence de résonance dans l'état à une seule paroi donnée par

$$\omega_0 = \mu_0 \gamma M_S / \sqrt{\chi_p} \quad (\text{V.C.4})$$

Une telle relation conduit à des fréquences de résonance propre de 1,4 GHz pour l'échantillon à base de Co-Zr et à une fréquence de 0,73 GHz pour l'échantillon à base de Gd-Co.

Des mesures vont être effectuées prochainement pour étendre la gamme de mesure jusqu'à 1 GHz, mais elles nécessitent la réalisation d'une nouvelle bobine de détection de self plus faible.

### **Conclusion**

Nous avons construit un dispositif expérimental permettant de mesurer la susceptibilité à haute fréquence (de 1 MHz à 1000 MHz) de nos échantillons à des températures entre 1,5 K et 300 K, dans l'état à une seule paroi et à la transition entre l'état monodomaine et l'état à deux parois. La géométrie bien définie des domaines et des parois dans nos systèmes modèles devraient permettre d'étudier dans des conditions particulièrement favorables les conditions de résonance de ces systèmes. Un modèle très simple nous a permis en effet de prévoir des conditions de résonance dans une gamme de fréquence accessible expérimentalement.





## Conclusion générale

Au cours de ce travail nous avons fabriqué plusieurs séries de tri-couches magnétiques à base d'alliages amorphes de terres rares et de cobalt, que nous avons caractérisées en détails du point de vue de leur composition chimique, de leurs structures et de leurs propriétés magnétiques. Ces systèmes tels que Y-Co/Gd-Co/Y-Co et Sm-Co/Gd-Co/Sm-Co' ont un arrangement macroscopique de type ferrimagnétique alors que les systèmes Sm-Co/X/Sm-Co' (X=Co, Co-Zr) sont ferromagnétiques en l'absence de champ appliqué. Les structures en domaines et les modèles de parois utilisés pour décrire les résultats expérimentaux ont été confirmés par des simulations numériques des processus d'aimantation utilisant essentiellement les paramètres déterminés expérimentalement.

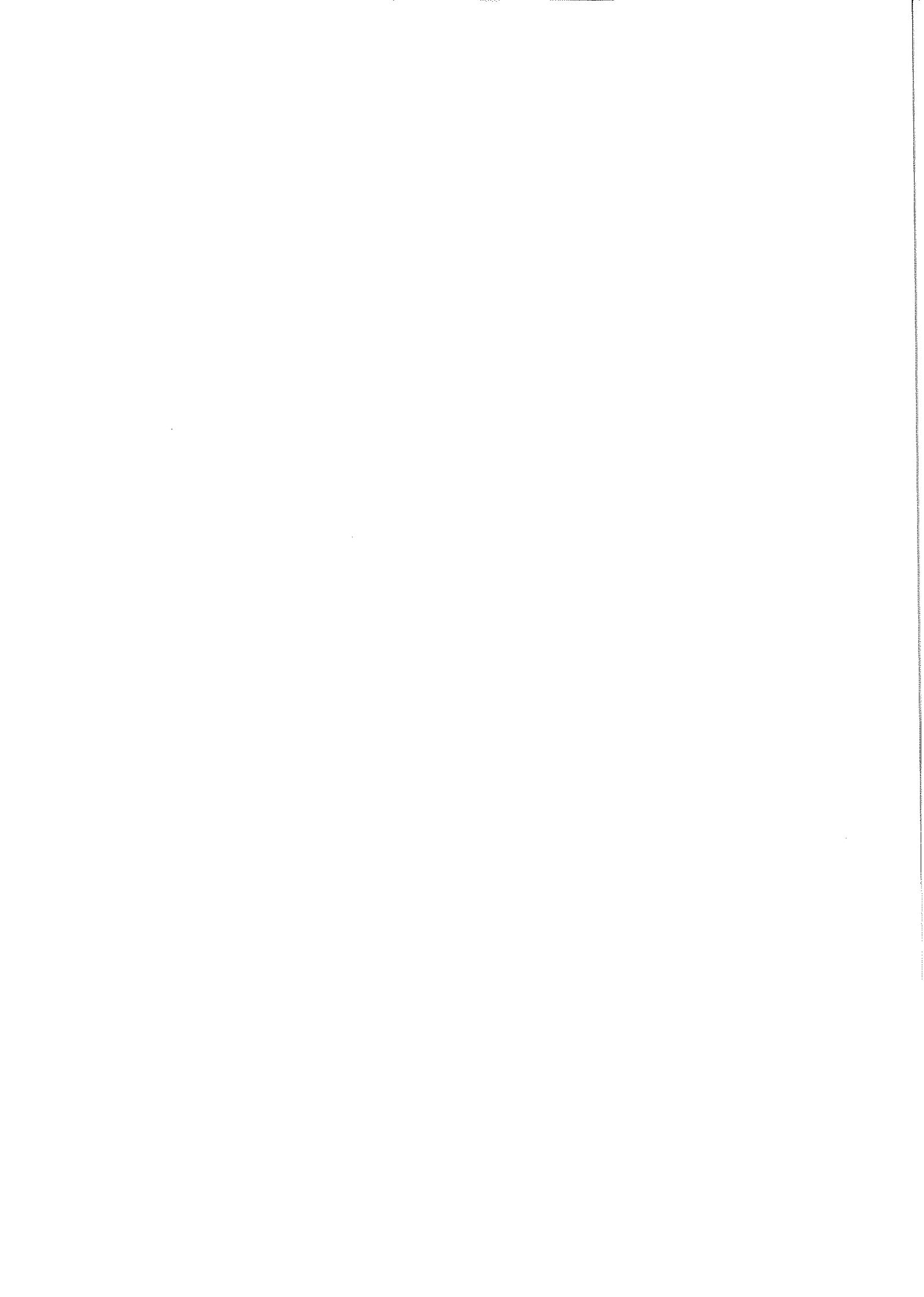
Dans ces systèmes composés de seulement trois couches associant des matériaux magnétiquement durs et des matériaux doux, il est possible de stabiliser en champ nul plusieurs états magnétiques différents caractérisés par différentes configurations de moments magnétiques. Nous avons étudié le renversement de moments magnétiques dans des couches douces et la création de parois de Bloch étendues à toute la surface de l'échantillon et dont les moments tournent dans des plans parallèles aux interfaces. Nous avons également analysé le renversement d'une couche coercitive couplée ferromagnétiquement à une couche douce adjacente. Ce renversement est dû à la propagation d'une paroi existant dans la couche douce et dépend donc essentiellement de l'anisotropie de la couche dure plutôt que de sa coercitivité intrinsèque. Dans ce système, un état avec une seule paroi de Bloch dans la couche centrale peut être stabilisé. La susceptibilité dans cet état dépend de l'épaisseur et des propriétés intrinsèques de cette couche douce en accord avec un modèle analytique que nous avons présenté.

Dans ces échantillons amorphes, un modèle à une dimension est une excellente approximation et permet une description complète des processus d'aimantation observés au moyen de simulations numériques. En particulier, le même jeu de paramètres permet de décrire l'ensemble des processus d'aimantation de tous les échantillons du système Sm-Co/Co-Zr/Sm-Co' aussi bien pour l'état à une seule paroi que pour la transition entre l'état mono-domaine et l'état à deux parois.

Ces échantillons bien caractérisés structurellement et magnétiquement se présentent comme des systèmes modèles pour lesquels les calculs de micromagnétisme s'appliquent particulièrement bien. De telles simulations numériques permettent par exemple de quantifier l'augmentation de susceptibilité dans l'état à une paroi que produirait l'augmentation d'anisotropie dans la couche douce en sandwich. Pour vérifier expérimentalement cet effet, il serait intéressant de fabriquer des matériaux dont la couche douce centrale serait constituée de  $(\text{Gd,Tb})_y\text{Co}_x$  ( $x>2$ ) ou de  $(\text{Co, Zr})\text{Tb}_y$ .

Nous avons présenté les premières mesures de susceptibilité haute fréquence réalisées sur nos systèmes. La géométrie bien définie des domaines et des parois dans ces systèmes modèles devrait permettre d'étudier dans des conditions particulièrement favorables les conditions de résonance de ces matériaux.

Ces résultats laissent entrevoir la possibilité de concevoir des matériaux aux propriétés spécifiques, conçus à partir de simulations numériques préliminaires, et réalisables par les techniques de dépôt existantes.





# ANNEXES

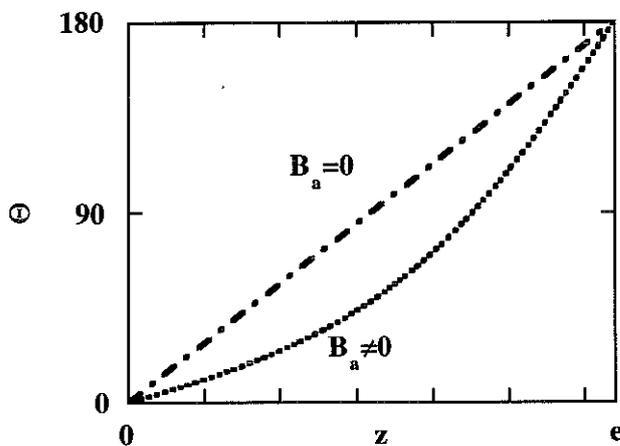
|  |     |
|--|-----|
| Annexe III: Susceptibilité d'une paroi sans anisotropie de largeur définie ..... | 179 |
| Annexe IV: Minimisation d'une fonctionnelle .....                                | 181 |
| Annexe V: Mesures haute fréquence: Détermination de la self .....                | 184 |
| Annexe VI: Tableau de conversion d'unités .....                                  | 185 |



### Annexe III:

### Susceptibilité d'une paroi sans anisotropie de largeur définie

On considère une paroi de Bloch à 180° sans anisotropie de largeur  $e$  imposée, décrite par une chaîne qui s'étend dans la direction  $z$ . Les moments des extrémités ont des orientations fixées  $\theta(0)=0$  et  $\theta(e)=\pi$ , et  $\theta(z)$  représente l'angle que fait le moment magnétique à l'abscisse  $z$  par rapport au champ magnétique appliqué dans un plan perpendiculaire à  $z$ .



Le matériau est défini par son aimantation  $M_S$  et la constante d'échange  $A$ . La position d'équilibre  $\theta(z)$  d'un moment magnétique à l'abscisse  $z$  est donnée par l'équation

$$2A \frac{d^2\theta(z)}{dz^2} - B_a M_S \sin\theta(z) = 0$$

En l'absence de champ appliqué ( $B_a=0$ ), la solution est  $\theta_0(z)$  donnée par

$$\frac{d^2\theta_0}{dz^2} = 0$$

qui a pour solution

$$\Rightarrow \theta_0(z) = \pi \frac{z}{e}$$

En présence d'un champ appliqué ( $B_a \neq 0$ ) on recherche la solution sous la forme

$$\theta(z) = \theta_0 + \varphi(z) = \pi \frac{z}{e} + \varphi(z)$$

$$2A \frac{d^2 \varphi(z)}{dz^2} = B_a M_S \sin\left(\pi \frac{z}{e} + \varphi(z)\right)$$

En négligeant  $\varphi(z)$  devant  $\pi z/e$  :

$$2A \frac{d^2 \varphi(z)}{dz^2} = B_a M_S \sin \pi \frac{z}{e}$$

qui s'intègre facilement

$$\varphi(z) = -\frac{B_a M_S e^2}{2A \pi^2} \sin \pi \frac{z}{e}$$

valable pour  $B_a$  faible. Cette configuration de moments conduit à un moment résultant dans la direction du champ donné par

$$m = \int_0^e \frac{M_S^2 S e^2 B_a}{2\pi^2 A} \sin^2 \frac{\pi}{e} z \, dz \quad (S: \text{surface de l'échantillon})$$

$$m = \frac{M_S^2 S e^2 B_a}{4\pi^2 A} e$$

et donc une susceptibilité donnée par

$$\chi_P = \frac{\mu_0 m}{B_a} = \frac{\mu_0 M_S^2 S e^2}{4\pi^2 A}$$

## Annexe IV: Minimisation d'une fonctionnelle

### A. Approximation de l'énergie du système au voisinage de l'équilibre:

Les paramètres variables du problème sont  $\{\theta_i \ / \ i \in [1, N]\}$ , les orientations moyennes des moments magnétiques et forment l'espace des paramètres ou espace des phases. Chaque point de cet espace de dimension N, appelé point représentatif, représente une configuration particulière de l'orientation des moments.

On note dans la suite de ce paragraphe,  $\bar{x}$  le vecteur de l'espace des phases repérant l'état d'équilibre  $\{\theta_i\}$  du système et  $x$  celui décrivant un état  $\{\theta_i\}$  proche de l'équilibre. Au voisinage de  $\bar{x}$ , solution de la minimisation, l'énergie du système peut être approximée par une forme quadratique:

$$E(x) = (x - \bar{x})^t \cdot \hat{A} \cdot (x - \bar{x}),$$

où  $\hat{A}$  est une matrice réelle symétrique ( $\hat{A}_{ij} = \hat{A}_{ji}$ )

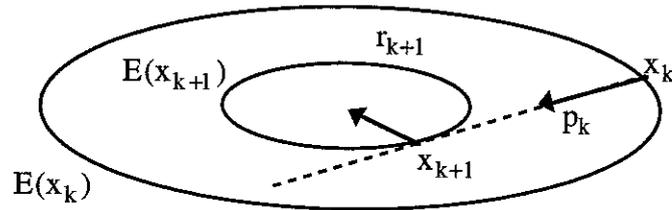
Une méthode de minimisation consiste, à partir d'un état donné  $x_k$ , à chercher un état  $x_{k+1}$  de plus basse énergie dans une direction  $p_k$  fixée. Cela revient à trouver le bon paramètre  $\alpha_k$ , tel que

$$E(x_{k+1}) = E(x_k + \alpha_k \cdot p_k) = \min_{\{\alpha\}} E(x_k + \alpha \cdot p_k)$$

On montre qu'il suffit de choisir

$$\alpha_k = \frac{(\bar{x} - x_k)^t \cdot \hat{A} \cdot p_k}{p_k^t \cdot \hat{A} \cdot p_k} = \frac{r_k^t \cdot p_k}{p_k^t \cdot \hat{A} \cdot p_k}$$

En notant  $r_k = \hat{A} \cdot (\bar{x} - x_k)$ , le résidu après la  $k^{\text{ième}}$  itération (voir figure ci-dessous)



Le processus est réitéré tant que le résidu  $r_k$  n'est pas suffisamment petit.

## B. Méthode des directions conjuguées :

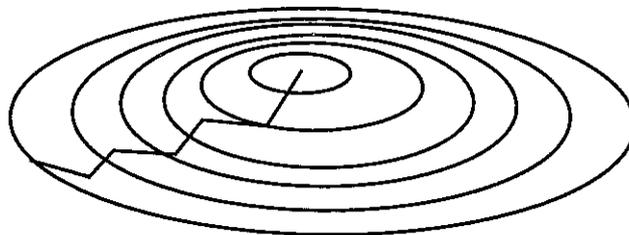
La méthode des directions conjuguées est une nouvelle stratégie de minimisation de fonctionnelle. Elle consiste à choisir la nouvelle direction de minimisation  $p_k$  comme une combinaison linéaire du résidu  $r_k$  de la direction de descente  $p_{k-1}$  de la  $k - i^{\text{ème}}$  itération :

$$p_k = r_k + \beta_k \cdot p_{k-1} \quad \text{où} \quad \beta_k = \frac{r_k^t \cdot \hat{A} \cdot p_{k-1}}{p_{k-1}^t \cdot \hat{A} \cdot p_{k-1}}$$

Cette dernière relation permet de montrer que  $p_{k-1}^t \cdot \hat{A} \cdot p_{k-1} = 0$ . On dit alors que les directions  $p_{k-1}^t$  et  $p_k$  sont conjuguées. Une démonstration plus poussée permet de simplifier l'expression de  $\beta_k$  en:

$$\beta_k = \frac{r_k^t \cdot r_k}{r_{k-1}^t \cdot r_{k-1}}$$

Une allure de la trajectoire de minimisation est représentée ci-dessous :



### C. Méthode du gradient conjugué

La méthode itérative que nous allons décrire est celle utilisée dans notre modèle de renversement d'aimantation.

Dans le modèle, l'expression de l'énergie  $E(x_k)$  est connue en tout point  $x_k$  de l'espace des phases, même loin de la position d'équilibre. Bien que nous n'ayons aucune information sur la matrice  $\hat{A}$  introduite récemment, il est aisé de montrer qu'au voisinage de l'équilibre,

$$2r_k = -\vec{V}_\theta \cdot E(x_k) = -g_k$$

où  $g_k$  désigne le gradient de l'énergie calculé, dans l'espace des paramètres, au point  $x_k$

L'expression précédente de  $\beta_k$  se transforme alors en 
$$b_k = \frac{g_k^t \cdot (g_k - g_{k-1})}{g_{k-1}^t \cdot g_{k-1}}$$

Il faut toutefois utiliser une technique purement numérique pour déterminer  $\alpha_k$ , c'est à dire pour définir à chaque itération le point  $x_{k+1}$ , de plus basse énergie, placé sur l'axe d'origine  $x_k$  et de vecteur directeur  $p_k$ .

Polak et Ribière (1971) ont montré que, dans le cas général où l'énergie n'est pas une forme quadratique, la méthode reste efficace si on transforme la définition de  $\beta_k$  en

$$\beta_k = \frac{g_k^t \cdot g_k}{g_{k-1}^t \cdot g_{k-1}}$$

Nous obtenons finalement l'algorithme de minimisation par la méthode du gradient conjugué suivant :

- On place le système dans un état  $x_0$ . La direction de descente  $p_0$  est choisie arbitrairement égale à  $p_0 = g_0 = \vec{V}_\theta \cdot E(x_0)$

- Pour toute itération  $k \geq 0$ ; on détermine  $x_{k+1} = x_k + \alpha_k \cdot p_k$  tel que  $E(x_{k+1})$  soit minimal.

- On détermine ensuite  $\beta_{k+1} = \frac{g_{k+1}^t \cdot (g_{k+1} - g_k)}{g_k^t \cdot g_k}$  puis on définit la nouvelle direction de descente  $p_{k+1} = g_{k+1} + \beta_{k+1} \cdot p_k$ .

Le processus est réitéré tant que  $g_{k+1}$  n'est pas suffisamment petit.

## Annexe V:

### Mesures haute fréquence: Détermination de la self de la bobine de mesure

Le circuit de mesure, comprend le générateur analyseur d'impédance HP 4191A, un câble coaxial de longueur  $l$  d'impédance caractéristique  $Z_c$  et la bobine de mesure d'impédance complexe  $Z_2 = R_2 + i L_2 \omega$ . L'analyseur d'impédance mesure à ses bornes l'impédance complexe  $Z_1 = R_1 + i X_1$  qui permet de calculer l'impédance  $Z_2$ . A partir des équations de propagation d'une onde de tension sinusoïdale le long d'une ligne électrique parfaite d'impédance caractéristique  $Z_c$ , il est facile de montrer que

$$Z_1 = Z_c \frac{Z_2 + i Z_c \operatorname{tg}(kl)}{Z_c + i Z_2 \operatorname{tg}(kl)} \quad \text{avec } kl = \omega l / c$$

d'où on tire en posant  $T = \operatorname{tg}(kl)$  :

$$R_2 = \frac{(R_1 (Z_c + T X_1) - (X_1 - Z_c T) T R_1)}{(Z_c + T X_1)^2 + (T R_1)^2}$$

$$X_2 = L_2 \omega = \frac{(Z_c + T X_1) (X_1 - Z_c T) + T R_1^2}{(Z_c + T X_1)^2 + (T R_1)^2}$$

## Annexe VI: Tableau de conversion d'unités

|                              | SI  | cgs   |                        |
|------------------------------|---|---|------------------------|
| Pression<br>P                | 1 Pa  |   | 7,5 mTorr<br>0,01 mbar |
| Induction magnétique<br>B    | $10^{-4}$ T                                       | 1 G   |                        |
| Champ magnétique<br>H        | $\frac{10^3}{4\pi} \frac{\text{A}}{\text{m}}$     | 1 Oe  |                        |
| Aimantation<br>M             | $10^3 \frac{\text{A}}{\text{m}}$                  | $1 \frac{\text{emu}}{\text{cm}^3}$                  |                        |
| Moment magnétique<br>m       | $10^{-3} \text{Am}^2$                             | 1 emu   |                        |
| Susceptibilité<br>$\chi$     | $4\pi$  | $1 \frac{\text{erg}}{\text{Oe cm}^3}$               |                        |
| Constante d'échange<br>A     | $10^{-5} \frac{\text{J}}{\text{m}}$               | $1 \frac{\text{erg}}{\text{cm}}$                    |                        |
| Constante d'anisotropie<br>K | $0,1 \frac{\text{J}}{\text{m}^3}$                 | $1 \frac{\text{erg}}{\text{cm}^3}$                  |                        |
| Énergie de paroi<br>$\gamma$ | $10^{-3} \frac{\text{J}}{\text{m}^2}$             | $1 \frac{\text{erg}}{\text{cm}^2}$                  |                        |
| magnéton de Bohr<br>$\mu_B$  | $9,274 \times 10^{-24} \frac{\text{J}}{\text{T}}$ | $9,274 \times 10^{-21} \frac{\text{erg}}{\text{G}}$ |                        |
| $\mu_0$                      | $4\pi \times 10^{-7} \text{Tm/A}$                 | 1   |                        |



## Références

- Application Couches Minces (ACM)  
"Les dépôts par pulvérisation cathodique"  
Villiers St Frédéric, 1982
- Agius B., M.Froment M. et co-auteurs  
"surfaces, interfaces et films minces"  
Dunod, Bordas Paris 1990
- Alameda J.M., L.T. Baczewski, Dieny B., Givord D.,J.M. Ndjaka, Nozières J.P.,  
Préjean J.J., Rebouillat J.P., Salas F.  
*J. Magn. Mater.* **104-107** (1992) p.1813-1816
- Bessot J.J.  
"Dépôts par pulvérisation cathodique"  
Alcatel, 1981
- Bunshah Rointan F. et al  
"Deposition Technologies for Films and Coatings"  
Noyes Publications, Park Ridge, New Jersey (1982)
- Buschow K.H.J.  
*Rep. Prog. Phys.* **42** (1979) p. 1973
- Campbell I.A.  
*J.Phys.F :Metal. Phys.* **2** (1972) p.L47-L50
- Cargill G.S.  
*AIP Conf.Proc.* **18** (1974) p.631
- Chamberod, Hillairet  
"Metallic Multilayers"  
MSF vol 59,60 (1990)
- Chaudhari P., Cuomo J.J., Gambino R.J.  
*Appl. Phys. Lett.* **22** (1973) 15,p. 337-340
- Chen K., Hedge H., and Cadieu F.J.  
*Appl. Phys. Lett.* **61** (1992) p.1861-1863
- Chen K., Hedge H. and Cadieu F.J.  
*J. Appl. Phys.* **73** (1993) p.5923-5925
- Cheung T.D., Wickramasekara L. and Cadieue F.J.  
*J. Appl. Phys.* **57** (1985) 1, p. 3598-3600
- Chikazumi S.  
*Physics of Magnetism*  
Wiley, New York 1964

Chu, Mayer, Nicolet  
"Backscattering Spectrometry"  
Academic Press 1978

Coey J.M.D.  
*J. Appl. Phys.* **49** (1978) 3, p. 1646-1652

Cugat Orphée (Thèse de doctorat)  
"Réalisation d'un magnétomètre à effet Kerr- Propriétés magnéto-optiques de couches minces d'alliages amorphes terres rares-métaux de transition"  
Université Joseph Fourier-Grenoble I (1991)

Cyrot M. and Lavagna M.  
*J. Appl. Phys.* **50** (1979) 3, p.2333-2335

Czanderna A.W.  
"Methods of Surface Analysis"  
Elsevier, Amsterdam (1975)

Dieny B., Givord D., J.M. Ndjaka, Alameda J.M.  
*J. Appl. Phys.* **67** (1990) , p.5677-5679

Dieny B., Givord D., J.M. Ndjaka  
*J. Magn. Magn. Mater.* **93** (1991) p.503-508

J.L.Erskine and E.A.Stern  
*Physical Review Letters* **30** (1973) 26, p.1329-1332

J.L.Erskine and E.A.Stern  
*Physical Review B* **8** (1973) 3, p.1239-1254

Falicov L.M., Pierce D.T., Bader S.D., Gronsky R., Hathaway K.B., Hopster H.J., Lambeth D.N., Parkin S.S.P., Prinz G., Salamon M., Schuller I.K. et Victoria R.H.  
*J.Mater.Res.* **5** (1990) 6, p.1299-1340

Fan Q.  
*J. Magn. Magn. Mater.* **116** (1992) p.273-276

Fermon C., Miramond C.  
*Colloque Louis Néel "Couches Minces et Multicouches Magnétiques"*  
Fouesnant-Cap Coz, 20-22 avril 1994

Gignoux D., Lemaire R., Molho P.  
*J. Appl. Phys.* **52** (1981) 3, p.2087-2089

Givord D., D.Santos A., Souche Y., Voiron J., Wüchner S.  
*J. Magn. Magn. Mater.* **121** (1993) p.216

Givord D., Liénard A. and Rebouillat J.P.  
*Physica B* **130** (1985) p. 351-354

Givord D., Liénard A., Rebouillat J.P., Sadoc J.F.  
*J. de Phys. colloque 5, supplément 5* (1979)40, p. c5-237

Givord D., Liénard A., Rebouillat J.P., Sadoc J.F.  
*J.Phys.Coll.C5, Suppl. n°5, t40,C 5-237* (1979)

Harris R., Plischke M. et Zuckermann M.J.  
*Phys. Rev. Lett.* **31** ( 1977) 7, p. 160-162

Hecht E.  
*"Optics"*  
Addison-Wesley, 1987

Heiman N. and Kazama N.  
*Phys. Rev. B* **17** ( 1978) p. 221

Kirchmayr H.R., Poldy C.A.  
*J. Magn. Magn. Mater.* **8** (1978) p.1-42

Kirchner R., Döring W.  
*J. Appl. Phys.* **39** (1968) p.855

Kittel C.  
*Phys.Rev.* **73** (1948) p.155

Kittel C.  
*"Introduction to Solid State Physics"*  
Wiley 1986

Krishnan M., Tarhouni M., Tessler M. and Gangulee A.  
*Phys. Rev. B* **19** ( 1982) 13, p. 2243

Kopitzki K.  
*"Einführung in die Festkörperphysik"*  
Teubner, Stuttgart (1993)

Landau L., Lifshitz E.  
*Phys.Z.Sowj.* **8** ( 1935) p.153-169.

Lee K., Heiman N.  
3M San Francisco

Liénard A. (Thèse de doctorat)  
*"Contribution à l'étude du magnétisme d dans les alliages amorphes terre rare-métal de transition"*  
Université Scientifique et Médicale et Institut National Polytechnique de Grenoble (1981)

Mâaza M.  
*J. Magn. Magn. Mater.* **121** (1993) p.112-115

Martin P. (Thèse de doctorat)  
*"Etude de l'autodiffusion du zinc et de la diffusion de l'or et du lithium dans le tellurure de zinc"*  
Université Scientifique et Médicale de Grenoble (1979)

Martinez J.C. (Thèse de doctorat)  
*"Anisotropie des propriétés supraconductrices du composé  $Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$ "*  
Université Joseph Fourier de Grenoble (1991)

Marty A.  
*"Croissance et structure des couches minces"*  
Séminaire D. Dautreppe (Société Française de Physique)

Col de Porte (1994)

Mc Grath O.F.K. (Thèse de doctorat)

*"Structural and magnetic properties of epitaxial W/Fe/W and Gd/Fe films grown by pulsed laser deposition"*

Université Joseph Fourier de Grenoble (1994)

Moorjani K. et Coey J.M.D.

*"Magnetic glasses, Methods and Phenomena 6"*

Elsevier, Amsterdam (1984)

Naili M. (Thèse de doctorat)

*"Elaboration et étude des propriétés magnétiques et structurales des couches minces amorphes du type  $Co_{1-x-y}Zr_xM_y$  avec  $M=Zr, Nb, Ti, Pt$ "*

Université Pierre et Marie Curie Paris IV (1990)

Nakagawa S., Hasegawa K., Naoe M.

*J. Magn. Magn. Mater.* **104-107** (1992) p.1899-1900

Naoe M., Matsushita N. and Nakagawa S.

*J. Magn. Magn. Mater.* **134** (1994) p.395-402

Naoe M., Yamanaka S., Hoshi Y.

*IEEE Trans.on magn.* **16** (1980) 5, p.646-648

Ndjaka J.M. (Thèse de doctorat)

*"Propriétés magnétiques et magnéto-optiques de couches minces et multicouches d'alliages amorphes terre rare - cobalt"*

Université Joseph Fourier-Grenoble I (1990)

Néel L.

*Compt. Rend.* **241** (1955) p.533

Néel L.

*Comptes Rendus Acad. Sc.* **246** (1958) p 2313.

Nimura Y., Nakagawa S. and Naoe M.

*IEEE Trans.on magn.* **22** (1986) 5, p.1164-1166

Ouahmane H. (Thèse de doctorat)

*"Elaboration et étude des propriétés magnétiques des couches minces amorphes de type  $a-(CoZr)_{100-x}TR_x$  à faible teneur en terre rare ( $0 \leq x \leq 4$ )"*

Conservatoire National des Arts et Métiers (1988)

Oxford Instruments

*"Operator's Handbook"*

Eynsham, 1993

Penfold J., Thomas R.K.

*J. Phys.:Condens.Matter* **2** (1990) p.1369-1412

Sadoc J.F., Dixmier J. et Guinier A.

*J. Non Cryst. Solids* **12** (1973) p.46

Stuart R.V. and Wehner G.K.

*J. Appl. Phys.* **35** (1964) 6, p.1819-1824

## Résumé

Nous avons préparé par pulvérisation cathodique des couches minces amorphes à base d'alliages de terres rares (Gd, Tb, Sm), d'yttrium ou de zirconium et de cobalt. Ces matériaux ont été caractérisés en détails du point de vue de leurs propriétés structurales, chimique (rétrodiffusion de particules chargées, spectrométrie de masses d'ions secondaires, rayons X, microscopie électronique), magnétique (magnétomètre, neutrons), et magnéto-optique (effets Kerr).

Avec ces matériaux de base, nous avons préparé des tri-couches aux interfaces très propres permettant d'étudier le couplage magnétique entre couches. Les systèmes sandwich fabriqués sont typiquement Y-Co/Gd-Co/Y-Co et Sm-Co/X/Sm-Co' (X=Gd-Co, Co-Zr, Tb-Co). Les trois couches constitutives sont couplées magnétiquement par les interactions d'échange entre moments de cobalt à travers tout l'échantillon. Ce couplage associé aux propriétés spécifiques de l'alliage considéré (moment magnétique, anisotropie, coercitivité) conduisent à des configurations ferrimagnétiques ou ferromagnétiques de l'aimantation des couches voisines et donnent lieu à des processus d'aimantation originaux.

Pour des systèmes constitués de couches externes dures de coercitivités différentes et d'une couche centrale douce (Sm-Co/X/Sm-Co', X=Gd-Co, Co-Zr), l'influence de l'épaisseur et de la nature du matériau de la couche centrale sur le couplage et les processus d'aimantation ont été étudiés quantitativement. Un état avec une seule paroi de Bloch étendue dans la couche centrale est stabilisé. Pour caractériser cette paroi nous avons effectué des mesures d'aimantation, de réflectométrie de neutrons polarisés et des mesures de susceptibilité à haute fréquence.

Des simulations numériques à l'aide d'un programme développé au cours de ce travail pour décrire les processus d'aimantation dans les systèmes sandwich rendent particulièrement bien compte des courbes d'aimantation expérimentales de ces systèmes modèles.

---

### Mots Clés :

Alliages amorphes terre rare - cobalt

Couches minces

Systèmes sandwich

Couplage d'échange entre couches

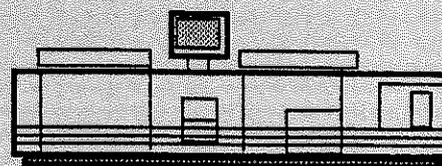
Energie de paroi

Simulation numérique

Processus d'aimantation



Grenoble, septembre 1995



Impression et finition réalisées sur Rank Xerox 5090,  
au Service Reprographie du CNRS.



- Takahashi T. and Naoe M.  
*IEEE Trans.on magn.* **25** (1989) 5, p.4174-4176
- Takahashi T., Ikeda N. and Naoe M.  
*IEEE Trans.on magn.* **26** (1990) 5, p.1611-1613
- Tao L.J., Kirkpatrick, Gambino R.J. and Cuomo J.J.  
*Sol. Stat. Com.* **13** (1973) p. 1491-1494
- Thornton J.A.  
"Coating Deposition by Sputtering"  
"Deposition Technologies for Films and Coatings"  
Noyes Publications, Park Ridge, New Jersey (1982)
- Tokunaga T., Taguchi M., Fukami T., Nakaki Y., Tsutsumi K.  
*J. Appl. Phys.* **67** (1990) 9, p.4417-4419
- Werner H.W., Fiermans L., Vennik J., Dekeyser W.  
"Electron and Ion Spectroscopy of Solids"  
Plenum Press, New York (1978)
- Winters H.F. and Kay E.  
*J. Appl. Phys.* **38** (1967) 10, p.3928-3934
- Yamagata T., Ito S.  
*J. Magn. Magn. Mater.* **31-34** (1983) p.1475-1476
- Weiss P.  
*J. Phys.* **6** (1907), p.661

