

THESE

Présentée par

Massimo Ghidini

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)

*pour toutes
nos belles
discussions!
(Sur le pape, aussi)
Mmmmm*

ETUDE DE SYSTEMES MAGNETIQUES NANOSTRUCTURES PREPARES PAR IRRADIATION D'IONS LOURDS DE HAUTE ENERGIE

Soutenue le : 28 Novembre 1995

Composition du jury:

President et Rapporteur
Rapporteur

J. Grilhé
J.F. Gregg

Examineurs

G. Asti
B. Castaing
B. Gervais
D. Givord
J.P. Nozières

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

REMERCIEMENTS

Cette thèse a été préparée au Laboratoire L. Néel (C.N.R.S.- Grenoble).

Je veux remercier chaleureusement Dominique Givord et Jean-Pierre Nozières pour m'avoir donné l'opportunité de travailler sur ce sujet original, pour leur aide et leur amitié ainsi que pour la liberté de mouvement et d'initiative qu'ils m'ont laissé.

Je remercie l'ensemble du groupe Couches Minces du Laboratoire L. Néel. En particulier, je remercie Annick Liénard pour l'aide dans les mesures de diffraction de rayons X sous incidence rasante et dans la caractérisation des échantillons par MEB.

Je remercie Yoschichika Otani pour son encouragement au début de cette thèse.

Merci à Ken McKay et à Rafik Ballou pour leurs conseils et leur ouverture d'esprit.

Je tiens aussi à remercier:

- les membres du jury pour avoir accepté de juger ce travail ;
- l'ensemble du personnel technique et les secrétaires du Laboratoire L. Néel pour leur disponibilité, leur efficacité et leur bonne humeur. Un mot spécial pour M. Bouvier, S. Biston, Ph. David, E. Bourgeat-Lami, J.F. Guillaud et D. Dufeu : merci ;
- les chercheurs et les techniciens du C.I.R.I.L. (CEA-CNRS Caen) pour l'accueil toujours chaleureux et amical ainsi que pour l'incalculable assistance pendant les expériences d'irradiation au GANIL. En particulier, je tiens à remercier B. Gervais, M. Toulemonde et E. Doorhyè pour toutes les fructueuses discussions que nous avons eues;
- C. Jaouen, C. Fermon, P. Veillet, C. Meyer et P. Auric pour leur disponibilité ;
- Denis Courtois, Florence Robaut, Oran Mc Grath, Luiz Sampaio, Sybille Wüchner et Olivier Fruchart avec qui c'était enrichissant de discuter et de travailler ;
- Orphée Cugat et Aline Jaeger pour leur aide amical à m'exprimer clairement et correctement en français.

TABLE DES MATIERES

Introduction		1
Chapitre 1	Techniques Expérimentales	3
Chapitre 2	Traces latentes dans les alliages intermétalliques	18
Chapitre 3	Nanocolonnes magnétiques dans le système Y-Co irradié	70
Chapitre 4	Systèmes magnétiques heterogènes obtenus par irradiation d'ions lourds	90
Conclusion		104

INTRODUCTION

Le but de ce travail de thèse a été d'explorer une voie originale d'élaboration de systèmes magnétiques nanostructurés.

L'approche que nous avons développée consiste à bombarder d'ions lourds rapides une cible cristalline. Dans certains cas, un ion lourd rapide traversant un matériau cristallin laisse sur son passage une nanocolonne amorphe, appelée trace latente. En irradiant la cible à l'aide d'un faisceau d'ions, nous obtenons une distribution de traces latentes dispersées dans la matrice cristalline résiduelle. Le diamètre de ces traces latentes est en général compris entre 2 et 7 nm, selon l'énergie de l'ion incident et le type de cible [1] ; la densité de traces dépend de la fluence de l'irradiation. Ce phénomène ouvre deux voies d'exploration.

Premièrement, les dimensions des traces latentes correspondent à l'ordre de grandeur de la longueur caractéristique de l'interaction d'échange dans les matériaux magnétiques. En irradiant des composés intermétalliques dont les propriétés magnétiques dépendent de l'état structural (amorphe ou cristallin), on peut associer à chaque trace un objet magnétique. Cette approche est très séduisante dans la mesure où des effets de taille originaux devraient être observés, puisque les dimensions mises en jeu sont au moins un ordre de grandeur inférieures à celles actuellement obtenues par les techniques de lithographie.

Pour préparer des réseaux de nanocolonnes ferromagnétiques amorphes dispersées dans une matrice cristalline non magnétique nous avons irradié les composés suivants :

YCo_2 et CeCo_2 (paramagnétiques de Pauli à l'état cristallin, ferromagnétiques à l'état amorphe), TmCo_2 (ferrimagnétique dans les deux cas, mais avec une température d'ordre de 4 K à l'état cristallin, alors qu'elle est au dessus de l'ambiante à l'état amorphe) et enfin CeCo_3 , ferromagnétique dans les deux cas, avec des températures d'ordre de 78 K (cristallin) et au dessus de l'ambiante (amorphe).

D'autre part, le mélange d'une phase dure et d'une phase douce à l'échelle nanométrique pourrait conduire à un comportement magnétiquement homogène du matériau. Dans le cas où l'aimantation à saturation du composé amorphe est supérieure à celle du même composé à l'état cristallin, le couplage par l'échange de deux phases conduit à l'effet dit de "spring magnet", dans lequel on associe la forte aimantation d'un composé avec la coercivité élevée d'un autre [2].

Pour la réalisation de systèmes magnétiquement homogènes combinant un matériau dur et un matériau doux, nous avons utilisé le composé CeCo_3 (décrit plus haut) au-dessous de la température d'ordre de la matrice cristalline, ainsi que le composé YCo_3 , de même ferromagnétique à l'état cristallin et à l'état amorphe, avec des températures d'ordre de 300 K (cristallin) et de 550 K environ (amorphe). Pour les deux composés, l'aimantation à saturation à l'état amorphe est supérieure à celle de l'état cristallin.

Deuxièmement, les dimensions des traces latentes correspondent aussi à l'ordre de grandeur de l'épaisseur des parois de Bloch dans les matériaux magnétiques durs. Dans ce cas, les traces latentes représentent des défauts d'anisotropie réduite de taille nanométrique, et peuvent donc en principe interagir avec les parois à travers le mécanisme du piégeage.

Pour créer des défauts d'anisotropie réduite et étudier le mécanisme du piégeage de parois de Bloch en fonction de la densité de défauts, nous avons irradié deux matériaux magnétiques durs à l'état massif, SmCo_5 et $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$.

Le CHAPITRE 1 présente les techniques expérimentales utilisées pendant ce travail.

Dans le CHAPITRE 2, nous caractérisons l'endommagement induit par irradiation au moyen des mesures magnétiques et de mesures de diffraction des rayons X sur YCo_2 , CeCo_2 , TmCo_2 , CeCo_3 et YCo_3 (diffraction X uniquement dans ce dernier cas). Les résultats expérimentaux sont interprétés par un modèle phénoménologique qui permet d'estimer le diamètre des traces.

Le comportement sous irradiation de différents systèmes est analysé dans le cadre d'un modèle microscopique (modèle de la pointe thermique). Ce modèle avait déjà été appliqué avec succès pour interpréter le comportement sous irradiation des métaux de transition [3], et nous l'avons développé et adapté aux alliages intermétalliques.

Le CHAPITRE 3 analyse en détail les propriétés magnétiques de nanocolonnes magnétiques dans le système YCo_2 irradié. Des effets de taille finie sont mis en évidence, en particulier l'existence de valeurs inhabituellement élevées du rapport H_C/H_A . Un mécanisme original de renversement de l'aimantation lié aux dimensions réduites de nanocolonnes est proposé.

Dans le CHAPITRE 4 nous présentons une synthèse de résultats préliminaires concernant les propriétés magnétiques de systèmes dans lesquels la coexistence de deux phases ferromagnétiques de propriétés différentes a été induite par l'irradiation.

Nous mettons en évidence le comportement magnétiquement homogène du système CeCo_3 ainsi qu'un fort piégeage de parois de Bloch dans le composé $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ irradié.

Références

1. E. Balanzat, *Rad. Eff. Def. Solids*, **126**, 97 (1993).
2. H. Davies, *Physics World*, **November**, 40 (1994).
3. Z. G. Wang, C. Dufour, E. Paumier, M. Toulemonde, *J.Phys.: Condens. Matter*, **6**, 6733-6750 (1994).

CHAPITRE 1

TECHNIQUES EXPERIMENTALES

1.1 Préparation des échantillons

1.1.1 Préparation de couches minces polycristallines	4
1.1.1.1 Préparation des cibles	4
1.1.1.2 Dépôt de couches minces par pulvérisation cathodique	5
1.1.1.3 Traitement thermique ex-situ	6
1.1.2 Irradiation aux ions lourds de haute énergie	7
1.1.2.1 Principe de base des accélérateurs d'ions lourds	8
1.1.2.2 Description du système accélérateur du GANIL	9

1.2 Caractérisation Structurale

1.2.1 Rétrodiffusion de particules chargées	11
1.2.2 Profilométrie	12
1.2.3 Microscopie électronique en balayage	13
1.2.4 Diffraction de rayons X	14

1.3 Caractérisation Magnétique

1.3.1 Magnétomètre à SQUID	15
1.3.2 Magnétomètre à échantillon vibrant	16
1.3.3 Magnétomètre à échantillon vibrant 2 Tesla de très haute sensibilité	16

CHAPITRE 1

TECHNIQUES EXPERIMENTALES

1.1 Préparation des échantillons

La préparation des échantillons s'est déroulée en deux étapes. D'abord, des couches minces polycristallines d'alliages terre-rare cobalt ont été élaborées au Laboratoire Louis Néel par pulvérisation cathodique et traitement thermique ex-situ. Ensuite ces couches ont été irradiées au Grand Accélérateur National d'Ions Lourds (GANIL) à Caen avec des ions d'uranium et de plomb accélérés à des énergies comprises entre 1 et 5 GeV.

1.1.1 Préparation de couches minces polycristallines

1.1.1.1 Préparation des cibles

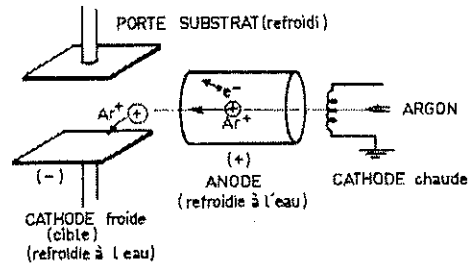
Les cibles utilisées dans l'appareil de pulvérisation cathodique sont coulées dans un four à induction dit à "creuset froid". Les constituants de la cible sont introduits dans un creuset cylindrique en cuivre, divisé en secteurs refroidis à l'eau. Le creuset cylindrique est placé dans une enceinte en Pyrex, sous atmosphère d'argon, de telle sorte que les constituants de la cible soient au centre de l'inducteur entourant l'enceinte. L'inducteur est un enroulement de 4 spires tubulaires en cuivre. Une circulation d'eau à l'intérieur du tube assure son refroidissement. Un générateur autocontrôlé fournit le courant alternatif haute fréquence. L'inducteur crée alors un champ magnétique alternatif. Des courants induits sont générés dans les constituants de la cible pour annuler les variations du flux du champ inducteur. Par effet Joule, les constituants de la cible s'échauffent jusqu'à leur température de fusion. Le fond du creuset a une forme légèrement hémisphérique qui donne lieu à un gradient de champ électromagnétique produisant une force ascensionnelle opposée à la pesanteur. Cet effet de lévitation minimise le contact avec le creuset et élimine pratiquement les risques de contamination par le creuset que le caractère électropositif des terres rares peut favoriser.

Les forces électromagnétiques créées par la présence simultanée des courants induits et du champ inducteur ont la particularité d'être toujours dirigées vers l'intérieur du matériau en fusion. Elles induisent un brassage des constituants et assurent une bonne homogénéité de l'alliage. Lorsque l'alliage apparaît homogène, on coupe le générateur de radiofréquence, on ouvre le fond du creuset à l'aide d'un doigt escamotable, et l'alliage en fusion tombe sur une sole refroidie. Celle-ci a la forme et les dimensions de la cible à préparer, elle est constituée par un anneau cylindrique reposant sur un disque épais. Selon la vitesse de refroidissement désirée, l'anneau et le disque sont en cuivre ou en acier inoxydable.

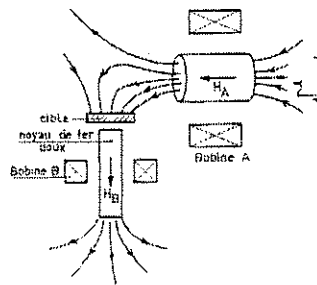
1.1.1.2 Dépôt de couches minces amorphes par pulvérisation cathodique

La méthode de pulvérisation cathodique est une technique de dépôt qui consiste à bombarder une cible avec des ions d'un gaz inerte (en général argon) issus de la création d'un plasma. Des atomes sont éjectés de la cible par transfert de moment cinétique et se condensent sur un substrat froid.

Les techniques de pulvérisation varient selon la méthode utilisée pour ioniser le gaz et créer le plasma. Dans le procédé triode continu utilisé au Laboratoire Louis Néel [1] (Fig.1.1a), le plasma est créé indépendamment de la cible et du substrat.



(a)



(b)

Figure 1.1: a) Schéma d'un appareillage de pulvérisation cathodique du type triode continu. b) Principe de concentration du plasma dans le dispositif utilisé au Laboratoire Louis Néel [1].

L'enceinte de pulvérisation est d'abord pompée jusqu'à 10^{-7} torr. Elle est ensuite maintenue sous flux d'argon à une pression de 1 mtorr. Les électrons ionisants sont émis par un filament de tungstène porté à une température d'environ 2500°C par effet Joule. Ces électrons sont ensuite accélérés par le champ électrique généré par une anode cylindrique maintenue à une tension de 30 V environ. La probabilité de collision avec les atomes d'argon, et donc leur effet ionisant, est augmenté par une bobine extérieure, qui fait spiraler la trajectoire des électrons autour des lignes de champ magnétique. Le plasma ainsi créé diverge à la sortie de l'anode. Pour le concentrer sur la cible, on canalise les lignes de champ magnétique à l'aide d'une bobine à noyau de fer doux (Fig.1.1b).

La pulvérisation est alors obtenue en accélérant les ions Ar^+ en portant la cible à un

potentiel négatif de -1500 V. Les atomes éjectés se condensent sur un substrat placé en regard.

Cibles et substrats sont fixés sur deux carrousels tournants pilotés manuellement.

La température du substrat peut être 300 K ou 77 K (en remplissant d'azote liquide le porte substrat). Le taux de pulvérisation peut être modifié en agissant sur la tension de l'anode. Un cristal de quartz permet de contrôler en temps réel l'épaisseur de la couche déposée.

1.1.1.3 Traitement thermique ex-situ

Les couches minces que nous avons préparées dans cette étude, obtenues par pulvérisation cathodique, sont amorphes. Des recuits d'une heure à des températures de 500°- 600° C ont permis d'obtenir la cristallisation des phases désirées. Les recuits sont effectués sous vide secondaire dans un four résistif avec une cinétique de montée de 100 °/heure.

1.1.2 Irradiation des couches par des ions lourds de haute énergie

Toutes les expériences d'irradiation aux ions lourds ont été réalisées au GANIL, (CEA/CNRS) à Caen. Au GANIL une large gamme d'ions (du carbone à l'uranium) est accélérée à des énergies comprises entre 1 GeV et 5 GeV.

Les expériences menées au GANIL concernent essentiellement la physique nucléaire, mais aussi pour 10 à 15 % du temps la physique de l'atome et la physique de la matière condensée. Ces disciplines bénéficient de l'appui d'un laboratoire local, le CIRIL (Centre Interdisciplinaire de Recherches avec les Ions Lourds) implanté sur le site. Une collaboration a été établie entre le Laboratoire Louis Néel et le CIRIL, notamment avec B. Gervais, M. Toulemonde et E. Doorhyée.

Nous décrivons brièvement les principes de la génération et de l'accélération des ions lourds. Ensuite, nous décrivons l'accélérateur GANIL.

1.1.2.1 Principe de base des accélérateurs d'ions lourds

Tous les accélérateurs d'ions lourds sont constitués de trois parties: une source pour la production des ions, une optique adaptée pour la focalisation du faisceau et un système d'accélération.

La figure 1.2a montre le principe d'une source de haute intensité pour la production d'ions lourds très chargés d'éléments gazeux ou solides, dont le principe de fonctionnement est similaire au procédé de pulvérisation cathodique décrit précédemment. Les électrons émis par le cathode sont accélérés et injectés dans une atmosphère de gaz inerte. Un champ magnétique axial spiralise les trajectoires des électrons et augmente leur pouvoir ionisant. Pour produire des ions d'éléments solides, une cible est placée dans l'enceinte en contact avec le plasma du gaz. Par pulvérisation cathodique, des atomes du matériau de la cible sont introduits dans le plasma, ionisés et extraits avec les ions du gaz. Les ions pulvérisés sont enfin séparés des ions du gaz à l'aide d'un séparateur magnétique de masse.

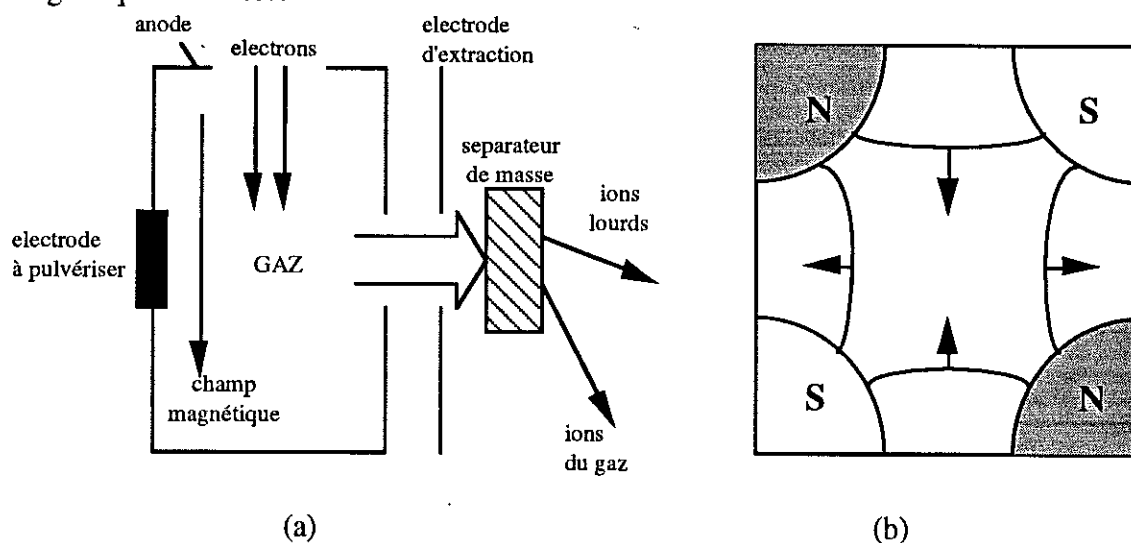


Figure 1.2: (a) Schéma de principe d'une source d'ions. (b) Vue en coupe transverse d'un quadrupole magnétique. Les flèches indiquent la direction de la force de Lorentz agissant sur un ion positif dont la direction de propagation est perpendiculaire au plan du dessin.

Les faisceaux sont normalement focalisés à l'aide de lentilles magnétiques quadripolaires [2]. La Figure (1.2b) montre une vue en coupe transverse d'un quadrupole magnétique constitué de quatre pôles de section hyperbolique. Le champ magnétique résultant est nul le long de l'axe perpendiculaire au plan du dessin. Pour les points hors axe, dans le cas d'un faisceau d'ions positifs dont la direction de propagation est perpendiculaire au plan du dessin, la force de Lorentz tend à focaliser le faisceau verticalement et à le défocaliser horizontalement, comme indiqué par les flèches. L'action combinée de deux quadrupoles tournés de 90° par rapport à la direction de propagation du faisceau permet de focaliser le faisceau à la fois dans le plan vertical et horizontal [3].

Il existe deux familles d'accélérateurs: ceux qui utilisent un champ électrostatique et ceux qui utilisent un champ pulsé en radiofréquence (rf). Avec un champ électrostatique, on peut atteindre des énergies maximales d'une dizaine de MeV. Cette limite est imposée par les décharges qui s'établissent entre l'électrode à haute tension et la masse [4].

Les champs rf, en revanche, permettent d'accélérer les ions à des énergies de quelques GeV. Le cyclotron est un accélérateur rf de type cyclique [5]. Le principe du cyclotron est schématisé dans la figure 1.3.

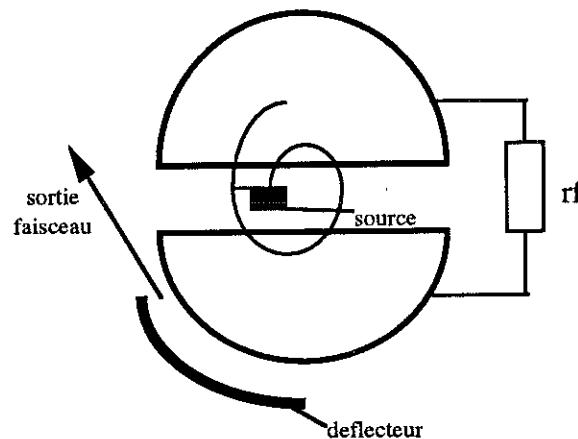


Figure 1.3 Schéma de principe d'un cyclotron.

Un champ magnétique uniforme est appliqué dans la direction perpendiculaire au dessin. La vitesse angulaire d'une particule chargée s'écrit alors :

$$\frac{v}{r} = \frac{eB}{m} \quad (1.1)$$

Comme la vitesse angulaire est indépendante du rayon r , les particules peuvent rester en phase avec un champ électrique rf qui est appliqué aux deux électrodes hémisphériques. Les particules passent plusieurs fois à travers les deux électrodes en parcourant des orbites de rayon croissant. Une fois arrivées à l'énergie maximale, les particules sont extraites par un champ déflecteur.

1.1.2.2 Description du système accélérateur du GANIL

La figure 1.4 montre une vue d'ensemble de l'accélérateur [6]. L'injecteur (C0) équipé d'une source RCE (Résonance Cyclotronique des Electrons) [7], fournit des ions multichargés, à partir d'éléments solides ou gazeux. Ce premier faisceau d'ions est injecté dans CSS1 (Cyclotron à Secteurs Séparés) qui les amène à une énergie de l'ordre de 10 MeV par unité de masse atomique (MeV/u.m.a.). Sortis de CSS1, les ions traversent un éplucheur (constitué d'une feuille mince de carbone) qui augmente leur état de charge, puis ils sont accélérés dans le second cyclotron (CSS2) qui les porte à une énergie de plusieurs dizaines de MeV/u.m.a.

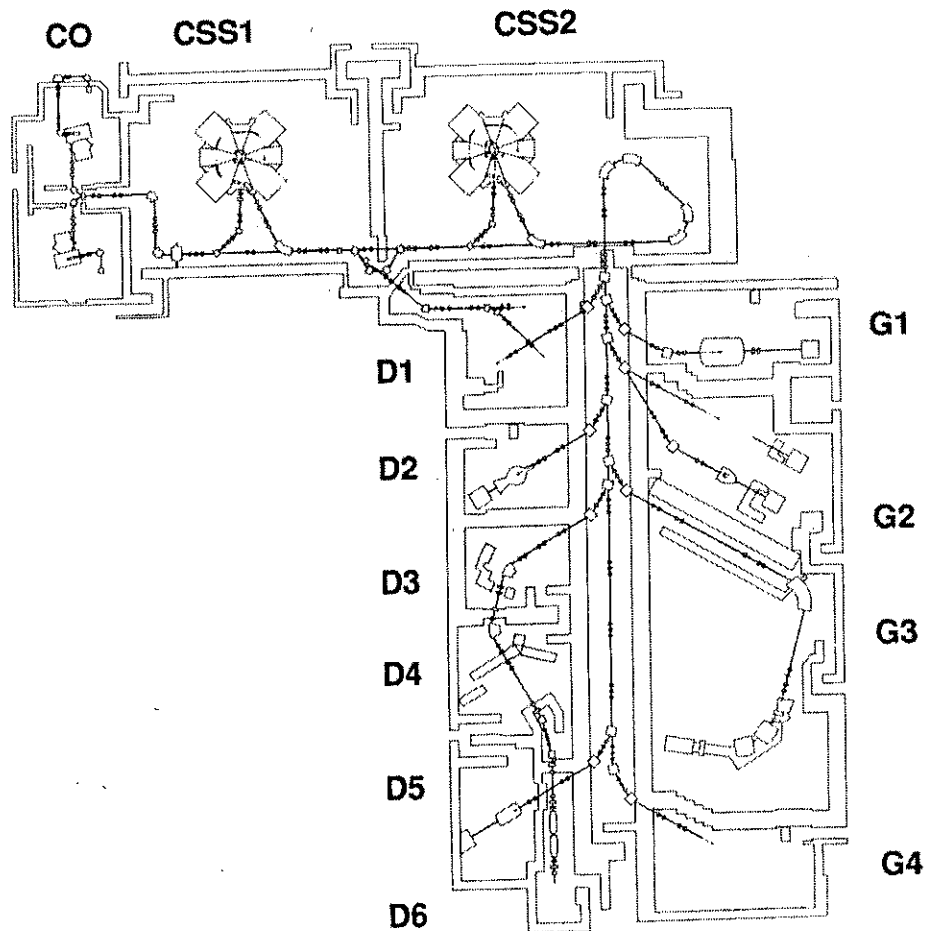


Figure 1.4 GANIL: accélérateur et aires expérimentales [6].

Une ligne a été construite à partir du cyclotron CSS1 pour amener les ions dits de moyenne énergie dans la salle d'expérimentation D1 du CIRIL vers le dispositif IRASME, tandis qu'une autre ligne venant de CSS2 aboutit également dans D1 et conduit les ions dits de haute énergie vers le dispositif IRABAT.

Toutes nos expériences se sont déroulées dans la salle D1, en utilisant les deux dispositifs.

Avant d'arriver sur la cible, le faisceau traverse des dipôles de balayage qui permettent

d'irradier une surface de plusieurs cm^2 d'une manière homogène (Fig. 1.5). Cette surface est réglée par un système de fentes dont on peut faire varier l'ouverture. Une sonde de profil constituée de deux réseaux perpendiculaires de fils conducteurs permet d'analyser le profil du faisceau. Pendant l'expérience, l'intensité du faisceau est contrôlée par le détecteur plein constitué de trois feuilles métalliques minces [8].

Une feuille d'alumine (qui est fluorescente sous irradiation), est placée sur la plaque porte-substrat avant l'arrêt faisceau. Elle sert à visualiser, au cours de la phase de réglage, le centrage du faisceau ainsi que la surface balayée.

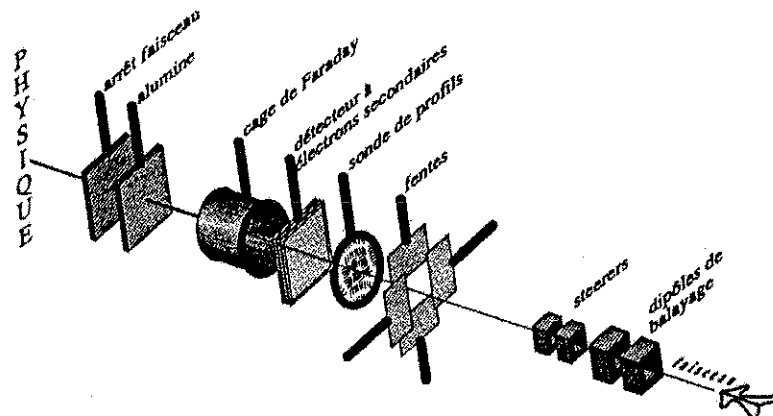


Figure 1.5 Réglage du faisceau et mesure du flux de particules (salle D1)

1.2 Caractérisation Structurale

1.2.1 Rétrodiffusion de particules chargées

La composition et l'épaisseur des couches obtenues par pulvérisation cathodique ont été déterminées au moyen de l'analyse des spectres de rétrodiffusion de particules chargées ("RBS": Rutherford Backscattering). Les expériences ont été effectuées à l'accélérateur ACADI au Département de Recherche Fondamentale du Centre d'Études Nucléaires de Grenoble, sous la responsabilité de J. Fontenil.

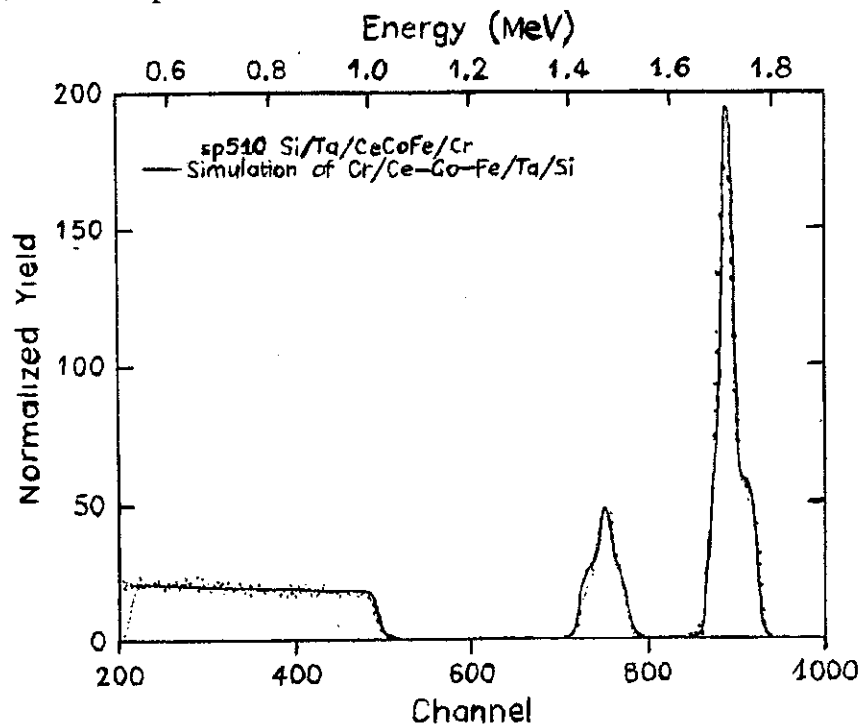


Figure 1.6 Spectre RBS d'une couche de $\text{Ce}(\text{Co}_{0.95}\text{Fe}_{0.05})_2$ déposée sur un substrat de silicium: nombre de particules comptées (normalisé) en fonction de leur énergie.

Une source d'ions fournit des particules $^4\text{He}^{2+}$ (particules α) ionisées par décharge hf, qui sont portées à plusieurs MeV par un accélérateur électrostatique. Le faisceau arrive en incidence normale sur l'échantillon qui se trouve dans une enceinte sous vide secondaire. Une partie des ions rétrodiffusés est captée par un détecteur situé approximativement à 180° par rapport à l'axe d'incidence. C'est pour cet angle de diffusion qu'on obtient la meilleure séparation en énergie des différents éléments. Le détecteur fournit un signal proportionnel à l'énergie de la particule incidente qui est ensuite amplifié et compté par un analyseur multicanaux.

Pour un angle d'incidence donné, la perte d'énergie des ions lors des collisions dépend de la masse des atomes rencontrés dans l'échantillon. Plus les atomes de la cible sont lourds, plus les collisions s'approchent de la limite élastique, et donc plus l'énergie des particules rétrodiffusées est élevée.

Par ailleurs les particules α perdent de l'énergie en pénétrant dans l'échantillon. Pour des échantillons suffisamment minces, on peut supposer que la perte d'énergie par unité de longueur est constante tout le long de l'épaisseur. L'énergie perdue par les particules α

est donc proportionnelle à l'épaisseur.

On remarquera qu'expérimentalement, cela implique que l'énergie des particules rétrodiffusées par une espèce atomique donnée est distribuée sur une fenêtre d'énergie ΔE . La détermination de la valeur ΔE permet alors d'accéder à l'épaisseur de la couche, connaissant le pouvoir d'arrêt du matériau analysé [9] (Fig.1.6).

Les données brutes de l'expérience consistent en des spectres donnant le taux de comptage en fonction du numéro de canal. Un programme de simulation dénommé RUMP, calcule le spectre attendu à partir de paramètres à entrer par l'utilisateur (composition des alliages et épaisseurs des couches constitutives). Les valeurs des paramètres qui superposent le mieux le spectre simulé avec les résultats des mesures sont retenues.

L'épaisseur maximale qui peut être déterminée au moyen de cette technique est de l'ordre de quelques milliers d'Å, à cause de la faible longueur de pénétration des $^4\text{He}^{2+}$. La composition d'échantillons plus épais peut néanmoins être déterminée, en supposant que le profil de composition est homogène le long de l'épaisseur.

1.2.2 Profilométrie

Pour mesurer les épaisseurs des couches plus épaisses nous avons utilisé un profilomètre mécanique dénommé α -step. Une aiguille montée sur un transducteur piézo-électrique balaye la surface de l'échantillon et chaque changement de hauteur de l'aiguille est amplifié et enregistré dans une gamme entre 10 nm et 100 μm .

1.2.3 Microscopie électronique en balayage

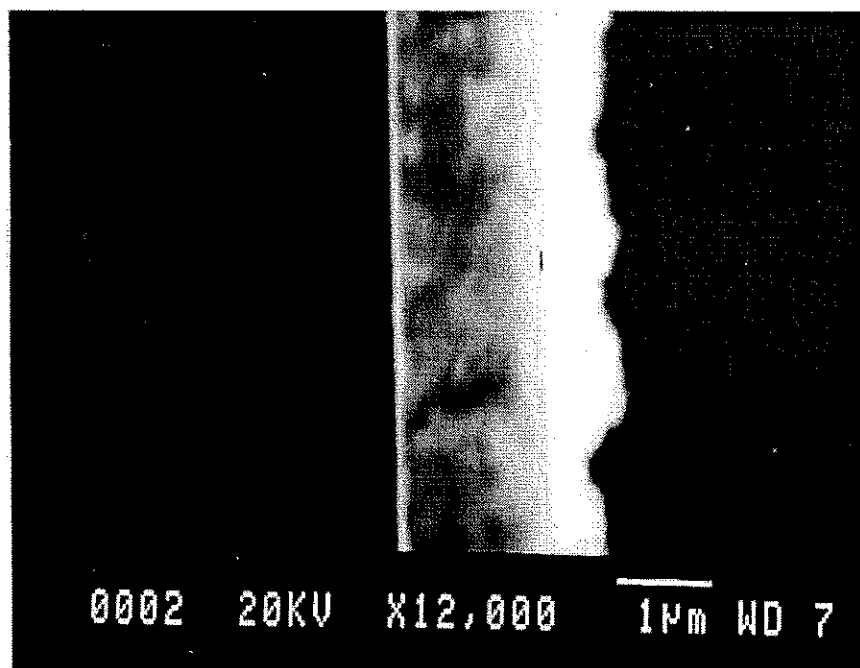


Figure 1.7 Image MEB en coupe transverse d'une couche d'YCo₂ cristalline. L'épaisseur exacte de la couche magnétique a pu ainsi être déterminée. La couche tampon de Ta est bien visible à gauche.

La technique de formation d'images par microscopie électronique consiste à balayer point par point la surface d'un échantillon par un faisceau d'électrons, et à reconstruire une image avec les électrons réémis. Les électrons réémis et utilisés pour la formation d'images sont les électrons secondaires et les électrons rétrodiffusés. Les électrons secondaires, de faible énergie, sont issus d'une couche superficielle de quelques dizaines d'angströms d'épaisseur. L'image en électrons secondaires, de meilleure résolution (50 Å environ), est bien adaptée à l'étude topographique d'un échantillon. Les électrons rétrodiffusés proviennent d'un volume plus grand que les électrons secondaires, leur profondeur de pénétration variant entre 100 et 1000 Å. Ils sont surtout utilisés pour former des images de composition, puisque leur taux d'émission croît avec le numéro atomique.

Nous avons principalement utilisé les images en électrons secondaires pour déterminer l'épaisseur des couches individuelles sur des surfaces de fracture (Fig. 1.7).

1.2.4 Diffraction de rayons X

La diffraction de rayons X a été utilisée dans deux géométries: diffraction conventionnelle symétrique (θ - 2θ) et diffraction sous incidence rasante. Les mesures en configuration θ - 2θ ont été effectuées à l'aide d'un diffractomètre numérique Philips au Laboratoire Louis Néel. Les expériences de diffraction en incidence rasante ont été réalisées sur un diffractomètre quatre cercles commun au Laboratoire Louis Néel et au laboratoire de Cristallographie. Les deux géométries diffèrent pour la direction du vecteur de propagation $\mathbf{q}$ et pour l'angle d'incidence. En géométrie θ - 2θ , $\mathbf{q}$ se trouve dans la normale au plan de la couche et l'angle d'incidence varie pendant l'acquisition. Les plans diffractants sont alors parallèles à la surface de la couche (Fig. 1.8).

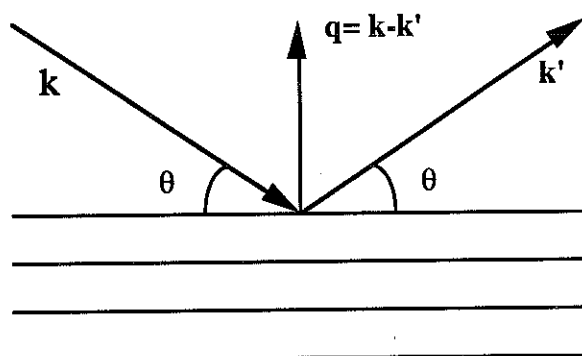


Fig. 1.8 Représentation de la géométrie de mesure de diffraction conventionnelle symétrique θ - 2θ .

En incidence rasante, l'angle d'incidence est très petit et $\mathbf{q}$ se trouve dans le plan de la couche. Les plans diffractants sont perpendiculaires à la surface (Fig. 1.9).

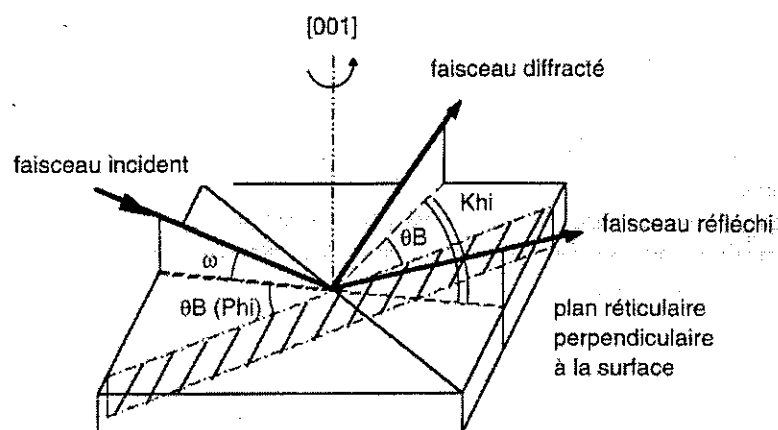


Figure 1.9 Géométrie de mesure de diffraction sous incidence rasante [10].

1.3 Caractérisation Magnétique

1.3.1 Magnétomètre à SQUID

Dans cet appareillage une force électromotrice résultant de la variation de flux est induite entre les bornes d'un jeu de deux bobines connectées en série-opposition par déplacement de l'échantillon entre leurs deux centres respectifs. Le dispositif de détection est basé sur un anneau en matériau supraconducteur (Nb) fermé par une jonction Josephson (Fig. 1.10). Celui-ci est d'une part couplé (par M_1) à une inductance L_2 en série avec les bobines de détection, d'autre part à un circuit oscillant de haute fréquence (par 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.

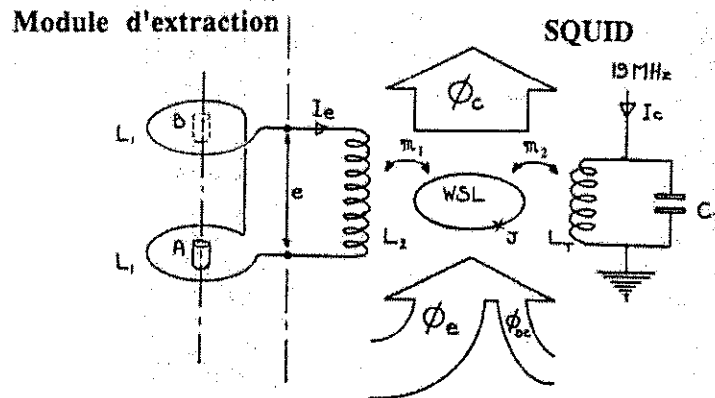


Figure 1.10 Principe du magnétomètre à SQUID utilisé au Laboratoire Louis Néel [12].

Le champ magnétique, généré par une bobine supraconductrice en NbTi, peut varier entre 10 Oe (champ rémanent de la bobine) et 70 kOe avec une homogénéité de 0,1% sur une longueur de 8 cm, supérieure à la zone de déplacement de l'échantillon. La bobine est refroidie dans un bain d'hélium liquide.

L'échantillon est introduit dans un anti-cryostat à flux d'hélium gazeux, l'enceinte intérieure étant reliée au bain d'hélium par un échangeur prolongé d'un capillaire. Un pompage primaire maintient dans l'enceinte une pression de 1 à 3 torr qui détend l'hélium et permet d'atteindre une température de 1,5 K. Le chauffage de l'échantillon intervient à deux niveaux. D'une part, un enroulement résistif bobiné autour de l'échangeur réchauffe le gaz détendu à la température désirée. D'autre part, un chauffage d'homogénéisation est disposé au niveau de l'échantillon pour accélérer la thermalisation de l'ensemble échantillon porte-échantillon. La gamme de températures accessibles s'étend de 1,5 K à 300 K. La résolution de détection est d'environ 10^{-6} emu.

1.3.2 Magnétomètre à échantillon vibrant Oxford Instruments

Dans le magnétomètre à échantillon vibrant (Fig.1.11) la variation de flux est induite dans les bobine de détection par des oscillations verticales d'amplitude 1,5 mm 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.

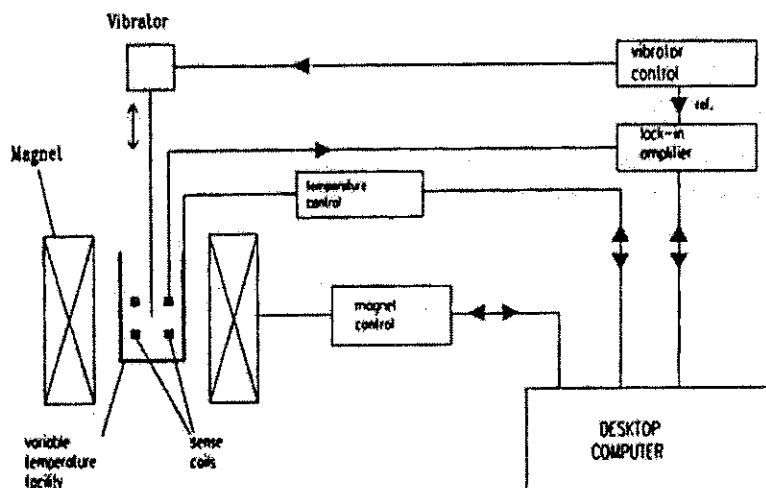


Figure 1.11 Schéma du magnétomètre à échantillon vibrant Oxford Instruments [13].

Une bobine supraconductrice fournit un champ magnétique maximum de 80 kOe orienté parallèlement à l'axe d'oscillation. La vitesse maximale de balayage du champ appliqué est de 0,2 kOe/s. L'échantillon se trouve dans un cryostat à flux d'hélium et peut être thermalisé à une température comprise entre 5 K et 300 K.

1.3.3 Magnétomètre à échantillon vibrant 2 Tesla de très haute sensibilité

Cet appareil a été entièrement conçu et réalisé (à l'exception du cryostat) au Laboratoire Louis Néel [14]. La résolution du dispositif est de 10^{-7} uem dans le champ maximal de 20 kOe et de $5 \cdot 10^{-8}$ uem pour les champs inférieurs à 2 kOe. Les éléments essentiels qui contribuent aux performances exceptionnelles de cet appareillage sont la qualité du vibreur et le découplage mécanique entre le bâti du vibreur et l'ensemble bobine supraconductrice-bobines de mesure.

Le vibreur est constitué de deux petites bobines supraconductrices reliées en série-opposition et alimentées par un courant alternatif de fréquence f_0 , exerçant une force alternative sur un aimant SmCo_5 solidaire de l'équipage mobile.

L'équipage mobile est très léger (18 g). Il est suspendu par deux ressorts permettant le mouvement vertical sans frottement contre les parois de l'anticryostat.

Une bobine supraconductrice fournit un champ magnétique maximal de 21 kOe. Cette bobine a été étudiée pour donner une très bonne résolution en champ: le champ rémanent

est inférieur à 0,2 Oe, la résolution meilleure que 0,1 Oe.

Un anticryostat fonctionnant selon le même principe que celui du magnétomètre à SQUID, permet d'effectuer les mesures dans la gamme 1,5-300 K.

Références

1. A. Liénard, *Thèse*, (Université Scientifique et Médicale, Grenoble, 1981).
2. R.M. Sternheimer, in *Nuclear Physics* L.C.Yuan, C.S.Wu, Eds, (Acad. Press, New York, 1963), vol. 5.
3. E. D. Courant, M. S. Livingston, H. S. Snyder, *Phys. Rev.* **88**, 1190 (1952).
4. R. Spohr, *Ion Tracks and Microtechnology* (Vieweg, 1990).
5. M. H. Blewett, in *Nuclear Physics*, L. C. Yuan, C. S. Wu, Eds. (Acad. Press, New York, 1963).
6. C. Dufour, *Thèse*, (Université de Caen, 1993).
7. J. Chaumont, E. Cottureau, M. Toulemonde, *Solid State Phenomena* **30-31**, 149-168 (1993).
8. S. Bouffard, J. Dural, F. Levesque, J. M. Ramillon, *Ann. Phys.* **14**, 395 (1989).
9. C. M. Nicolet, *Backscattering Spectrometry*, (Academic Press, 1978).
10. F. Robaut, *Thèse*, (Université J. Fourier, Grenoble, 1995).
11. J. M. Ndjaka, *Thèse*, (Université J. Fourier, Grenoble, 1990).
12. O. Cugat, *Thèse*, (Université J. Fourier, Grenoble, 1991).
13. Oxford Instruments, *Operator's Handbook*, (Eynsham, 1993).
14. P. Lethuiller, *Rapport Scientifique d'Activité du Laboratoire L. Néel*, (1995).

CHAPITRE 2

TRACES LATENTES DANS LES ALLIAGES INTERMETALLIQUES

2.1 L'interaction des ions lourds avec la matière condensée	19
2.1.1 Effets du pouvoir d'arrêt électronique dans les isolants	20
2.1.2 Effets du pouvoir d'arrêt électronique dans les métaux.....	23
2.1.3 Mécanismes d'endommagement.....	24
2.2 Irradiation des alliages intermétalliques avec des ions lourds rapides	29
2.2.1 Présentation des systèmes irradiés	29
2.2.1.2 Alliages RCO_2 ($\text{R}=\text{Y}, \text{Ce}, \text{Tm}$)	29
2.2.1.3 Alliages RCO_3 ($\text{R}=\text{Y}, \text{Ce}$)	31
2.2.2 Définition des conditions expérimentales d'irradiation.....	32
2.2.2.1 Type et énergie des faisceaux utilisés	32
2.2.2.2 Choix des épaisseurs des échantillons.....	33
2.2.2.3 Température d'irradiation	33
2.2.3 Préparation et irradiation des échantillons: résultats et discussion	35
2.2.3.1 YCo_2	35
2.2.3.2 $\text{Ce}(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)_2$	42
2.2.3.3 TmCo_2	48
2.2.3.4 YCo_3	49
2.2.3.5 $\text{Ce}(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)_3$	51
2.3 Le modèle de la pointe thermique appliqué aux alliages intermétalliques.....	54
2.3.2 Détermination des paramètres du calcul.....	56
2.3.2.1 Le gaz d'électrons.....	56
2.3.2.2 Le réseau atomique	58
2.3.3 Résultats et discussion.....	62
2.4 Conclusions.....	66

CHAPITRE 2

TRACES LATENTES DANS LES ALLIAGES INTERMETALLIQUES

2.1 L'interaction des ions lourds avec la matière condensée

En traversant la matière, les ions lourds sont sujets à deux types d'interactions: des collisions élastiques avec les noyaux de la cible d'une part, et des collisions inélastiques avec les électrons, d'autre part. La perte d'énergie totale par unité de longueur de la cible peut s'écrire:

$$S = S_n + S_e = \left(\frac{dE}{dz} \right)_n + \left(\frac{dE}{dz} \right)_e \quad (2.1)$$

où S_n et S_e sont respectivement les pouvoirs d'arrêt nucléaire et électronique.

L'énergie transférée par les ions à la cible peut induire des modifications microstructurales importantes, génériquement dénommées "endommagement". Le type et le degré d'endommagement dépendent de la nature de l'ion utilisé, de son énergie ainsi que de la structure électronique et atomique de la cible.

Pour les ions de basse vitesse, le pouvoir d'arrêt nucléaire est prédominant par rapport au pouvoir d'arrêt électronique. Les interactions élastiques de l'ion avec les atomes de

la cible donnent lieu à des cascades de collisions atomiques. Des atomes de la cible peuvent être éjectés de leurs sites et occuper des sites interstitiels. Les défauts ainsi créés peuvent ensuite migrer, donner lieu à des agrégats ou se recombinaison [1]. On peut alors observer des changements de la densité de dislocations, la dissolution ou la formation de précipités, voir une amorphisation [2, 3, 4]. Dans tous les cas cependant, les régions endommagées ont une forme irrégulière.

Dans le régime des hautes vitesses, c'est le pouvoir d'arrêt électronique qui prédomine. Les interactions inélastiques de l'ion avec les électrons de la cible peuvent donner lieu, dans certains cas, à des défauts étendus de forme cylindrique assez régulière, dénommés traces latentes. Ces défauts sont constitués d'un coeur amorphe, dont le diamètre est compris entre 10 et 100 Å. Les traces latentes ont été observées d'abord dans les cristaux isolants (voir 2.1.1) et plus récemment dans les composées métalliques amorphes et cristallins [5] (voir 2.1.2). Le mécanisme à la base de leur formation reste mal compris (voir 2.1.3).

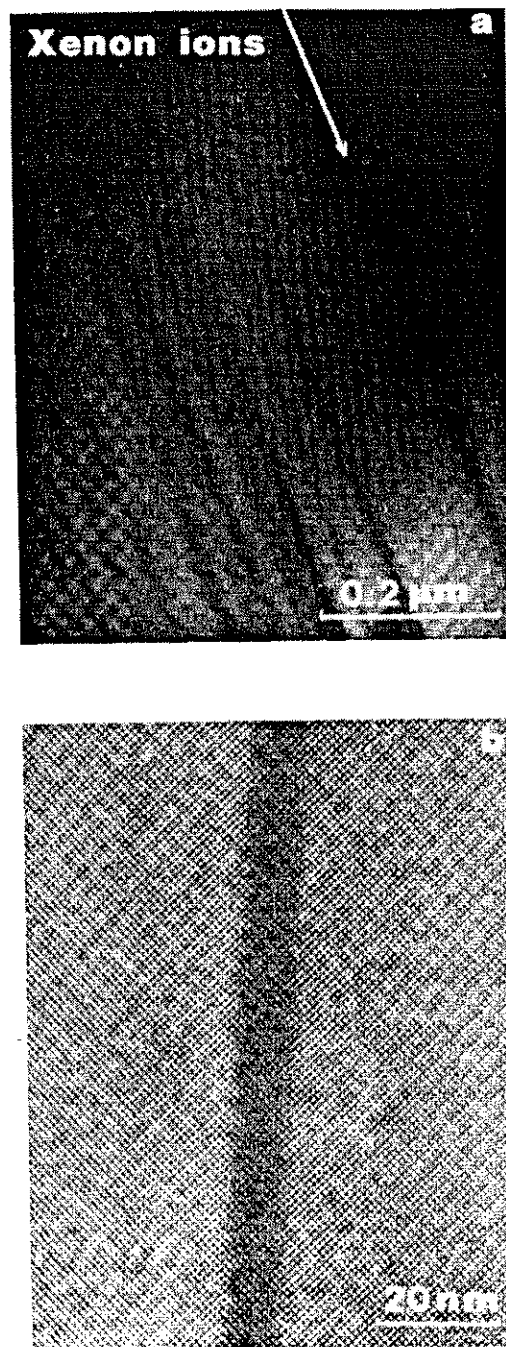
2.1.1 Effets du pouvoir d'arrêt électronique dans les isolants

Dans la plupart des matériaux isolants, avec l'exception des composés ioniques, le passage d'ions lourds rapides crée des traces latentes [5, 6, 7, 8, 9, 10, 11]. Nous nous limitons ici aux résultats obtenus pour les isolants magnétiques irradiés avec des ions lourds rapides.

Des oxydes magnétiques, tels que les grenats de gadolinium et d'yttrium, ont été irradiés pour améliorer leurs propriétés magnétiques extrinsèques et intrinsèques en vue de leur utilisation comme matériaux pour l'enregistrement magnéto-optique (voir Introduction) [6, 7, 8]. Ces matériaux se sont ensuite révélés de bons candidats pour étudier la morphologie des traces. L'interaction de superéchange est en effet très sensible à toute variation de l'ordre cristallographique. L'étude de la variation des propriétés magnétiques avec l'irradiation a permis d'avoir accès à des informations complémentaires sur les modifications structurales induites par le passage des ions, dans le volume de traces et dans son environnement immédiat [9]. Plus récemment, dans ces matériaux irradiés avec des ions d'énergie d'1 GeV, les traces latentes ont été directement observées par microscopie électronique en transmission (Fig. 2.1) [10]. La précipitation d'une phase amorphe par irradiation a été mise en évidence par spectroscopie Mössbauer et sa fraction volumique déterminée en raison du fait que la température de Curie du matériau amorphe est bien inférieure à celle de la matrice cristalline résiduelle. Le diamètre moyen des traces ainsi déduit est en bon accord avec celui directement observé par microscopie électronique, ce qui implique que les traces sont formées d'un coeur amorphe. La déformation de la matrice cristalline autour de la trace a été mise en évidence par le changement d'orientation du champ magnétique hyperfin. Une anisotropie magnétique parallèle à l'axe de la trace latente et donc perpendiculaire à la surface de l'échantillon est observée [10, 11]. Cela est interprété

comme un effet des contraintes développées par le coeur amorphe de la trace en raison de sa densité plus faible.

Cette morphologie de la trace latente, un coeur amorphe de forme cylindrique entouré d'une région cristalline déformée, a été confirmée dans ZnFe_2O_4 [12]. La formation de traces latentes avec des rayons de quelques nanomètres a été mise en évidence par microscopie électronique en transmission et spectroscopie Mössbauer après irradiation d'ions lourds d'énergie 1 GeV. Une modification importante des propriétés magnétiques est aussi observée. ZnFe_2O_4 est un antiferromagnétique avec une température d'ordre de 10 K. Dans les échantillons irradiés, une aimantation spontanée apparaît à température ambiante dans la matrice cristalline résiduelle. D'après les auteurs, cela serait dû à la création d'un ordre ferrimagnétique dans l'environnement des traces à la suite d'un réarrangement des positions des ions de fer dans la structure à spinelle induit par les contraintes développées par la trace.



*Fig. 2.1 Images au microscope électronique en transmission de traces latentes dans $Y_3Fe_5O_{12}$ irradié avec du Xe de 3 GeV d'énergie à la fluence de 10^{10} ions.cm⁻²:
 (a) résolution moyenne (b) haute résolution [10].*

2.1.2 Effets du pouvoir d'arrêt électronique dans les métaux

Pendant longtemps, on a cru les métaux insensibles aux excitations électroniques induites par irradiation d'ions lourds.

Selon une hypothèse largement partagée, on pensait que la mobilité élevée des électrons libres écranterait toute perturbation d'origine électrostatique avant que l'énergie puisse être transmise au réseau cristallin [12]. La première expérience dans laquelle l'action du pouvoir d'arrêt électronique a été prise en compte dans un composé métallique est l'endommagement de l'alliage $\text{Pd}_{80}\text{Si}_{20}$ par des fragments de fission d'uranium [13]. L'endommagement était attribué à l'action combinée de collisions nucléaires et électroniques. Néanmoins les rôles respectifs de l'une et de l'autre n'étaient pas quantifiés.

La mise au point des accélérateurs d'ions de très haute énergie a ouvert de nouvelles perspectives expérimentales. La sensibilité aux ions lourds des matériaux métalliques à l'état amorphe ou cristallisé a ainsi pu être explorée pour des valeurs très élevées du pouvoir d'arrêt électronique. Des résultats inattendus ont été mis en évidence:

Métaux Amorphes

Dans l'alliage $\text{Pd}_{80}\text{Si}_{20}$, irradié avec des ions ^{129}Xe d'énergie de 1.34 MeV/A, un phénomène de croissance macroscopique sous irradiation a été mis en évidence [14]. L'effet de l'irradiation est ici semblable à celui d'un martèlement. L'échantillon s'amincit dans la direction parallèle à la trajectoire de l'ion tandis que sa surface (perpendiculaire à la direction du faisceau) augmente. Ce phénomène apparaît au delà d'un seuil de S_e , il s'agit donc d'une conséquence des excitations électroniques.

Les réarrangements atomiques dus aux excitations électroniques ont été étudiés sur l'alliage $\text{Fe}_{85}\text{B}_{15}$ [15, 16] irradié, au moyen de mesures de résistivité in-situ. L'augmentation de résistivité mesurée est interprétée comme due à une modification de l'ordre à courte distance de l'alliage induite par des excitations électroniques.

Métaux Cristallins

Dans les métaux cristallins, le premier effet de l'irradiation d'ions lourds, qui a été interprété comme dû au pouvoir d'arrêt électronique, est le recuit sous faisceau des paires de Frenkel induites par collisions nucléaires dans le Ni [17]. Cet effet a été ensuite observé dans d'autres matériaux métalliques comme le Fe et le Ni_3Fe [18]. La sensibilité de plusieurs métaux purs a aussi été testée en fonction du pouvoir d'arrêt électronique [19, 20]. La majorité des métaux irradiés jusqu'ici (Cu, Nb, Pd, Ag, W, Pt) se montrent insensibles à l'irradiation d'ions lourds de haute énergie. En revanche, la création d'agrégats de défauts ponctuels au delà d'un seuil de S_e est observée dans le Ti irradié avec des ions de Ta et de Pb[21].

Par ailleurs, un nombre très limité d'expériences met en évidence des transformations de phase induites par irradiation dans des matériaux métalliques.

Dans le composé NiTi, qui cristallise dans une structure monoclinique à température ambiante, la coexistence de la phase cubique (stable à haute température), de la phase monoclinique et d'une phase amorphisée est observée après irradiation par du Pb de 0.7 GeV d'énergie [22].

Dans l'alliage Ni₃B, irradié avec des ions de Kr, Xe, et U [23], une forte augmentation de l'endommagement apparaît lorsqu'un seuil du pouvoir d'arrêt électronique est franchi. Pour les échantillons irradiés avec de l'uranium la diffraction électronique révèle que la fraction de matériau endommagée est à l'état amorphe.

Enfin, des traces latentes presque continues ont été observées par microscopie électronique en transmission dans l'alliage NiZr₂ irradié avec Pb [24]. Les mesures de diffraction électronique montrent que l'alliage est amorphisé par le passage des ions. Au delà d'une fluence de $5 \cdot 10^{13}$ ions.cm⁻², la quasi-totalité de l'échantillon est amorphisée [22].

La formation de traces constituées d'une phase amorphe FeSi a été aussi observée dans des multicouches de Fe cristallin et Si amorphe irradiées avec des ions U d'énergie 650 MeV. Au moyen des mesures de spectroscopie Mössbauer et de microscopie électronique, les auteurs montrent que l'irradiation introduit un mélange interfacial très important entre les couches [25].

2.1.3 Mécanismes d'endommagement

Pour rendre compte des résultats expérimentaux, deux mécanismes d'endommagement impliquant des processus électroniques collectifs sont proposés dans la littérature: l'explosion coulombienne (où pointe ionique) et la pointe thermique. Néanmoins, aucun modèle dérivé de ces mécanismes ne conduit à des prédictions quantitatives fiables sur la quantité et le type d'endommagement dans les différents types de matériaux.

Mécanisme de l'explosion coulombienne

En traversant la cible, l'ion éjecte des électrons en laissant dans son sillage un cylindre fortement ionisé (dénommé pointe ionique)[12]. Si la contrainte électrostatique locale est plus importante que la force de liaison interatomique du matériau et si la mobilité électronique est suffisamment faible, la forte répulsion électrostatique de la pointe ionique peut induire des déplacements atomiques.

Dans le cadre d'une description semiquantitative [12] on exprime ces deux conditions en fonction de paramètres physiques de la cible, en établissant un critère pour la formation de traces latentes. Dans ce formalisme, la première condition est satisfaite si:

$$n^2 > R = \frac{E\epsilon a_0^4}{10e^2} \quad (2.2)$$

où n est le nombre moyen d'électrons éjectés par atome, ϵ la constante diélectrique du matériau, a_0 la distance interatomique, E le module de Young et e la charge électronique.

Les matériaux les plus sensibles à la formation de traces seraient donc ceux dont la résistance mécanique et la constante diélectrique sont faibles et dont les distances interatomiques sont petites.

La deuxième condition est satisfaite si:

$$n_n < \frac{en_a}{\pi a_0 \mu_n k T t} \quad (2.3)$$

où n_n est la densité des électrons libres, n_a le nombre d'ionisations par plan atomique μ_n la mobilité électronique et t le temps de diffusion des électrons. Pour $t = 10^{-13}$ s, cette relation est satisfaite seulement pour les matériaux semi-conducteurs et isolants.

L'adaptation de ce mécanisme aux matériaux conducteurs a été récemment effectuée [26, 27, 28], en tenant compte de l'écrantage des électrons de conduction.

Dans ce modèle, le passage d'un ion à travers un métal est décrit en trois étapes:

- $t > 10^{-18}$ s (temps nécessaire à la création d'une lacune électronique, évalué comme le temps qu'il faut à un ion pour traverser un plan atomique): l'ion crée une pointe ionique le long de sa trajectoire;

- $t = 10^{-16}$ s: dans ce temps, qui correspond à l'ordre de grandeur de la période des oscillations plasmoniques, la distribution de charge est écrantée par les électrons de conduction.

- $t \geq 10^{-13}$ s: le réseau répond à la perturbation initiale créée par la pointe ionique. Selon les caractéristiques de la cible (structure atomique, conductivité électrique et thermique, existence de plusieurs phases stables et métastables), la relaxation de cette perturbation peut ou non induire des modifications microstructurales permanentes.

Le paramètre clef du modèle est $\eta = Z_1^* v_0 / v$, où Z_1^* est le numéro de charge efficace de l'ion dans la cible, v est la vitesse de l'ion et v_0 est la vitesse de Bohr.

La densité de charge créée par le passage de l'ion peut être estimée en tenant compte des ionisations primaires et secondaires. On obtient:

$$\rho(r) \propto \eta^2 \quad (2.4)$$

Cette distribution de charge sera écrantée par les électrons de conduction, donc la charge électrostatique totale sera donnée par:

$$\rho_t(r, t) = \rho(r) + \rho_s(r, t) \quad (2.5)$$

où $\rho_s(r, t)$ est la distribution de la densité de charge d'écrantage. Le problème est donc ramené à la réponse en temps et dans l'espace d'un gaz d'électrons soumis à un transitoire de charge de symétrie cylindrique. En première approximation, le champ électrique du transitoire peut s'écrire:

$$\begin{aligned} E_t(r, t) &= E(r) && \text{pour } t < \omega_p^{-1} \\ E_t(r, t) &= 0 && \text{pour } t > \omega_p^{-1} \end{aligned} \quad (2.6)$$

où $E(r)$ est le champ électrique dû à la charge non écrantée $\rho(r)$ et ω_p est la pulsation plasmonique. Ainsi, pendant un temps ω_p^{-1} , les atomes qui se trouvent à une distance r de la trajectoire de l'ion reçoivent une quantité de mouvement radiale:

$$p(r) = \frac{\rho(r)E(r)}{N\omega_p} \quad (2.7)$$

où N est la densité atomique de la cible. Si on considère le théorème de Gauss, $p(r)$ est proportionnel à $\rho^2(r)$ et donc à η^4 d'après (2.4). Cela implique une dépendance en η^8 pour l'énergie cinétique radiale moyenne $E_c(r)$ acquise par les atomes proches de la trajectoire de l'ion. En supposant que la quantité d'endommagement est proportionnelle à $E_c(r)$, un bon accord est obtenu avec les sections efficaces d'endommagement par excitations électroniques mesurées expérimentalement dans le fer et le titane.

Mécanisme de la pointe thermique

Dans ce modèle, on considère que l'énergie transmise par l'ion incident aux électrons de la cible est transférée vers le réseau par interaction électron-électron et électron-phonon. Si l'augmentation de température associée est suffisamment forte, des défauts sont créés le long de la trajectoire de l'ion par activation thermique, et stabilisés par la trempe rapide qui suit.

L'hypothèse de base est que l'irradiation provoque une augmentation instantanée de la température électronique qui ne peut pas être suivie par celle du réseau, en raison du temps de relaxation beaucoup plus élevé de celui-ci.

En conséquence, pour des temps de l'ordre de 10^{-13} s, le matériau est constitué par deux systèmes hors équilibre thermodynamique: un gaz d'électrons très chauds dans un réseau froid. Cela permet de pouvoir définir une température électronique T_e et une température atomique T_a . La validité de cette hypothèse a été récemment confirmée par des expériences d'irradiation de métaux au laser femtoseconde, qui démontrent que les électrons dans un métal peuvent être hors équilibre avec le réseau pour de temps plus courts que le temps de relaxation de l'énergie électronique [29, 30, 31]. Après l'excitation, les électrons et le réseau retournent en équilibre par émission de phonons. Seitz et Koehler [32] avaient estimé l'efficacité de ce processus pour les métaux nobles et pour les métaux de transition. Dans les métaux nobles, en raison de la faiblesse du couplage électron-phonon, l'augmentation de la température du réseau est réduite d'un facteur 200 par rapport à celle des électrons, et pourrait atteindre une valeur maximum de 500 K le long de la trajectoire de l'ion. Cette valeur est trop faible pour pouvoir induire des modifications microstructurales. En revanche, dans les métaux de transitions, des augmentations de température du réseau de $5 \cdot 10^4$ K pourraient être atteintes à cause du couplage électron-phonon plus fort .

Plus récemment, un nouveau modèle basé sur le mécanisme de la pointe thermique a été développé pour expliquer la formation de traces latentes observées dans les matériaux métalliques et semi-conducteurs [33, 34, 35]. Dans ce cas, la trace est stabilisée par trempe rapide d'un cylindre de matière fondue. On suppose également que la dissipation d'énergie des électrons due à la diffusion avec les phonons peut s'écrire par unité de volume comme $g(T_e - T_a)$, où g est une constante qui décrit phénoménologiquement le couplage électron-phonon. Par analogie avec la description des expériences de laser femtoseconde, l'évolution temporelle des températures T_e et T_a des électrons et des atomes est décrite par un système d'équations différentielles couplées non linéaires:

$$\begin{aligned} \rho C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial r} \left[K_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial r} \right] + \frac{K_e(T_e)}{r} \frac{\partial T_e}{\partial r} - g(T_e - T_a) + A(r, t) \\ \rho C_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial r} \left[K_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial r} \right] + \frac{K_a(T_a)}{r} \frac{\partial T_a}{\partial r} + g(T_e - T_a) \end{aligned} \quad (2.8)$$

où

$$\iint A(r, t) 2\pi r dr dt = S_e \quad (2.9)$$

Dans cette approche, on suppose que la pointe thermique générée par le passage de l'ion est de symétrie cylindrique. Les équations (2.8) décrivent la dissipation, dans le matériau irradié, de l'énergie $A(r, t)$ transmise par l'ion aux électrons par unité de volume et de temps. La dissipation se produit par conduction et couplage électron-phonon. C_e , K_e , C_a et K_a sont les chaleurs spécifiques et les conductivités thermiques

pour le système électronique et le réseau respectivement, ρ est la densité de la cible, g est la constante de couplage électron-phonon, $A(r,t)$ est la densité d'énergie déposée par l'ion par unité de temps et r est la distance à l'axe de la trajectoire de l'ion (voir 2.3, pour une discussion plus détaillée).

Dans cette approche, le diamètre des traces latentes est égal au diamètre du cylindre pour lequel la température du réseau T_a , calculée avec (2.8), est supérieure à la température de fusion du matériau irradié. La résolution de ce système se fait numériquement [33]. Les résultats ainsi obtenus décrivent bien le comportement sous irradiation de matériaux amorphes (a-Ge, a-Si et a-Fe₈₅B₁₅) et de métaux purs (Ti, Zr, Co, Fe) [36].

2.2 Irradiation des alliages intermétalliques avec des ions lourds rapides

2.2.1 Présentation des systèmes irradiés

2.2.1.1. Magnétisme des alliages Y-Co et Ce-Co

Dans les composés Y-Co cristallins, le moment magnétique du cobalt diminue lorsque la fraction atomique d'yttrium augmente. Cela est dû au transfert des électrons de la terre rare vers la bande 3d du cobalt et à l'hybridation 3d(Co)-4d(Y). Les composés plus riches en cobalt que YCo_2 sont ferromagnétiques, tandis que YCo_2 et les composés plus riches en yttrium sont paramagnétiques de Pauli (fig.2.2a). Dans les composés Ce-Co, la diminution du moment magnétique à saturation est plus rapide en raison de l'état de valence intermédiaire des atomes de cérium [37]. Par conséquent, CeCo_3 et les composés plus riches en cobalt sont ferromagnétiques, tandis que les composés plus riches en cérium sont paramagnétiques de Pauli (fig.2.2b).

Un comportement différent est observé dans les alliages amorphes. La localisation des électrons 3d du cobalt est plus grande qu'à l'état cristallin, en raison du désordre et de la densité atomique plus faible. Cela est un facteur qui limite le transfert électronique vers la bande 3d du cobalt [38]. Du coup, les alliages Y-Co amorphes sont ferromagnétiques jusqu'à une composition Y:Co de 1:1 [39] (Fig.2.2a) et les alliages Ce-Co amorphes jusqu'à une composition Ce:Co de 1:1.9, en raison du fait que le cérium préserve son état de valence intermédiaire même à l'état amorphe [40] (Fig.2.2b).

2.2.1.2 Alliages RCo_2 (R=Y, Ce, Tm)

Ces composés cristallisent dans la phase de Laves cubique [41].

YCo_2

A l'état cristallin c'est paramagnétique de Pauli. A l'état amorphe, YCo_2 est un ferromagnétique doux avec une température d'ordre de 380 K et un moment magnétique à saturation d'environ $1 \mu_B/\text{Co}$. Nous avons irradié des couches minces cristallines d' YCo_2 dans le but d'obtenir des réseaux de nanocolonnes ferromagnétiques amorphes dans une matrice non magnétique. C'est un système idéal pour l'étude des mécanismes de renversement de l'aimantation dans des particules nanométriques à anisotropie de forme.

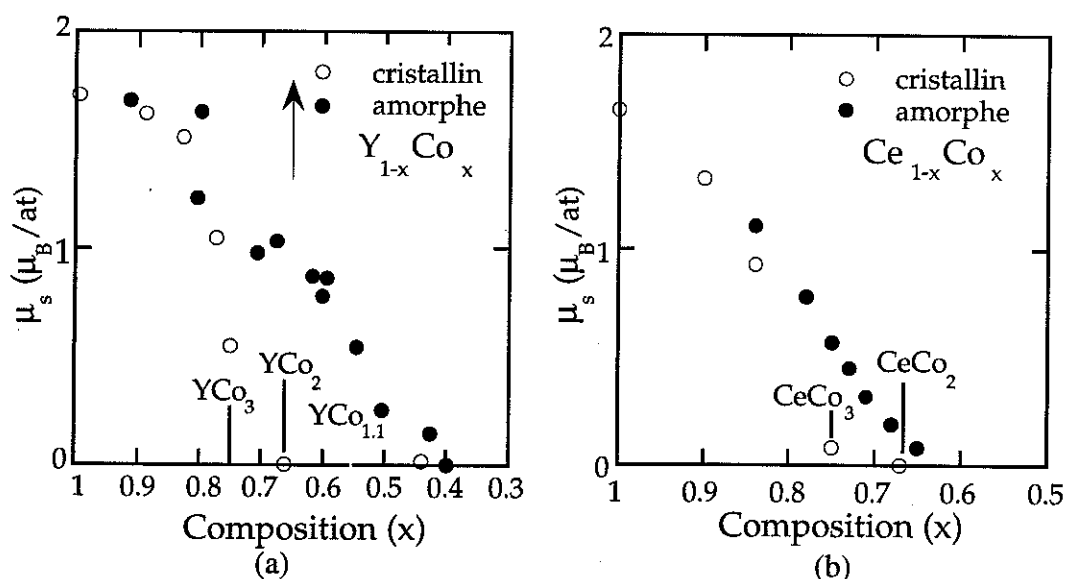


Fig. 2.2 Variation du moment magnétique à saturation pour les alliages binaires Y-Co et Ce-Co (cristallins et amorphes) en fonction du pourcentage atomique de Co d'après [39, 40].

CeCo₂

CeCo₂ est un paramagnétique de Pauli à l'état cristallin. A l'état amorphe il est faiblement ferromagnétique, avec un moment magnétique de $0.12 \mu_B$ par atome de Co (fig.2.2b). Il a été montré que de faibles quantités de cobalt (moins de 3% atomique) peuvent être substituées par du fer sans modifier les propriétés magnétiques à l'état cristallin [42]. Nous avons donc choisi un composé $\text{Ce}({}^{57}\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x})_2$ ($x=0.03$) pour effectuer une étude Mossbauer des nanocolonnes obtenues par irradiation.

TmCo₂

A notre connaissance, une étude systématique du magnétisme du système Tm-Co amorphe et cristallin, en fonction de la composition de Co, n'a pas été effectuée. Néanmoins, pour le composé TmCo₂, la variation des propriétés magnétiques entre l'état amorphe et l'état cristallin est similaire à celle observée dans les systèmes YCo₂ et CeCo₂.

De fait, TmCo₂ est ferrimagnétique ($\mu_s = 3.96 \mu_B/\text{u.f.}$) avec une température d'ordre à l'état cristallin de 4 K et supérieure à la température ambiante à l'état amorphe. Il existe donc une large gamme des températures pour laquelle la situation est identique à celle d'YCo₂, à savoir d'éventuelles nanocolonnes amorphes dans une matrice cristalline non magnétique. L'intérêt de ce composé réside dans l'existence d'une anisotropie magnétocristalline élevée qui pourrait conduire à des champs coercitifs de nanocolonnes beaucoup plus importants que dans YCo₂.

2.2.1.3 Alliages RCO_3 ($\text{R}=\text{Y}, \text{Ce}$)

La structure cristalline de ces composés présente deux formes allotropiques: rhomboédrique ou hexagonale [41].

YCo_3

YCo_3 est un ferromagnétique à l'état cristallin avec un champ d'anisotropie d'environ 100 kOe à 4.2 K, une température d'ordre $T_c=300$ K [41], et un moment magnétique à saturation de $0.5 \mu_B/\text{Co}$ environ (fig.2.2a). A l'état amorphe, il est un ferromagnétique avec une température d'ordre $T_c=550$ K environ et un moment magnétique à saturation de $1 \mu_B/\text{Co}$.

Nous avons irradié YCo_3 dans le but d'obtenir un matériau magnétique hétérogène constitué d'un mélange à l'échelle nanométrique de phase dure/douce couplées par l'interaction d'échange. Le fait que l'aimantation à saturation de la phase douce soit plus élevée pourrait permettre en principe d'observer un effet "spring-magnet", qui consiste à une augmentation de l'aimantation à saturation totale et à une diminution correspondante du champ coercitif.

CeCo_3

CeCo_3 est ferromagnétique avec une température d'ordre $T_c=78$ K et un moment magnétique à saturation de $0.2 \mu_B/\text{u.f.}$ à l'état cristallin [43]. A l'état amorphe il présente une température d'ordre supérieure à l'ambiante. Comme dans le cas de CeCo_2 , un faible pourcentage d'atomes de Co peut être substitué par du fer, sans changer de façon significative les propriétés magnétiques du composé cristallin. En vue d'effectuer une étude de spectroscopie Mossbauer des nanocolonnes magnétiques dans l'intervalle $T_c^{(c)} < T < T_c^{(a)}$, nous avons choisi d'irradier un composé $\text{Ce}({}^{57}\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x})_3$ ($x=0.03$). Par ailleurs, pour $T < T_c^{(c)}$, la situation serait identique à YCo_3 , à savoir un mélange à l'échelle nanométrique de phase dure/douce. Un effet de type "spring-magnet" pourrait être observé.

2.2.2 Définition des conditions expérimentales d'irradiation

2.2.2.1 Type et énergie des faisceaux utilisés

Tous les composés considérés présentent un caractère métallique et des températures de fusion assez élevées (voir tableau 2.7). On s'attend donc à ce que ces composés soient peu sensibles à l'endommagement par excitation électronique (voir 2.1.3). Nous avons donc choisi de les irradier avec les faisceaux d'ions permettant les valeurs maximales de S_e , soit les ions les plus lourds disponibles au GANIL: ^{208}Pb et ^{238}U sur les lignes SME (Sortie Moyenne Energie) et HE (Haute Energie).

La profondeur de pénétration (R) et les pouvoirs d'arrêt électronique et nucléaire en fonction de l'énergie de l'ion incident ont été calculés avec le code TRIM [44] pour tous les composés. La Fig. 2.3 montre les pouvoirs d'arrêt électronique et nucléaire en fonction de l'énergie de l'ion incident pour YCo_2 . Pour des énergies supérieures à 0.1 GeV environ, les valeurs de S_n sont complètement négligeables par rapport aux valeurs de S_e . Dans ces conditions, l'endommagement est uniquement dû au pouvoir d'arrêt électronique. Les valeurs et la dépendance en énergie de S_e , S_n et R calculées pour tous les autres composés diffèrent peu de celles d' YCo_2 . Elles sont reportées dans le tableau 2.1.

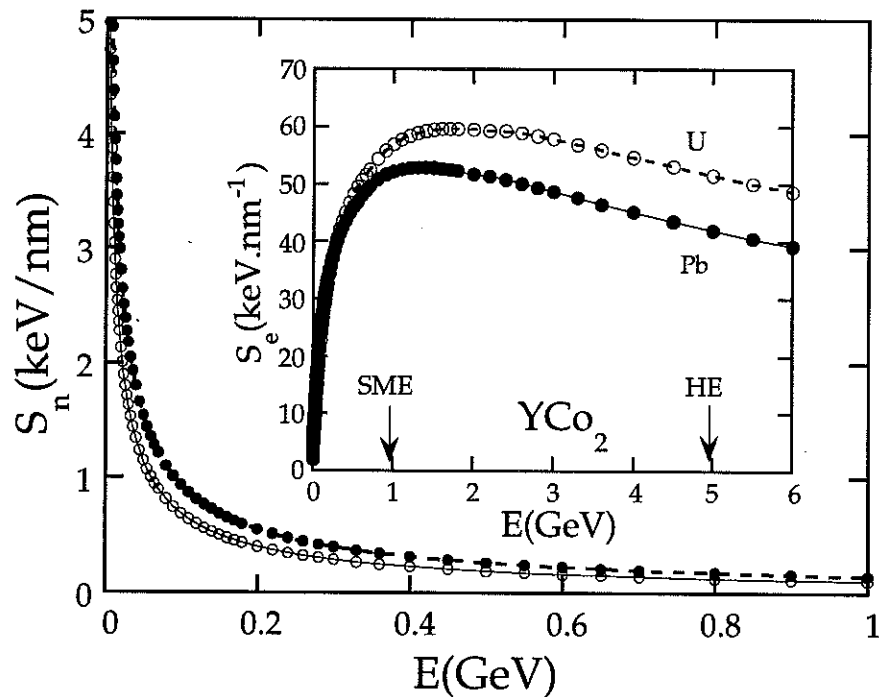


Fig. 2.3 Pouvoirs d'arrêt nucléaire d' YCo_2 en fonction de l'énergie de l'ion incident (Pb points noirs, U points blancs) calculés avec un code TRIM. Insert: pouvoirs d'arrêt électroniques; les flèches indiquent les énergies utilisées dans les expériences : lignes SME (Sortie Moyenne Energie) et HE (Haute Energie) au GANIL.

2.2.2.2 Choix des épaisseurs des échantillons

La figure (2.4) montre les profondeurs de pénétration calculées pour des ions de Pb et d'U traversant YCo_2 . La profondeur de pénétration calculée pour un ion de la SME (1 GeV d'énergie) vaut 25 μm . En tenant compte que pour cette énergie S_e vaut 50 KeV/nm, l'ion perdra, en traversant 1 μm de matériau, environ 5% de son énergie. L'ion traverse donc l'échantillon à énergie quasi-constante et dépose par conséquent la même quantité d'énergie par unité de longueur sur toute son épaisseur. Cet argument est encore plus vrai pour les ions HE, dont la profondeur de pénétration est de l'ordre de 100 μm (Fig.2.4). Il en résulte que l'on peut raisonnablement s'attendre à un endommagement homogène sur des épaisseurs de quelques μm en SME et jusqu'à quelques dizaines de μm en HE.

2.2.2.3 Température d'irradiation

Tous les alliages considérés dans cette étude présentent des phases amorphes très stables avec des températures de cristallisation assez élevées (tableau 2.1). Nos expériences d'irradiation ont donc été effectuées à température ambiante et la caractérisation de l'endommagement a été effectuée ex-situ.

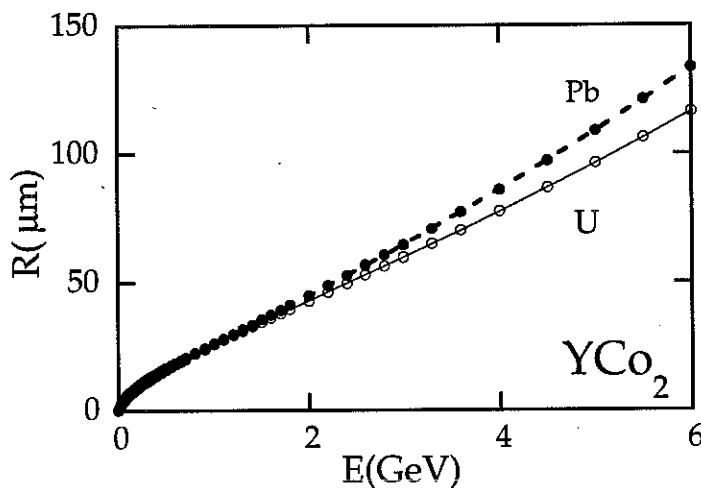


Figure 2.4 Profondeur de pénétration en fonction de l'énergie pour des ions de Pb (trait discontinu) et d'U (trait continu).

	$T_c(A)$ (K)	$T_c(C)$ (K)	T.Cr. (K)	R (μm)	S_e (keV/nm)	S_n (keV/nm)
YCo ₂	380 ^(a)	para-	800 ^(a)	30 (SME) 110 (HE)	55 (SME) 42 (HE)	0.15 (SME) 0.04 (HE)
CeCo ₂	ferro-	para-	500 ^(a)	110 (HE)	42.5 (HE)	0.03 (HE)
TmCo ₂	350 ^(a)	4,20 ^(b) 40 ^(a)	800 ^(a)	105 (HE)	45 (HE)	0.029 (HE)
YCo ₃	550 ^(a)	301 ^(b)	800 ^(a)	103 (HE)	44.3 (HE)	0.028 (HE)
CeCo ₃	>RT	80 ^(c)	800 ^(a)	102 (HE)	44.4 (HE)	0.028 (HE)

(a) Cette étude, (b) Ref. [41], (c)Ref. [43]

Tab.2.1 $T_c(A)$: température d'ordre magnétique pour l'alliage amorphe;

$T_c(C)$: température d'ordre magnétique pour l'alliage cristallin;

T.Cr.: valeurs estimés (par mesures de diffraction X effectuées sur des échantillons recuits à des températures différentes) des températures de cristallisation des alliages amorphes;

R: profondeur de pénétration des ions calculée avec un code TRIM 91 (SME: valeur calculé pour un ion d'U d'énergie 1 GeV; HE: valeur calculé pour un ion de Pb d'énergie de 5 GeV);

S_e : pouvoir d'arrêt électronique calculé avec TRIM 91;

S_n : pouvoir d'arrêt nucléaire calculé avec TRIM 91.

2.2.3 Préparation et irradiation des échantillons: résultats et discussion

2.2.3.1 YCo₂

Deux séries d'échantillons amorphes avec les structures et compositions suivantes ont été préparées:

1) Si(100)/Ta(1000 Å)/YCo₂(15000 Å)/ Ta (1000 Å) (échantillons A)

2) Si(100)/ Ta (500 Å)/ YCo_{1.1}(2300 Å)/ Ta (500 Å) (échantillons B)

Les échantillons ont été recuits pendant 1 heure sous vide secondaire à une température de 600° C (échantillons A) ou 500° C (échantillons B).

Le cliché de diffraction de la phase de Laves cubique d'YCo₂ est observé dans les deux séries d'échantillons après recuit. Les intensités des pics observés sont en accord avec les valeurs calculées pour un polycristal isotrope. Les échantillons A sont monophasiques, tandis que les échantillons B présentent des pics qui n'ont pu être identifiés avec certitude. Néanmoins, si l'on considère la stoechiométrie moyenne de l'alliage (YCo_{1.1}), on peut déduire que cette phase doit probablement être une phase plus riche en Y que YCo₂, donc magnétique ni à l'état amorphe ni à l'état cristallin. Si l'on suppose, en accord avec le diagramme de phase des alliages binaires Y-Co, qu'il s'agit d'Y₉Co₇, on obtient une fraction volumique d'YCo₂ dans la couche de 30%. Dans la suite, nous analyserons uniquement le comportement sous irradiation de la phase YCo₂ présente dans ces échantillons.

Les échantillons ont été irradiés avec des ions de ²³⁸U, accélérés à une énergie de 0.88 GeV, sur la ligne SME du GANIL. Trois fluences (Φ) ont été choisies: 10¹² ions/cm² (échantillons A1 et B1), 5.10¹² ions/cm² (échantillons A2 et B2) et 1.8.10¹³ ions/cm² (échantillons A3 et B3).

La figure 2.5 montre une vue détaillée des pics (311) et (222) pour les deux séries d'échantillons mesurées en incidence symétrique conventionnelle θ -2 θ . En augmentant la fluence, on observe que l'intensité des pics diminue, tandis que leur largeur à mi-hauteur augmente. Cet effet est l'évidence d'une perte de cristallinité progressive sous irradiation et il peut être attribué à la stabilisation de régions amorphes dans la matrice cristalline.

La fraction volumique de matériau amorphisé dans les échantillons irradiés en fonction de la fluence d'irradiation (définie comme $p_a(\Phi) = v_a/V_t$ où v_a est le volume amorphisé et V_t est le volume totale de la couche) a été déterminée par deux méthodes:

- 1) par diffraction des rayons X en faisant le rapport entre les intensités intégrées des pics de la phase de Laves YCo_2 mesurées avant et après irradiation ($p_a(\Phi)$);
- 2) par mesures magnétiques, en faisant le rapport entre l'aimantation à saturation induite par l'irradiation et l'aimantation à saturation de l'échantillon amorphe ($p'(\Phi) = M_s(\Phi)/M_s(a)$) (fig.2.6).

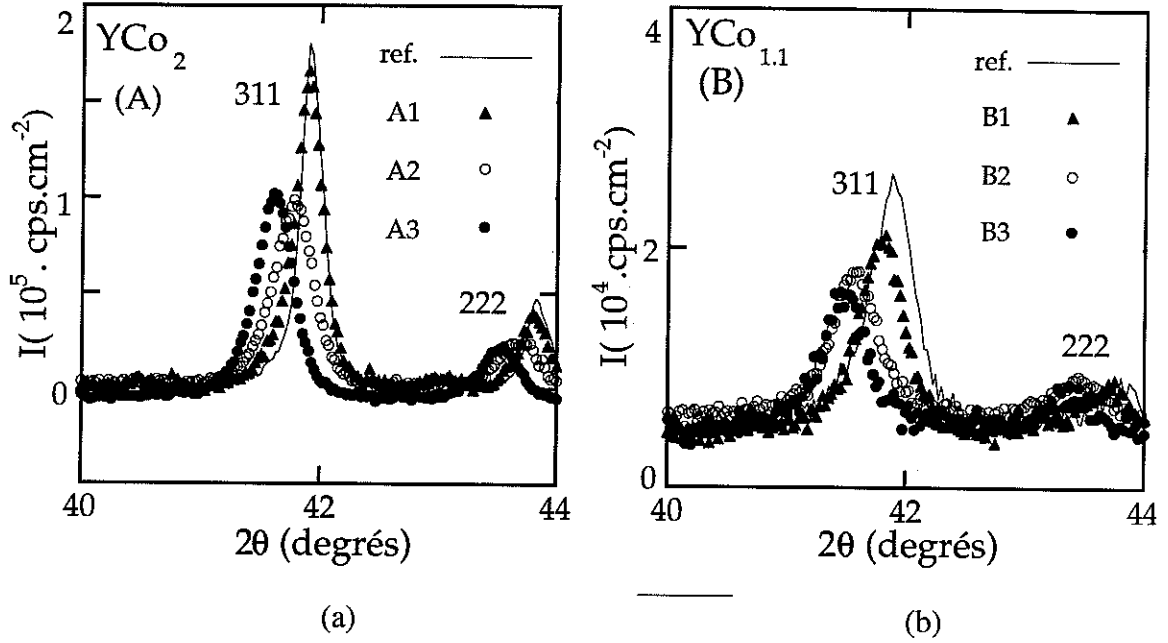


Fig. 2.5 (a) Réflexions 311 et 222 dans les échantillons A0, A1, A2, A3;
(b) réflexions 311 et 222 dans les échantillons B0, B1, B2, B3.

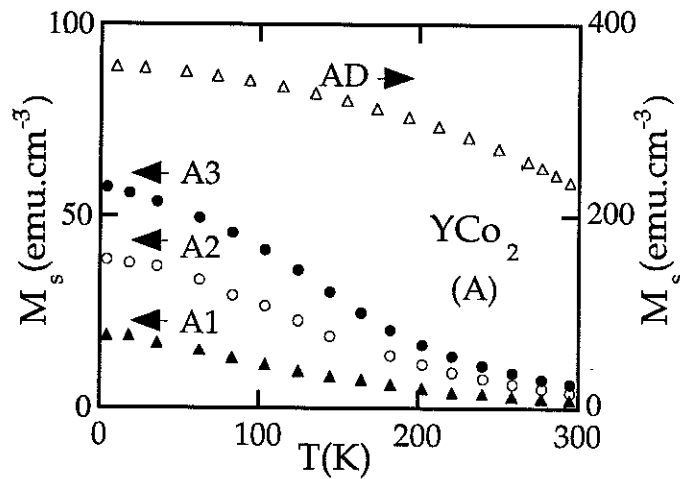


Fig.2.6 Variation thermique de l'aimantation à saturation pour les échantillons irradiés A1, A2, A3 et pour le même échantillon entièrement amorphe.

Les résultats ainsi obtenus pour les série d' échantillons A et B sont montrés dans la fig. 2.8. Un très bon accord est observé entre les valeurs de $p_a(\Phi)$ et de $p'_a(\Phi)$. Les échantillons B étant biphasiques, $p'_a(\Phi)$ doit être divisé par la fraction volumique α d' YCo_2 dans l'échantillon. L'accord entre $p_a(\Phi)$ et $p'_a(\Phi)$ est obtenu pour $\alpha = 1/4$. L'accord avec la valeur de 30% estimée en considérant que la phase additionnelle soit Y_9Co_7 est raisonnable.

Dans les deux séries d'échantillons, la fraction amorphisée sature, en fonction de la fluence, bien avant l'amorphisation totale de l'échantillon (fig.2.8). Si l'on suppose que les régions amorphes sont associées aux trajectoires des ions, cela peut être expliqué par l'existence d'un volume d'exclusion autour de chaque trace, qui définit une distance minimale entre traces premières voisines et empêche le recouvrement entre deux traces différentes (fig.2.7).

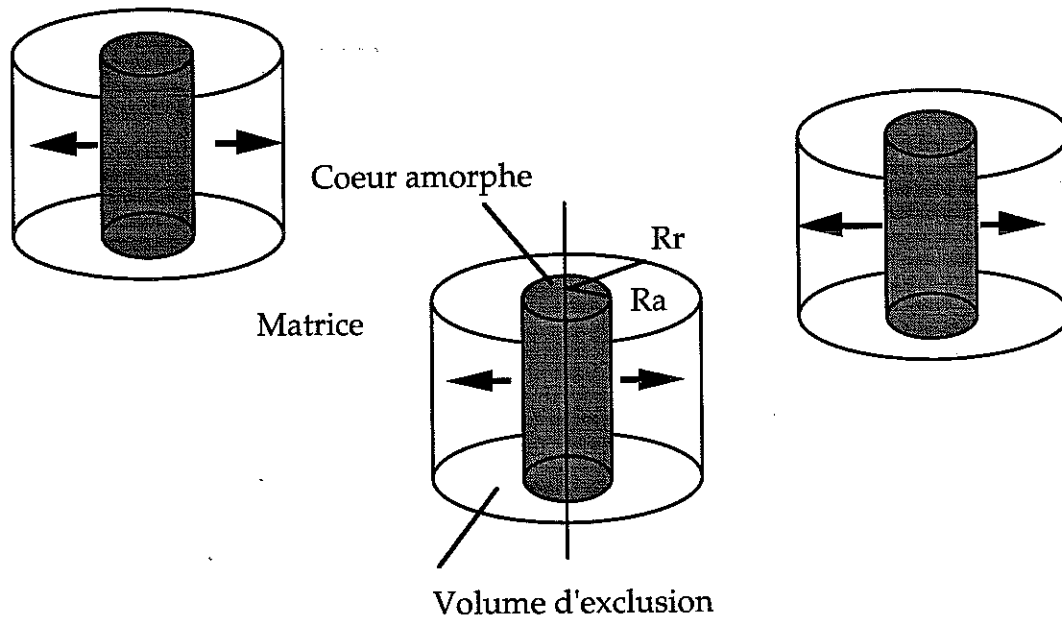


Fig. 2.7 Traces latentes et volumes d'exclusion.

Cette hypothèse se traduit physiquement en supposant qu'un ion incident a deux effets sur la matrice cristalline:

- 1) la création d'une trace amorphe,
- 2) la recristallisation de toute trace préexistante dans le volume d'exclusion.

La cinétique de création des traces peut alors être décrite par le système d'équations:

$$\frac{dp_a(\Phi)}{d\Phi} = \sigma_a[1 - p_a(\Phi)] - \sigma_r p_a(\Phi) \quad (2.10.a)$$

$$\frac{dp_r(\Phi)}{d\Phi} = \sigma_r[1 - p_r(\Phi)] - \sigma_a p_r(\Phi) \quad (2.10.b)$$

avec la condition de normalisation $p_a(\Phi) + p_r(\Phi) + p_c(\Phi) = 1$ où $p_a(\Phi)$ est la fraction amorphisée, $p_r(\Phi)$ la fraction recristallisée et $p_c(\Phi)$ la fraction cristalline vierge; σ_a et σ_r sont respectivement la section efficace d'amorphisation et la section efficace de recristallisation. Les solutions du système (2.10) sont:

$$p_a(\Phi) = \frac{\sigma_a}{\sigma_a + \sigma_r} (1 - e^{-(\sigma_a + \sigma_r)\Phi}) \quad (2.11.a)$$

$$p_r(\Phi) = \frac{\sigma_r}{\sigma_a + \sigma_r} (1 - e^{-(\sigma_a + \sigma_r)\Phi}) \quad (2.11.b)$$

Les équations (2.11.a) et (2.11.b), avec σ_a et σ_r comme paramètres libres, ont été utilisées pour fitter les valeurs de $p_a(\Phi)$ déterminées expérimentalement (fig.2.8 et tableau 2.2 pour les résultats).

Une indication sur la valeur du diamètre de traces peut être obtenue à partir des valeurs de σ_a et σ_r en faisant l'hypothèse que les traces latentes sont continues et régulières tout au long de l'épaisseur de la couche. Cette approximation est raisonnable si l'on tient compte du fait que la direction de facile aimantation est perpendiculaire au plan de la couche dans les échantillons A1 et B1 (voir Chapitre 3).

$$\sigma_a = \frac{\pi D_1^2}{4} \quad (2.12)$$

$$\sigma_r = \frac{\pi(D_2^2 - D_1^2)}{4}$$

où D_1 et D_2 sont respectivement les diamètres des traces latentes et des couronnes d'exclusion.

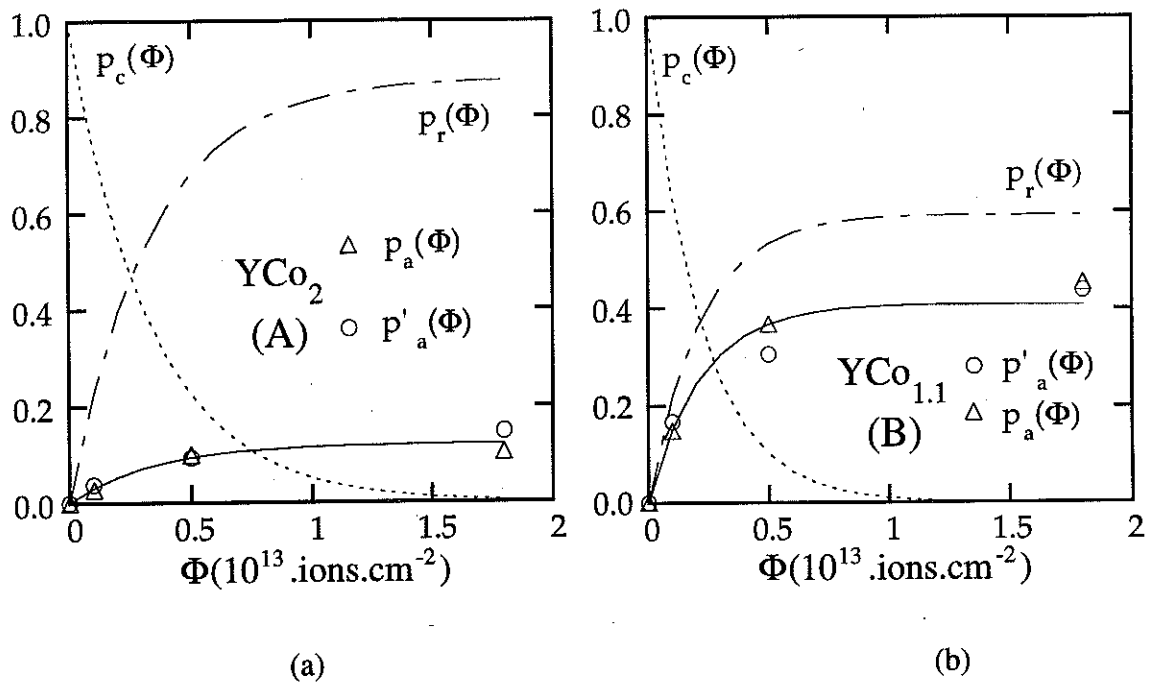


Fig.2.8 Trait continu: Meilleur ajustement de $p_a(\Phi)$ (cercles) et de $p'_a(\Phi)$ (triangles) avec l'Eq (2.10.a); trait discontinu: fraction volumique recristallisée calculée avec l'Eq. (2.10.b) en utilisant les valeurs σ_a et σ_r déduites du meilleur ajustement des valeurs de $p_a(\Phi)$ et de $p'_a(\Phi)$; trait pointillé: fraction volumique de matrice cristalline vierge calculée avec la condition de normalisation du système (2.10).

	$\sigma_a(\text{cm}^2)$	$\sigma_r(\text{cm}^2)$	$D_1(\text{\AA})$	$D_2(\text{\AA})$	$L(\text{\AA})$
YCo ₂ (A)	0.36.10 ⁻¹³ (0.14.10 ⁻¹⁴)	2.62.10 ⁻¹³ (0.17.10 ⁻¹³)	21 (0.5)	61 (1.5)	310
YCo _{1.1} (B)	1.87.10 ⁻¹³ (0.9.10 ⁻¹⁴)	2.72.10 ⁻¹³ (0.23.10 ⁻¹³)	49 (1)	76 (4)	190

Tab. 2.2 Sections efficaces d'amorphisation et de recristallisation et diamètres estimés correspondants (déduits avec Eq. 2.12) obtenus avec le meilleur ajustement des valeurs de $p_a(\Phi)$ et $p'_a(\Phi)$ de la Fig. 2.7 (les erreurs calculées pour chaque paramètre sont données entre parenthèses).
L: taille longitudinale (perpendiculaire à la surface de l'échantillon) des cristallites estimée pour les échantillons non irradiés avec la formule de Debye-Scherrer.

La raison pour laquelle les sections efficaces d'amorphisation et de recristallisation sont différentes dans les deux séries d'échantillons n'a pu être établie avec certitude. Il semble tout de même que la microstructure puisse jouer un rôle majeur. Dans les échantillons B, la taille de grains, estimée par la formule de Debye-Scherrer, est bien inférieure à celle des échantillons A (tableau 2.2). L'importance de la taille des grains ou de l'épaisseur des couches minces pour déterminer la sensibilité à l'irradiation des certains matériaux a été déjà mise expérimentalement en évidence [5].

Tous les pics de la phase YCo_2 des échantillons irradiés subissent un déplacement vers les petits angles de Bragg. Ce déplacement n'est pas observé sur les pics de la couche protectrice de Ta que nous avons pris comme référence. Dans le cas d'un polycristal isotrope, les plans diffractants dans une mesure θ - 2θ sont parallèles à la surface de l'échantillon. Les déplacements de pics observés correspondent donc à une dilatation du paramètre de maille pour les plans orientés parallèlement à la surface de la couche.

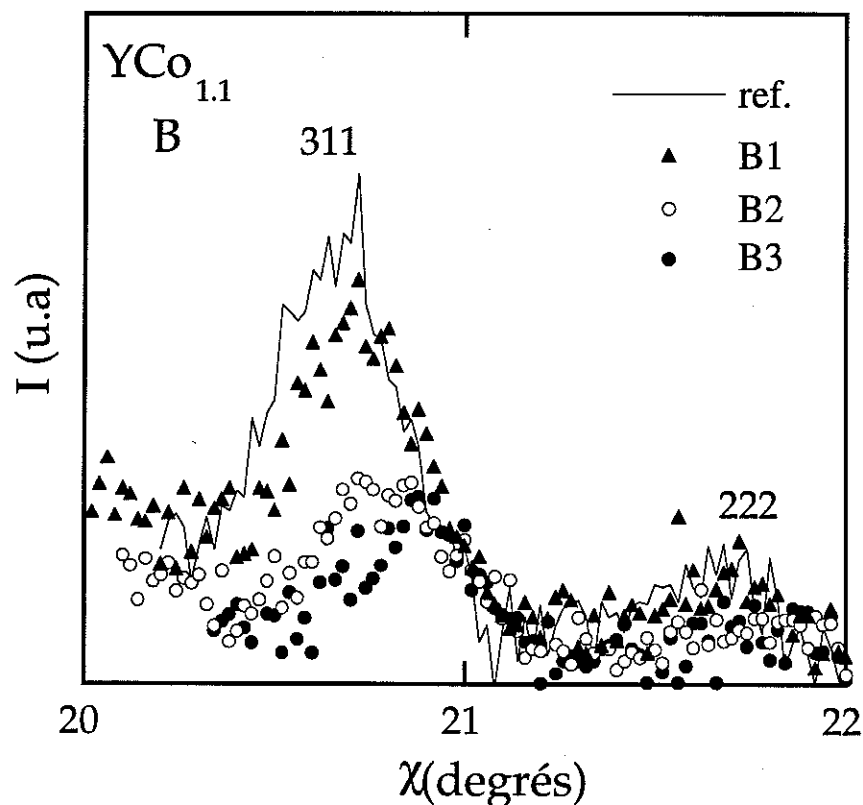


Fig. 2.9 Réflexions (311) et (222) des échantillons B en incidence rasante pour les échantillons B0, B1, B2, B3.

Afin de connaître l'évolution du paramètre de maille dans la direction perpendiculaire à la couche, des mesures de diffraction X en incidence rasante sur les deux séries d'échantillons ont été effectuées, puisque en incidence rasante les plans diffractants sont perpendiculaires à la surface. En raison de l'épaisseur trop importante de la couche

protectrice de Ta, aucun résultat propre n'a pu être obtenu pour les échantillons A. La fig.2.9 montre les résultats obtenus pour les réflexions 311 et 222 dans les échantillons B. Le déplacement des pics a lieu cette fois vers les grands angles de Bragg ce qui correspond donc à une contraction du paramètre de maille dans la direction perpendiculaire au plan de la couche. La fig. 2.10 montre la variation relative de la valeur absolue du paramètre de maille en fonction de la fraction volumique d' YCo_2 amorphisée pendant l'irradiation déterminée pour les deux séries d'échantillons. La variation du paramètre de maille augmente de façon linéaire avec la quantité d'amorphe. Cet effet peut être donc attribué aux contraintes que les régions amorphes induites par l'irradiation, de plus faible densité par rapport à la matrice cristalline, développent dans le plan de l'échantillon.

Une pente différente en fonction de la fraction amorphisée d' YCo_2 est observée pour les échantillons A et pour les échantillons B. Néanmoins, la présence d'une phase additionnelle dans ces derniers empêche de faire une comparaison directe. Pour pouvoir effectuer une comparaison, il faudrait étudier le comportement sous irradiation de l'autre phase présente dans les échantillons B, afin d'évaluer son degré d'amorphisation.

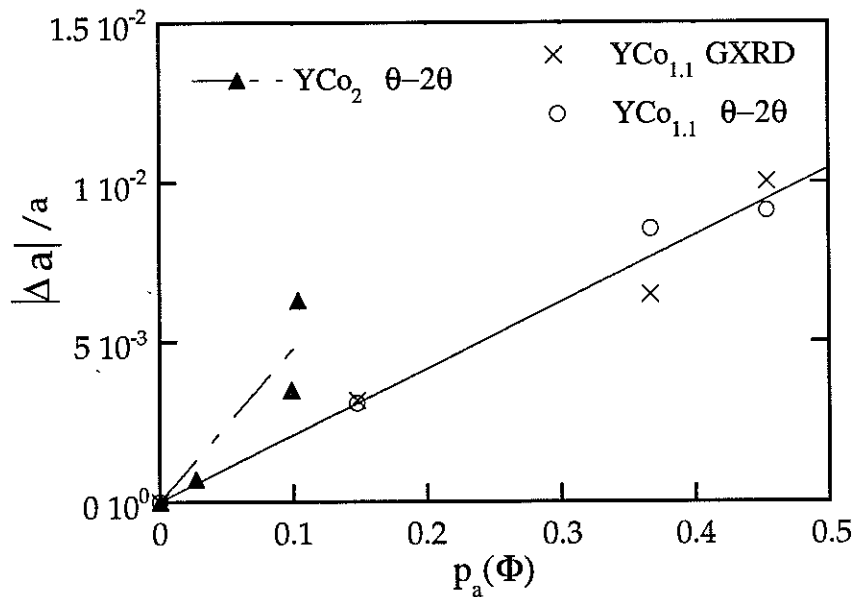


Fig. 2.10 Variation relative du paramètre de maille mesurée pour la réflexion 311 d' YCo_2 en fonction de la fraction volumique amorphisée. Les valeurs sont données pour les échantillons A et B en θ -2 θ et pour les échantillons B en incidence rasante. Pour les échantillons B, la fraction amorphisée est normalisée au volume de la phase YCo_2 présente dans les échantillons, puisque elle est déduite à partir de la réduction de l'intensité des pics d' YCo_2 .

La variation relative du volume de la maille élémentaire associée à la déformation $\Delta a/a$ peut être calculée en considérant uniquement des contraintes uniformes dans le plan on trouve [45]:

$$\frac{\Delta V}{V} = \frac{2(1-2\nu)}{E} \tau \quad (2.13)$$

où ν et E sont respectivement le coefficient de Poisson et le module d'Young et $\tau = \tau_{xx} = \tau_{yy}$ la contrainte, supposée uniforme, dans le plan. Si l'on considère que $\tau < 0$, en raison du fait que les traces génèrent une contrainte compressive, et que une valeur typique de ν pour les métaux est 0.3, la variation du volume de la cellule unitaire est négative. Ce résultat est important car il donne un argument pour exclure la possibilité d'une stabilisation d'un moment magnétique dans la matrice cristalline résiduelle d' YCo_2 , comme observé dans l'alliage $\text{Y}(\text{Co}_{1-x}\text{Al}_x)_2$ pour laquelle de petites dilatations du volume (1%) de la maille élémentaire, dus à la position interstitielle des atomes d'Al, précipitent un faible ferromagnétisme [46].

Par ailleurs, le bon accord observé entre les valeurs de $p_a(\Phi)$ et $p'_a(\Phi)$ est l'évidence que l'éventuel ferromagnétisme de la matrice cristalline peut être négligé par rapport à celui de traces amorphes.

2.2.3.2 $\text{Ce}(\text{Co}_{1-x}\text{}^{57}\text{Fe}_x)_2$

Pour préparer, par pulvérisation cathodique, une série d'échantillons avec la composition suivante:

$\text{Si}(100)/\text{Ce}(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)_2(10000 \text{ \AA})/\text{Cr}(400 \text{ \AA})$ (échantillons C)

avec $x = 0.03$, nous avons utilisé une cible composite de CeCo_2 et de ^{57}Fe pur. Le rapport entre les surfaces exposées à la pulvérisation était proportionnel au rapport désiré de fractions atomiques de Co et de Fe. Les clichés de diffraction X montrent que la cristallisation de la phase de Laves cubique CeCo_2 a été obtenue directement pendant le dépôt. En raison de la présence de pics provenant du substrat de Si, seulement 4 raies de CeCo_2 sont observées. Les intensités de pics observées sont en accord avec les valeurs calculées pour un polycristal isotrope. Les échantillons étaient monophasiques. L'analyse du spectre de fluorescence X n'a pas permis de mettre le fer en évidence, ce qui pourrait indiquer qu'il est présent en très faible quantité ($x \leq 0.05$).

Afin de connaître les éventuels effets du fer sur les propriétés de nos échantillons, nous avons préparé un polycristal de CeCo_2 massif dans le four à induction, et nous l'avons utilisé comme référence. La variation thermique de l'aimantation observée pour l'échantillon massif est proportionnelle, avec bonne approximation, à $1/T$, ce qui peut

être attribué au comportement paramagnétique de l'alliage CeCo_2 . En revanche, les échantillons C en couches minces sont ferromagnétiques (fig.2.13), avec un moment magnétique à saturation de $0.04 \mu\text{B/u.f.}$ et une température de Curie d'environ 30 K. Ces valeurs sont en bon accord avec ce que Longworth et Harris obtiennent dans des polycristaux massifs $\text{Ce}(\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x})_2$ pour des fraction atomiques de fer $x \leq 0.1$ [42].

Les échantillons ont été irradiés avec des ions de Pb de haute énergie (5 GeV) au GANIL. Les fluences choisies sont: 10^{12} ions/cm² (C1), $5 \cdot 10^{12}$ ions/cm² (C2) et 10^{13} ions/cm² (C3).

La fig. 2.11 montre une vue détaillée des réflexions 311 et 222 pour les échantillons irradiés et pour l'échantillon non irradié de référence (C0). Un dédoublement de la réflexion 311 est observé aux petits angles après irradiation, dont l'intensité semble dépendre de la fluence. Cet effet n'a pu être analysé en détail.

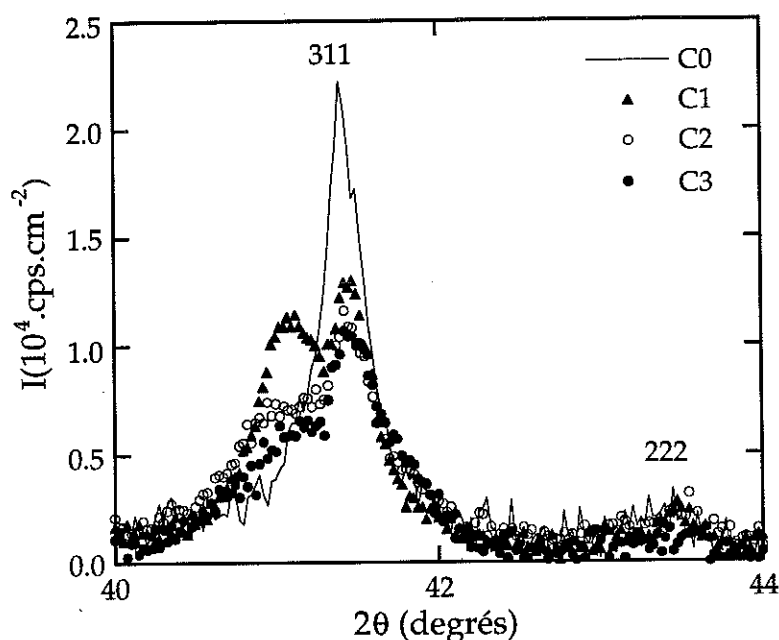


Fig. 2.11 Réflexions 311 et 222 pour les échantillons C0, C1, C2, C3 (temps de comptage: 50 s/point).

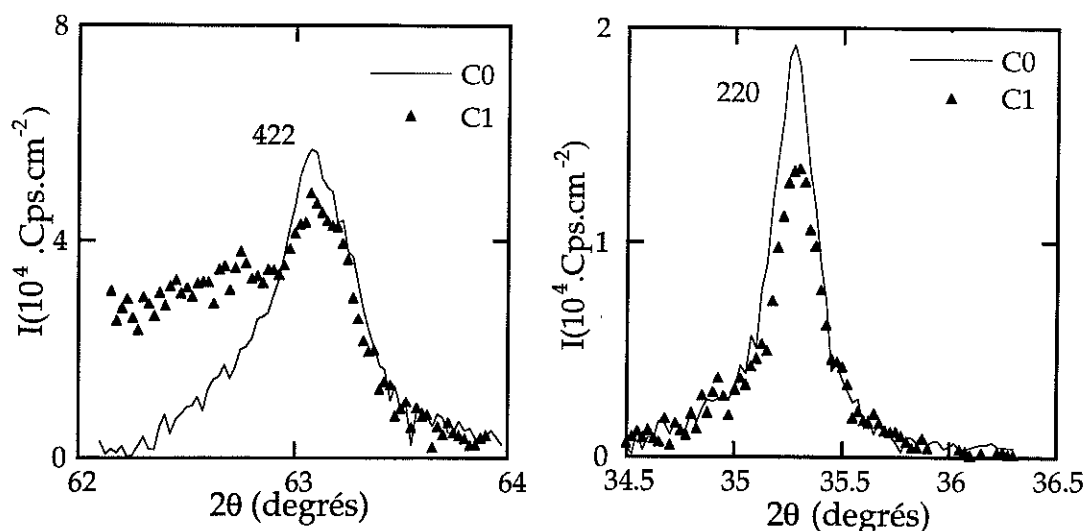


Fig. 2.12 (a) Vue détaillée de la réflexion 422 pour les échantillons non irradié (C0) et irradié à 10^{12} ions.cm $^{-2}$ C1 (en raison de la faiblesse de la réflexion, un temps de comptage de 500 sec par point a été utilisé; (b) vue détaillée de la réflexion 220 pour les échantillons C0 et C1 (temps de comptage: 50 s/point).

Un comportement similaire est observé sur la raie 422 (fig. 2.12a). Par contre, on observe uniquement une réduction de l'intensité pour la réflexion 220 (fig.2.12b). L'intensité de la seule autre raie observée dans cet échantillon, la 222, est trop faible pour effectuer des mesures propres.

La fig. 2.13 montre la variation thermique de l'aimantation à saturation en fonction de la température pour les échantillons irradiés comparée avec celle de l'échantillon C0 non irradié. Aucune différence remarquable n'est observée dans les moments magnétiques à basse température et les températures d'ordre entre les échantillons irradiés et l'échantillon non irradié. Des éventuelles régions amorphes précipitées par irradiation, auraient provoqué une augmentation importante de la température d'ordre et du moment magnétique à saturation.

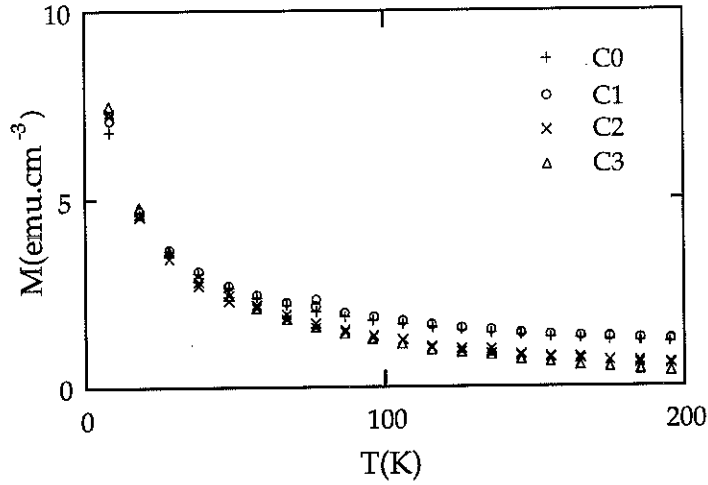


Fig. 2.13 Variation thermique de l'aimantation à saturation pour les échantillons C0, C1, C2, C3 et pour l'échantillon irradié à $10^{12} \text{ ions.cm}^{-2}$ et recuit à 250°C pendant une heure (C1*).

Les modifications des clichés des rayons X observées dans les échantillons irradiés sont associées uniquement à la stabilisation d'une différente phase cristallographique par l'irradiation.

Pour tester cette hypothèse, nous avons effectué un recuit à 250°C pendant une heure sur l'échantillon C1. Le recuit provoque la disparition des pics additionnels et une diminution importante du paramètre de maille (fig. 2.14).

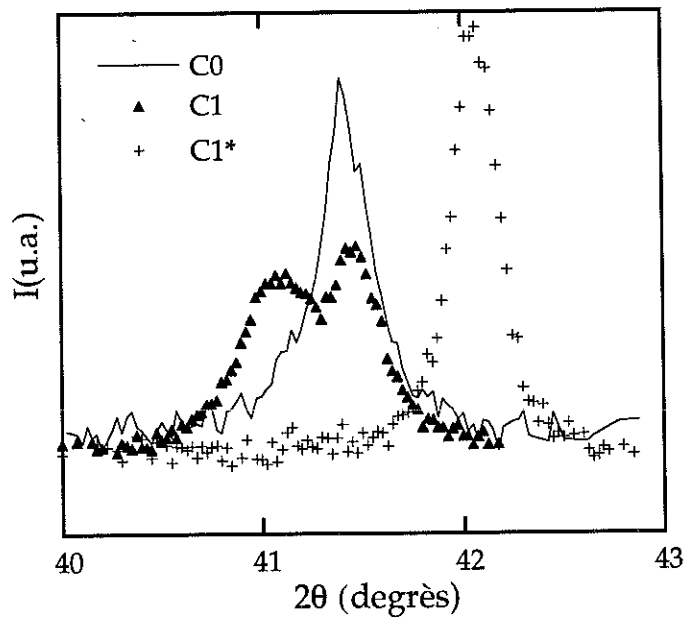


Fig. 2.14 Vue détaillée de la réflexion 311 dans les échantillons irradiés à $10^{12} \text{ ions.cm}^{-2}$ (C1), à $10^{12} \text{ ions.cm}^{-2}$ et recuit pendant 1 heure à 250°C (C1*) et pour l'échantillon non irradié de référence (C0).

Pour référence, nous avons ensuite déterminé le paramètre de maille de CeCo_2 massif par diffraction de rayons X de la poudre. Le tableau 2.3 résume la variation de paramètre de maille mesurée sur les différents échantillons dans les mêmes conditions expérimentales.

Echantillon	a(Å)
CeCo_2 (Poudre)	7.141
C0	7.207
C1	7.207
	7.293
C1*	7.114

Tab. 2.3 Valeurs du paramètre de maille pour une poudre isotrope de CeCo_2 , pour la couche C0 cristallisée in-situ, pour la couche irradiée à 10^{12} ions.cm⁻² et pour la couche C1 irradiée à 10^{12} et ensuite recuite à 250°C. La valeur pour C1 est aussi évalué pour le pic qui apparaît après irradiation aux petits angles.*

La valeur du paramètre de maille de C0 est bien supérieure à celle de la poudre. Cet effet ne peut être dû à la présence de fer dans la couche. En fait, la différence observée dans les valeurs des paramètres de maille, correspondrait à une fraction atomique de fer d'environ $x = 0.3$ [42]. Une telle composition impliquerait alors une T_c de 100 K et un moment magnétique de $0.49 \mu_B/\text{f.u.}$ ($T_c=30$ K et $\mu_s= 0.04 \mu_B$ pour la couche). Le désaccord observé pourrait être dû à des contraintes présentes dans la couche cristallisée directement pendant le dépôt, dont l'origine reste incertaine. Cette hypothèse est confirmée par la relaxation du paramètre de maille que l'on observe dans l'échantillon recuit à 250°C après irradiation. La valeur du paramètre de maille mesurée est en accord, dans l'erreur expérimentale, avec celui que nous avons observé dans CeCo_2 pur à l'état massif.

L'ensemble des résultats de diffraction X sur les échantillons irradiés et sur l'échantillon recuit à 250°C, suggère qu'une phase cristalline metastable soit stabilisée par l'irradiation. L'identification de la structure de cette phase n'a pu être accomplie, car seuls deux pics sont observés. La transformation de phase observée pourrait être due soit à une distorsion tetragonale (ou orthorombique) de la maille cubique originale, soit à la stabilisation d'une autre phase cubique avec un paramètre de maille légèrement plus important. Dans tous les cas cependant il reste à comprendre pourquoi les dédoublements sont clairement observés pour les réflexions 311 et 422 et non pour la réflexion 220.

Il est possible que les déformations observées dans la maille originale soient dues à des contraintes induites par irradiation. Ces contraintes pourraient être reliées à un

changement du volume atomique du cérium. Le cérium atomique présente les états de valence +3 et +4, qui correspondent à des valeurs différents du rayon atomique 1.847 Å ($z=+3$) et 1.672 Å ($z=+4$). L'état $z=+3$ est considéré comme un état excité par rapport à l'état $z=+4$ [37].

Dans les alliages binaires Ce-Co, la valence du cérium a un caractère fortement intermédiaire [37]. Cela se traduit par l'anomalie du paramètre de maille du CeCo_2 par rapport aux autres composés de la série RCo_2 , où l'on observe que a décroît de façon monotone avec le rayon atomique de la terre rare. L'énergie déposée par le passage des ions lourds pourrait exciter la configuration électronique d'une fraction des atomes de cérium présents dans la couche dans un état métastable. L'état de valence des atomes de cérium pourrait changer et tendre vers la valeur +3 ce qui impliquerait une augmentation du volume atomique. Les contraintes ainsi développées pourraient provoquer une déformation du paramètre de maille.

Lorsque la configuration électronique métastable est désexcitée après le recuit, en raison de l'apport d'énergie thermique, la valence des atomes de cérium pourrait tendre vers la valeur +4, ce qui correspondrait à une diminution du volume atomique. Les contraintes seraient alors relâchées et le paramètre de maille serait proche des valeurs habituelles.

Il faut souligner que les données à notre disposition sont largement insuffisantes pour prouver un tel phénomène, ce qui nécessiterait encore beaucoup de travail expérimental et d'interprétation. Le but de notre discussion était uniquement de montrer qu'ils existent de raisons pour poursuivre l'étude du système CeCo_2 irradié.

2.2.3.3 TmCo₂

Une série d'échantillons a été élaborée avec la structure suivante:

$$\text{Si}(100)/\text{Ta}(200 \text{ \AA})/\text{TmCo}_2(10000 \text{ \AA})/\text{Ta}(1000 \text{ \AA})$$

Après un traitement thermique d'1 h à 500° C, la cristallisation de la phase de Laves cubique TmCo₂ a été observée par diffraction de RX. Le spectre est en accord avec celui calculé pour un polycristal isotrope monophasique de TmCo₂.

Une température de compensation de 110 K et une température d'ordre magnétique de 350 K environ sont observés dans les échantillons amorphes. Aucune température de compensation n'est observée dans les échantillons recuits. La température d'ordre est de 40 K.

Trois échantillons ont été irradiés avec des ions ²⁰⁸Pb de 5 GeV d'énergie aux fluences de 10¹² ions/cm² (échantillon D1), 5.10¹² ions.cm⁻² (échantillon D2) et 10¹³ ions.cm⁻² (échantillon D3). La fig. 2.15 montre une vue détaillée des pics 311 et 222 pour les échantillons irradiés et pour l'échantillon non irradié de référence (échantillon D0). Aucune différence significative n'est observée.

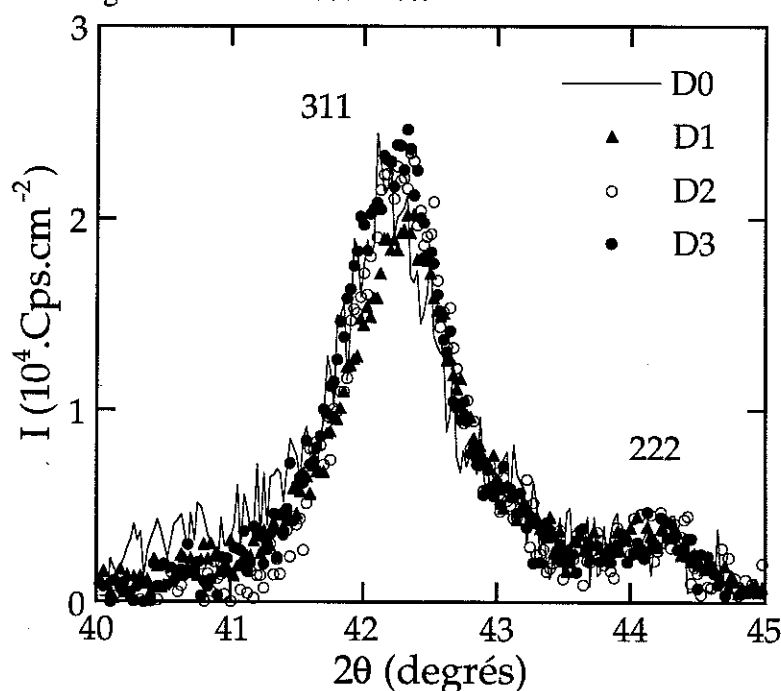


Fig.2.15 Vue détaillée de réflexions 311 et 222 pour les échantillons irradiés aux fluences 10¹² ions/cm² (D1), 5.10¹² ions/cm² (D2), 10¹³ ions/cm² (D3) et pour l'échantillon non irradié de référence (D0).

Les échantillons ont été aussi caractérisés du point de vue magnétique. Aucune variation remarquable dans les températures d'ordre n'a été mise en évidence. L'ensemble de ces résultats montre que le composé TmCo₂ n'a pas été endommagé de façon significative par l'irradiation.

2.2.3.4 YCo₃

Une série de couches amorphes à été préparée avec la structure:

$$\text{Mo/ Mo(400 \AA)/ YCo}_3 \text{ (20000 \AA)/ Mo (1500 \AA)}$$

La cristallisation de la phase YCo₃ est observée par diffraction des rayons X. Le spectre observé est en accord avec le spectre calculé pour un polycristal isotrope.

Les échantillons ont été ensuite irradiés avec du ²⁰⁸Pb de 5 GeV aux fluences de 10¹² ions.cm⁻² (échantillon E1), 5.10¹² ions.cm⁻² (échantillon E2) et 10¹³ ions.cm⁻² (échantillon E3).

La fig. 2.16 montre une vue détaillée des pics 114 et 201 en fonction de la fluence. L'intensité totale des pics diminue progressivement avec la fluence, en accord avec la stabilisation sous irradiation de régions amorphes dans la matrice cristalline.

Seuls deux échantillons (E1 et E3) ont pu être analysés avec précision pour déterminer $p_a(\Phi)$, car l'échantillon E2, bien qu'obtenu dans des conditions expérimentales identiques, était texturé différemment. La fraction amorphisée a été déterminée en faisant le rapport entre la somme des intensités intégrées des réflexions 201 et 114 déterminées dans les échantillons irradiés et dans l'échantillon non irradié de référence. Les valeurs obtenues sont reportées dans le tableau 2.4. La détermination de $p'(\Phi)$ n'a pu être effectuée car les températures d'ordre de la phase amorphe et de la phase cristallisée sont supérieures à l'ambiante.

Ech.	$p_a(\Phi)$
E1	0.04
E3	0.15

Tab.2.4 Fraction volumique amorphisée $p_a(\Phi)$ déterminée par diffraction des rayons X pour les échantillons E1 (10¹² ions/cm²) et E3 (10¹³ ions/cm³) d'YCo₃.

La similitude des valeurs de $p_a(\Phi)$ obtenues dans ce cas avec celles obtenues dans YCo₂ indique que la valeur du diamètre de traces doit être du même ordre de grandeur. L'estimation de la valeur du diamètre n'est peut être effectuée par ajustement des valeurs de $p_a(\Phi)$ en raison du nombre trop petit de points expérimentaux.

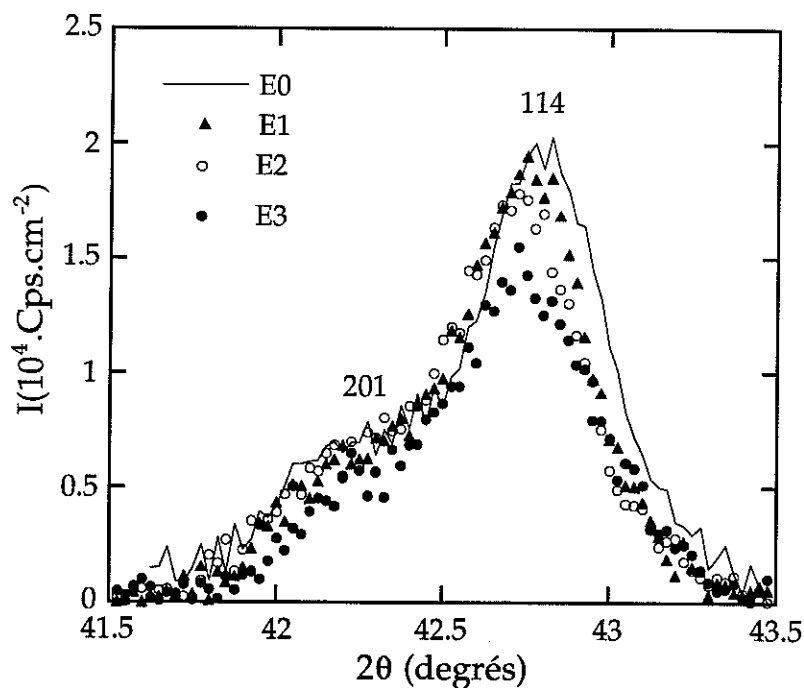


Fig.2.16 Vue détaillée des réflexions 201 et 114 pour les échantillons irradiés à $10^{12} \text{ ions/cm}^2$ (E1), à $5.10^{12} \text{ ions.cm}^2$ (E2), à $10^{13} \text{ ions/cm}^2$ (E3) et pour l'échantillon non irradié de référence (E0).

A la différence d' YCo_2 , dans les échantillons d' YCo_3 irradiés aucun clair déplacement des pics vers les petits angles n'est associé à la diminution d'intensité. La raison pour laquelle l'état de contraintes serait différent n'a pu être éclaircie. La morphologie de traces pourrait être différente, en raison du fait que le pouvoir d'arrêt électronique pour le Pb en haute énergie est réduit du 20% environ par rapport à l'U en moyenne énergie.

2.2.3.5 $\text{Ce}(\text{Co}_{1-x}\text{}^{57}\text{Fe}_x)_3$

Comme dans 2.3.2, une cible composite a été utilisée pour préparer une série d'échantillons avec la structure:

$$\text{Si}(100)/\text{Mo}(500 \text{ \AA})/\text{Ce}(\text{Co}_{0.97}\text{}^{57}\text{Fe}_{0.03})_3 (3700 \text{ \AA})/\text{Mo} (200 \text{ \AA})$$

Les échantillons ont ensuite été recuits pendant 1 heure sous vide secondaire à 600° C. La cristallisation d'une phase hexagonale est observée par diffraction de rayons X. Une poudre de CeCo_3 , obtenue à partir d'un échantillon polycristallin massif qui nous a été fourni par R. Ballou, a été mesurée pour référence. Un bon accord entre les deux clichés de diffraction est observé.

Comme dans le cas des échantillons $\text{Ce}(\text{}^{57}\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x})_2$, l'analyse du rayonnement X n'a pas permis de mettre du fer en évidence dans nos couches, ce qui indique qu'il est présent en très faible quantité. Cependant, la présence de Fe dans nos couches a été mise en évidence par mesures magnétiques: à 4.2 K, un moment magnétique à saturation de 0.24 $\mu_B/\text{u.f.}$ est observé. La température d'ordre est de 100 K, alors dans le cas du CeCo_3 pur à l'état massif, Lemaire et al. observent un moment magnétique à saturation de 0.2 $\mu_B/\text{u.f.}$ et une température d'ordre de 78 K [43].

Les échantillons ont été irradiés avec des ions de ^{208}Pb de 5 GeV d'énergie aux fluences de $10^{12} \text{ ions.cm}^{-2}$ (F1), $5.10^{12} \text{ ions.cm}^{-2}$ (F2), $10^{13} \text{ ions.cm}^{-2}$ (F3). L'endommagement a été étudié par des mesures de diffraction X et par des mesures magnétiques.

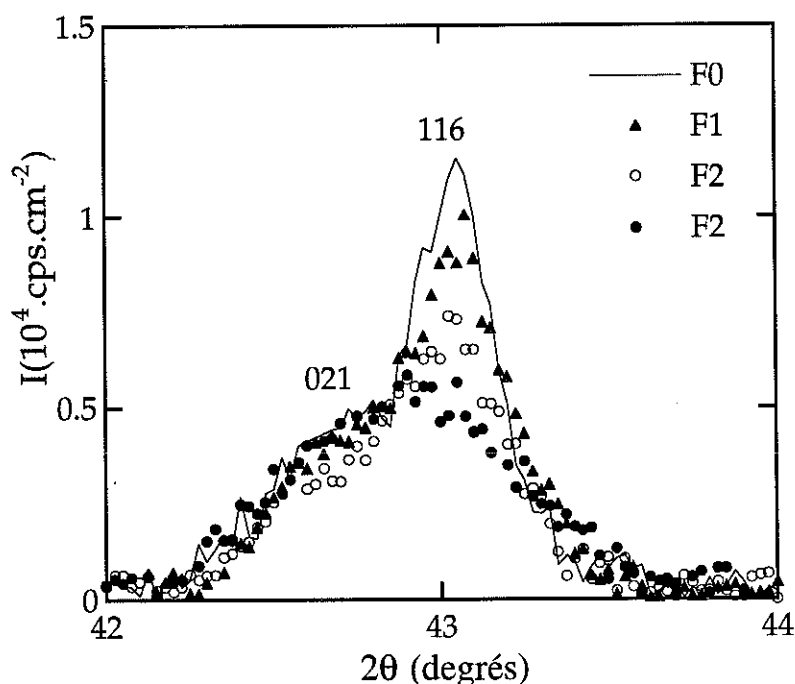


Fig.2.17 Vue détaillée des réflexions 201 et 114 pour les échantillons irradiés et pour l'échantillon non irradié de référence.

La fig. 2.17 montre une vue détaillée des pics 116 et 021 des échantillons irradiés. Les pics correspondants de l'échantillon non irradié (F0), sont aussi montrés pour référence. La somme des intensités diminue avec la fluence. Des faibles fluctuations dans les valeurs de $p_a(\Phi)$ sont observées selon la réflexion considérée. Cet effet n'a pas pu être analysé en détail. En première approximation, $p_a(\Phi)$ a été déterminée en moyennant la valeur des intégrales des pics 116, 021 et 110 mesurés avant et après irradiation. Comme pour YCo_3 , et à la différence d' YCo_2 , aucun déplacement des pics vers les petits angles de Bragg est observé.

La fig. 2.18 montre la variation thermique des aimantations à saturation pour les échantillons irradiés et pour l'échantillon non irradié, comparée avec celle de la couche toute amorphe. L'aimantation à saturation et la température d'ordre augmentent avec la fluence. Les valeurs de $p'_a(\Phi)$, déduites comme pour YCo_2 , ne peuvent être déterminées qu'à $T > T_c$ de la matrice cristalline, lorsque les seules entités magnétiques sont les traces latentes amorphes.

Les valeurs de $p_a(\Phi)$ et de $p'_a(\Phi)$ ainsi déterminées sont montrées dans la Fig. 2.19. Elles sont en bon accord.

L'équation (2.11.a) avec σ_a et σ_r comme paramètres libres a été utilisée pour faire un ajustement des valeurs de $p_a(\Phi)$ et de $p'_a(\Phi)$ déterminées expérimentalement. Les diamètres des traces et du volume d'exclusion estimés avec l'équation (2.12) sont représentés dans le tableau 2.5. Les valeurs obtenues sont comparables, quoi que légèrement supérieures, à celles obtenues pour YCo_2 .

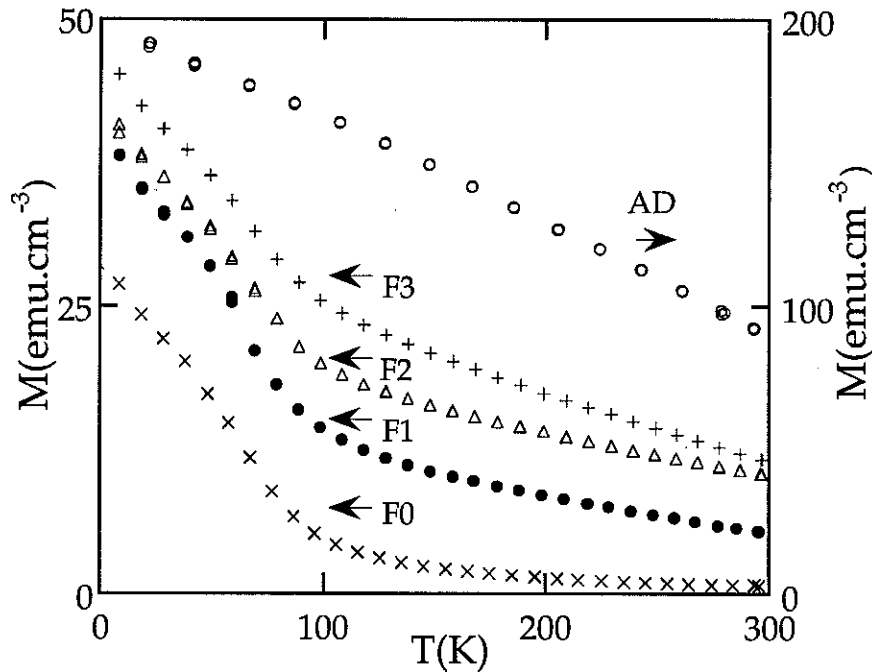


Fig.2.18 Aimantation à saturation en fonction de la température, mesurée dans un champ magnétique de 10 kOe, pour l'échantillon amorphe (AD), pour les échantillons irradiés E1,E2 et E3 et pour l'échantillon non irradié de référence E0.

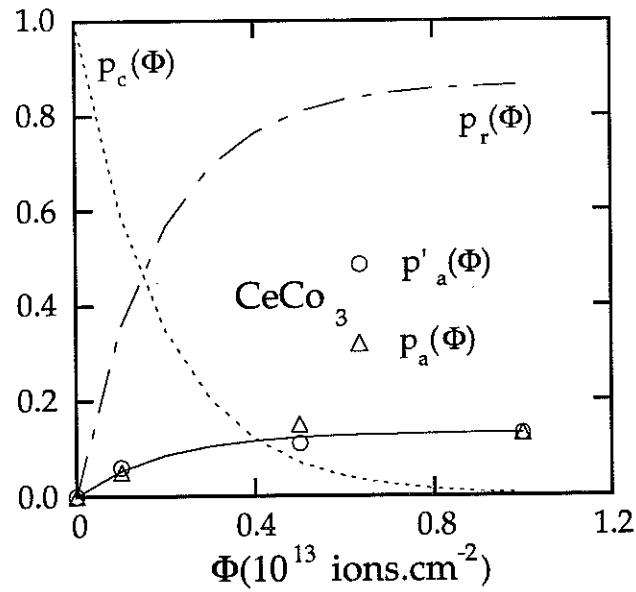


Fig.2.19 Trait continu: meilleur ajustement des valeurs de $p_a(\Phi)$ (cercles) et de $p'_a(\Phi)$ (triangles) avec l'Eq. (2.10.a); trait discontinu: fraction volumique recristallisée calculée avec l'Eq. (2.10.b) en utilisant les valeurs σ_a et σ_r déduites du meilleur ajustement des valeurs de $p_a(\Phi)$ et de $p'_a(\Phi)$; trait pointillé: fraction volumique de matrice cristalline vierge calculée avec la condition de normalisation du système (2.10).

	$\sigma_a(\text{cm}^2)$	$\sigma_r(\text{cm}^2)$	$D_1(\text{\AA})$	$D_2(\text{\AA})$
CeCo ₃	$6.99.10^{-14}$ ($6.78.10^{-15}$)	$4.60.10^{-13}$ ($6.33.10^{-14}$)	30 (3)	77 (11)

Tab. 2.5 Sections efficaces d'amorphisation et de recristallisation obtenues avec un ajustement des valeurs $p_a(\Phi)$ obtenues par des mesures magnétiques et par des mesures de rayons X. Les erreurs calculées pour chaque paramètre sont données entre parenthèse.

2.3 Le modèle de la pointe thermique appliqué aux alliages intermétalliques

Nous avons appliqué un calcul de pointe thermique aux alliages YCo_2 , CeCo_2 , YCo_3 et CeCo_3 . Le calcul n'a pu être effectué pour TmCo_2 en raison de l'inexistence des données expérimentales sur la plupart des paramètres nécessaires.

2.3.1 Principe de la simulation

Pour décrire les comportements des alliages intermétalliques sous irradiation, nous avons utilisé le modèle de la pointe thermique décrit dans le paragraphe 2.3.

La résolution du système d'équations différentielles (2.8) a été effectuée numériquement à l'aide d'un code de calcul développé au C.I.R.I.L. par Ch. Dufour et M. Toulemonde. L'algorithme de discrétisation est décrit en détail dans [35], nous nous limitons ici à en schématiser le principe.

La fig.2.20 montre le mécanisme de transfert d'énergie entre l'ion incident et la cible: i , Δr , j , et Δt sont les indices et les pas d'intégration en espace et en temps respectivement.

Le bilan du transfert d'énergie s'établit de la manière suivante, dans une géométrie cylindrique dont l'axe x est porté par la trajectoire de l'ion incident:

1) Une couche cylindrique à la distance $r_i = (i-1/2)\Delta r$ de la trajectoire de l'ion est caractérisée par sa chaleur spécifique C_k et sa conductivité thermique K_k à la température $T_k(r_i, t_j)$ ($k=e$ pour les électrons et $k=a$ pour les atomes). Son énergie varie de dE_k pendant l'intervalle de temps dt :

$$\frac{dE_k}{dt} = C_k \frac{dT_k}{dt} 2\pi r dr dx \quad (2.14)$$

Cette variation est due

i) à l'apport d'énergie par conduction à travers la surface dS_1 :

$$-K_k \left(\frac{\partial T_k}{\partial r} \right)_{r_i - dr/2} dS_1 = -K_k \left(\frac{\partial T_k}{\partial r} \right)_{r_i - dr/2} 2\pi \left(r_i - \frac{dr}{2} \right) dx \quad (2.15)$$

ii) à la perte d'énergie par conduction à travers la surface dS_2 :

$$-K_k \left(\frac{\partial T_k}{\partial r} \right)_{r_i + dr/2} dS_2 = -K_k \left(\frac{\partial T_k}{\partial r} \right)_{r_i + dr/2} 2\pi \left(r_i + \frac{dr}{2} \right) dx \quad (2.16)$$

iii) à l'énergie $A(r_i, t_j)$ déposée sur les électrons par l'ion incident . La distribution en temps et en espace de l'énergie déposée est calculée par simulation MonteCarlo [35].

iv) à la perte (pour les électrons) ou à l'apport (pour le réseau) d'énergie par couplage electron-phonon $g(T_e(r_i, t_j) - T_a(r_i, t_j))$

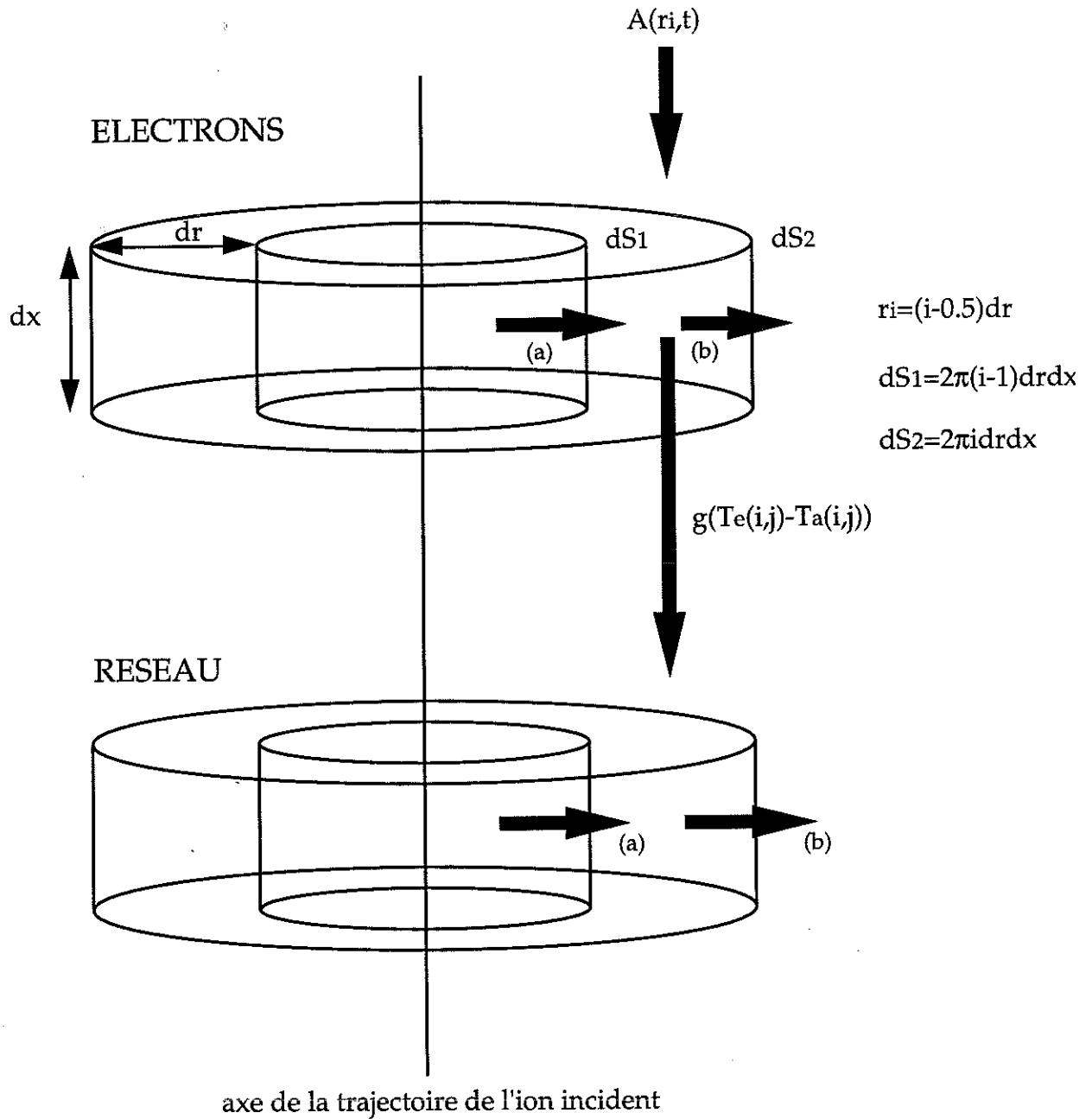


Fig.2.20 Schéma du transfert d'énergie entre les électrons et transférée au réseau. Les flèches (a) et (b) se réfèrent respectivement à l'apport et à la perte d'énergie par conduction (Eq. 2.15 et 2.16).

2.3.2 Détermination des paramètres du calcul

2.3.2.1 Le gaz d'électrons

En ce qui concerne le gaz d'électrons, nous avons utilisé les mêmes hypothèses de Ch. Dufour et M. Toulemonde [35]. Dans la suite, nous les décrivons brièvement.

Densité électronique

Les propriétés électroniques sont décrites dans le cadre du modèle de Sommerfeld des électrons libres [47]. Dans ce modèle, les électrons de valence de chaque atome vont constituer la bande de conduction du solide. La densité électronique dans la bande de conduction est calculée comme:

$$n_e = z n_a \quad (2.17)$$

où z est le nombre d'électron de valence par atome et n_a est la densité atomique. n_e est considérée constante pendant le processus de la pointe thermique.

Chaleur spécifique électronique C_e

Pour la chaleur spécifique électronique, on suppose que la dépendance linéaire en fonction de la température électronique, trouvée dans le modèle de Sommerfeld, est valide jusqu'à une température limite T_0 , au-dessus de laquelle on suppose que la loi de Dulong-Petit est alors valide; T_0 est définie par la condition de continuité de C_e :

$$T_e < T_0 : C_e = \gamma T_e; \quad \gamma = \frac{\pi^2 k_B^2 n_e}{2 \varepsilon_f} \quad (2.18)$$

$$T_e > T_0 : C_e = \frac{3 n_e k_B}{2} \quad (2.19)$$

$$\text{avec } T_0 = \frac{3 n_e k_B}{2 \gamma}.$$

où ε_f est l'énergie de Fermi et k_B la constante de Boltzmann.

Conductivité thermique K_e

Dans le modèle de Sommerfeld, la conductivité thermique est donnée par:

$$K_e(T) = \frac{1}{3} v_f^2 \tau C_e(T) = D_e C_e(T) \quad (2.20)$$

où

$$v_f = \sqrt{\frac{2\varepsilon_f}{m}}$$

est la vitesse de Fermi, τ le temps de relaxation d'un électron entre deux collisions et D_e est la diffusivité thermique des électrons. Cependant, la dépendance en température de la diffusivité n'est pas prise en compte dans le modèle de Sommerfeld, puisque l'interaction électron-électron est négligée. Dans notre cas, la quantité d'énergie élevée que l'ion incident transfère aux électrons fait augmenter leur température. Pour des températures électroniques élevées, il est raisonnable de supposer que le temps de relaxation de l'interaction électron-électron devient de plus en plus petit. On suppose alors qu'après le dépôt d'énergie effectué par l'ion, les électrons se thermalisent essentiellement par interaction électron-électron, avant de transférer leur énergie au réseau. Il s'agit alors d'exprimer la dépendance en température de la diffusivité électronique.

Dans le code de Dufour et Toulemonde, on assume comme valeur initiale ($T = 300\text{K}$) la diffusivité électronique de l'or, un des meilleurs conducteurs, dont les propriétés électroniques sont les plus proches à celles d'un gaz d'électrons libres. La valeur déduite à partir de mesures de résistivité est $D_e = 150 \text{ cm}^2/\text{sec}$ [35]. Sur la base d'un calcul qui tient compte de l'interaction électron-électron dans la théorie de l'écrantage de Thomas-Fermi [48], on suppose aussi que D_e décroît linéairement avec la température entre 300 K et une température limite, au-dessus de laquelle $D_e = D_{\text{emin}} = \text{const}$ [35]. Les valeurs typiques de D_{emin} sont comprises entre 2 et 10 cm^2/sec [33, 36]. La valeur de 2 cm^2/sec a été utilisée dans nos calculs pour tous les composés.

La variation avec la température de la conductivité thermique du gaz d'électrons est ensuite calculée avec l'Eq. (2.20).

2.3.2.2 Le réseau atomique

Dans la suite nous discutons les hypothèses que nous avons émises pour appliquer un calcul de pointe thermique à nos composés.

Conductivité thermique K_a

A notre connaissance, la conductivité thermique des composés à simuler n'a pas été mesurée pour des températures supérieures à l'ambiante.

Pour chaque composé, nous avons alors calculé la valeur de la conductivité thermique à température ambiante à partir de la valeur de la résistivité, en supposant que la loi de Wiedemann-Franz est valable. Nous avons ensuite supposé que la conductivité thermique était constante avec la température.

Nous avons pris comme valeurs de la résistivité électrique à l'ambiante pour YCo_2 , CeCo_2 , YCo_3 et CeCo_3 les valeurs données dans la littérature pour des échantillons polycristallins massifs [49, 50], car la détermination de la résistivité dans nos échantillons en couches minces est délicate en raison de la présence des couches tampons et protectrices. Cependant, les valeurs de la résistivité résiduelle pour YCo_3 et CeCo_3 reportées dans la littérature étaient anormalement élevées, probablement en raison de la mauvaise qualité des échantillons. Nous avons donc pris les valeurs de [50] après avoir ramené les valeurs de la résistivité résiduelle à celles de CeCo_2 et YCo_2 , en utilisant la règle de Mathiessen, qui est valable pour les composés de terre-rare et métaux de transition [49].

Propriétés thermodynamiques: température de fusion (T_f), chaleur latente de fusion (ΔH_f), chaleur spécifique (C_s)

T_f

Toutes les températures de fusion ont été déduites des diagrammes de phase des alliages binaires R-Co.

ΔH_f

Le chaleur latente de fusion d'un composé X_aY_b peut s'écrire:

$$\Delta H_f = \Delta H_{\text{mix}}^{\text{liq}} + a\Delta H_f(\text{X}) + b\Delta H_f(\text{Y}) - \Delta_f H \quad (2.21)$$

où le premier terme représente l'enthalpie de mélange à l'état liquide entre les deux composés, $\Delta H_f(\text{X})$ et $\Delta H_f(\text{Y})$ les chaleurs latentes de fusion de chaque constituant du composé [51] et $\Delta_f H$ [52] l'enthalpie de formation du composé.

Les enthalpies de mélange à l'état liquide pour YCo_2 et YCo_3 ont été mesurées par Sidorov et al [53]. En revanche, les enthalpies de mélange à l'état liquide pour CeCo_2

et CeCo_3 sont inconnues. Nous avons alors utilisé les valeurs de CeCu_2 et CeCu_3 mesurées par Fitzner et Kleppa [54], car les mesures effectuées sur les composés d'autres terres rares avec le cuivre, le nickel, le fer et le cobalt montrent que les valeurs les plus proches de celles des composés R-Co sont celles des composés R-Cu [52].

Cs

La variation thermique de la chaleur spécifique d' YCo_2 a été mesurée par J. Voiron [55] entre 4 K et l'ambiante. Nous n'avons pas trouvé dans la littérature des mesures analogues pour les autres composés.

Néanmoins, nous avons supposé que ces composés suivaient la loi de Dulong-Petit. Cette hypothèse paraît raisonnable lorsque l'on considère que la valeur à l'ambiante de 0.35 J/gK de [55] pour YCo_2 , est en bon accord avec la valeur de 0.38 J/gK déduite de la loi de Dulong-Petit.

Température de Debye

La seule valeur de la température de Debye qui a été déterminée expérimentalement, à partir de la variation thermique de la chaleur spécifique, est celle d' YCo_2 ($\Theta_D=300$ K) [55]. Nous avons calculé les températures de Debye des autres composés par une renormalisation basée sur le critère de Lindemann [56] à partir de la valeur expérimentale d' YCo_2 .

Ce critère, qui décrit raisonnablement bien le comportement de métaux purs, s'écrit:

$$\Theta_D \propto \sqrt{\frac{T_f n_a^{2/3}}{PA}} \quad (2.22)$$

où T_f est la température de fusion, n_a la densité atomique et PA le poids atomique. Nous avons appliqué la relation (2.22) à nos composés en substituant le poids atomique par le poids atomique moyen de chaque alliage. La validité de ce critère pour les alliages intermétalliques de métaux de transition et de terre rare a été testée pour un certain nombre de composés dont la valeur expérimentale de Θ_D était connue. Le tableau (2.6) montre les résultats obtenus en effectuant une renormalisation avec (2.22) à partir de la température de Debye d' YCo_2 . L'accord entre valeurs expérimentales et calculées est satisfaisant.

Composé	$\Theta_D(\text{exp.})$ (K)	$\Theta_D(\text{calc.})$ (K)
YNi ₃	335	337
LuAl ₂	269	272
YNi ₂	291	317
HoCo ₂	270	263
GdNi ₂	266	237

Tab.2.6 Test de la validité du critère de Lindemann pour les composés intermétalliques de terre-rare. Les valeurs expérimentales sont celles de [41]. Les erreurs expérimentales ne sont pas données dans la référence.

Constante g de couplage électron-phonon

Dans la gamme de température que nous considérons, une expression approximée de la constante de couplage g , déduite de la théorie microscopique du couplage électron-phonon, existe dans la littérature [36]. Néanmoins, elle ne permet pas d'effectuer le lien avec l'expérience. La relation suivante a été alors dérivée par Dufour et al. [36] de l'expression théorique, avec des hypothèses *ad hoc*, pour être utilisée dans les calculs de pointe thermique:

$$g \propto \frac{\Theta_D^2 n_e^2}{K_a n_a^{2/3}} \quad (2.24)$$

Pour notre calcul, nous avons d'abord considéré l'alliage YCo₂ et nous avons déterminé la constante de couplage g qui ajuste le mieux le diamètre de traces (20 Å) déterminé expérimentalement pour les échantillons A (voir 2.2.3.1). Nous avons utilisé les résultats expérimentaux pour les échantillons A, car la présence d'une phase additionnelle dans les échantillons B rajoute une complication microstructurale qu'il n'est pas possible de prendre en compte dans le cadre de ce modèle.

Les valeurs de la constante g pour les autres composés ont été déterminées une renormalisation à partir de la relation (2.24).

L'ensemble des paramètres utilisés dans le calcul sont reportés dans le tableau 2.7.

	YCo₂	YCo₃	CeCo₂	CeCo₃
$\rho(300K)$ [$\mu\Omega.cm$]	162	300	105	550
$K_a(300 K)$ [$W.K^{-1}cm^{-1}$]	$4.6.10^{-2}$	$2.4.10^{-2}$	7.10^{-2}	$1.3.10^{-2}$
n_e [cm^{-3}]	$1.47.10^{23}$	$1.57.10^{23}$	$1.42.10^{23}$	$1.52.10^{23}$
Θ_D [K]	300	332	246	273
g [$WK^{-1}.cm^3$]	$1.9.10^{12}$	$4.8.10^{12}$	$9.0.10^{11}$	6.10^{12}
ΔH_f [$J.g^{-1}$]	936	1205	760	1079
C_s [$J.K^{-1}.g^{-1}$]	0.35	0.41	0.31	0.35
T_f [K]	1427	1583	1309	1376
d [$g.cm^{-3}$]	7.36	7.72	8.1	8.37
A	207	266	258	317
S_e [$KeV.\text{\AA}^{-1}$]	5.50 (SME-U)	4.43 (HE-Pb)	4.25 (HE-Pb)	4.44 (HE-Pb)
E_{ion} (MeV/A)	3.7	24	24	24

Tab.2.7 L'ensemble des paramètres utilisés dans le calcul de la pointe thermique appliqué aux alliages intermétalliques.

2.3.3 Résultats et discussion

Nous avons appliqué le modèle aux alliages YCo_2 (échantillons A) irradiés à l'uranium sur la ligne de moyenne énergie et aux alliages CeCo_2 (échantillons C), YCo_3 (échantillons E) et CeCo_3 (échantillons F) irradiés au plomb sur la ligne de haute énergie. Pour les échantillons C et F, nous avons supposé que le petit pourcentage de fer présent ne modifiait pas le comportement sous irradiation de l'alliage. Il n'a pas été possible d'appliquer le calcul à l'alliage TmCo_2 car très peu des paramètres nécessaires sont connus.

Les figures (2.21), (2.22), (2.23) et (2.24) montrent la variation avec le temps de la température du réseau, calculée pour tous les composés dans des couronnes cylindriques de diamètre croissantes. L'axe du cylindre (fig.2.20) coïncide avec la trajectoire de l'ion.

On observe l'apparition d'un palier de température correspondant à l'équilibre solide-liquide. L'énergie apportée par les électrons est utilisée pour le changement de phase à température constante. Une fois le changement de phase effectué, la température du liquide recommence à augmenter.

On suppose que le diamètre de la trace latente est celui défini par les rayons de la couronne la plus externe qui passe à l'état liquide ($T_a > T_f$), la diminution brutale de la température qui s'ensuit provoquerait la stabilisation de l'amorphe par trempe rapide.

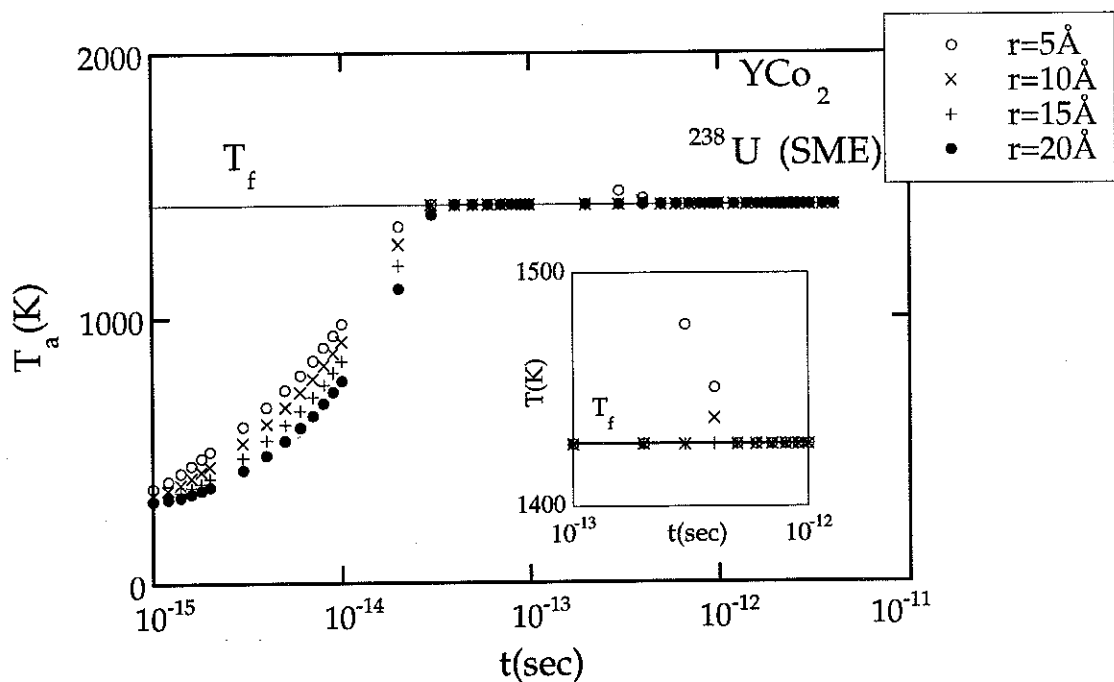


Fig. 2.21 Variation temporelle de la température du réseau atomique d' YCo_2 irradié avec de l'uranium de 0.88 GeV d'énergie. Le trait continu parallèle à l'axe du temps correspond à la température de fusion de l'alliage.

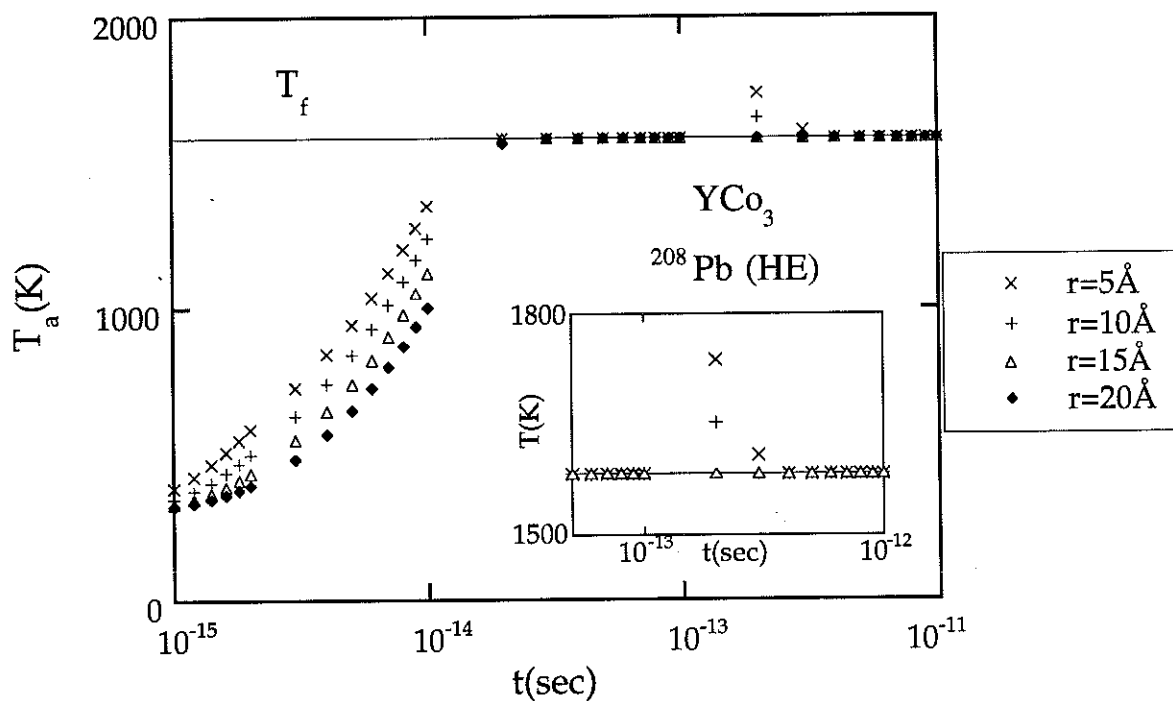


Fig.2.22 Variation de la température du réseau atomique en fonction du temps pour YCo_3 irradié avec du Pb de 5 GeV d'énergie.

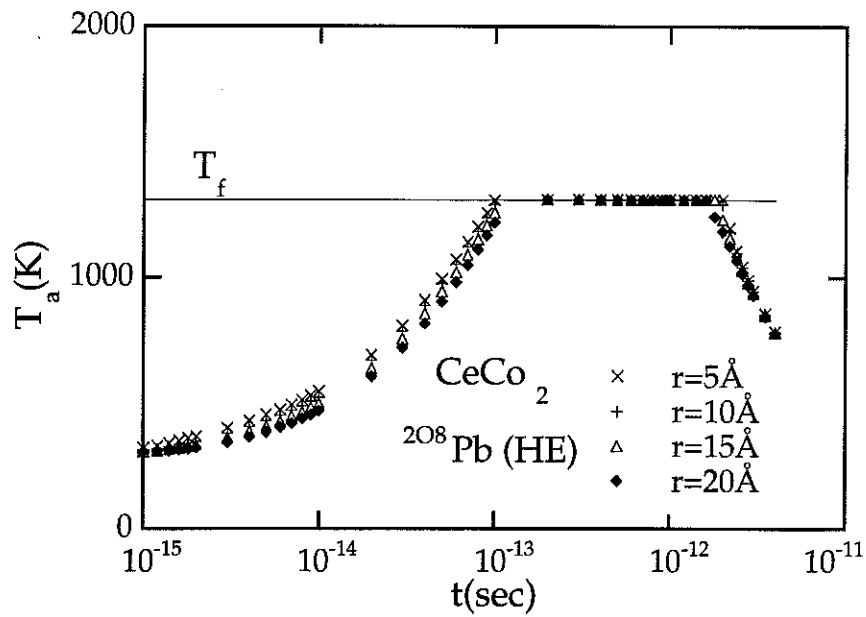


Fig. 2.23 Variation de la température du réseau atomique en fonction du temps pour CeCo_2 irradié avec du plomb de 5 GeV d'énergie.

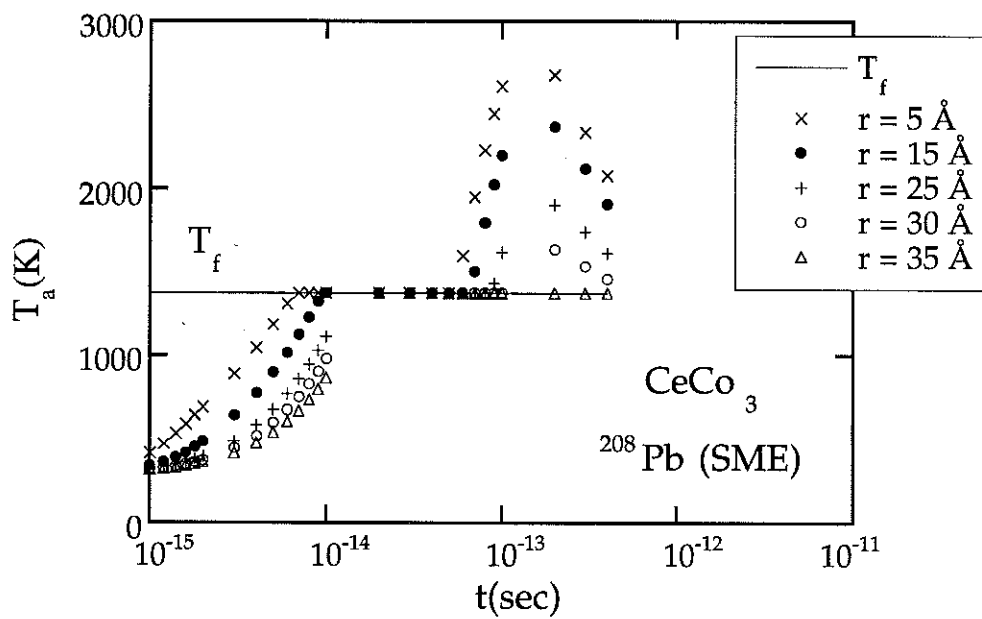


Fig. 2.24 Variation de la température du réseau atomique en fonction du temps pour CeCo_3 irradié avec du Pb de 5 GeV d'énergie.

	D1(Exp.) (Å)	D1(Calc.) (Å)
YCo ₂	21 ± 0.5	20
YCo ₃	10-30	20
CeCo ₂	0	0
CeCo ₃	30 ± 3	60

Tab. 2. 8 Diamètres de traces théoriques et expérimentales pour les différents composés.

Dans le tableau 2.8 les diamètres calculés sont comparés aux valeurs estimées expérimentalement. La valeur du diamètre de traces n'a pu être estimée pour YCo₃, en raison du fait que seules deux valeurs de $p_a(\Phi)$ ont pu être déterminées expérimentalement (voir 2.2.3.4). Néanmoins, étant ces valeurs du même ordre de grandeur de celles déterminées pour YCo₂ et CeCo₃, on peut conclure que les diamètres aussi doivent être confrontables.

L'accord qualitatif avec l'expérience est bon pour tous les composés. Un comportement similaire sous irradiation est obtenu pour YCo₂, YCo₃ et CeCo₃, en accord avec les mesures magnétiques et les mesures de diffraction X des paragraphes précédents. En revanche, CeCo₂ atteint la température de fusion, mais aucune transition de phase n'a lieu. Ce matériau est à la limite de l'endommagement, en accord avec l'observation expérimentale de modifications structurales sans amorphisation.

Ces résultats montrent que des échantillons avec la même microstructure et des propriétés électroniques similaires, peuvent se comporter différemment sous irradiation en raison de différences dans les propriétés du réseau. Compte tenu de ce que les valeurs des paramètres thermodynamiques (T_f , ΔH_f et C_s) varient peu entre les composés, le comportement différent de CeCo₂ peut se comprendre si l'on considère que la constante de couplage électron-phonon est la plus faible et la conductivité thermique est la plus grande.

Plus la valeur de g est élevée, plus l'énergie est transférée rapidement par les électrons au réseau. La quantité d'énergie transférée est donc plus élevée, puisque le transfert d'énergie commence quand le gaz électronique est plus chaud et que l'énergie transférée est proportionnelle à la différence entre la température électronique et la température du

réseau. La pente de $T_a(t)$ pour une distance donnée est donc très rapide pour CeCo_3 (qui a la constante de couplage la plus élevée), elle est plus faible pour YCo_3 et YCo_2 pour devenir minimale pour CeCo_2 .

Les rôles de la conductivité thermique et de la chaleur spécifique, et donc du terme de conduction dans l'équation (2.8b) apparaissent évidents lorsque l'on compare, pour les différents composés, le taux d'augmentation de T_a pour des couronnes différentes. CeCo_2 est le matériau avec la meilleure conductivité thermique et la plus petite chaleur spécifique. La rapidité avec laquelle T_a augmente dans la couronne de 5 Å de diamètre diffère très peu par rapport à la couronne de 20 Å, puisque l'énergie transférée au réseau se répartit rapidement sur un volume plus important. Cela est évidemment un facteur limitatif de la sensibilité du matériau à l'irradiation.

2.4 Conclusions

Des alliages intermétalliques de type RCo_2 ($\text{R}=\text{Y}, \text{Ce}, \text{Tm}$) et RCo_3 ($\text{R}=\text{Y}, \text{Ce}$), obtenus par pulvérisation cathodique et traitement thermique ex-situ sous forme de couches minces polycristallines isotropes, ont été irradiés au GANIL avec des ions d'uranium et de plomb en moyenne et en haute énergie. L'endommagement induit par irradiation a été caractérisé par diffraction de rayons X et par mesures magnétiques.

Les résultats expérimentaux obtenus pour l'ensemble des échantillons peuvent être ainsi schématisés:

1) dans les composés YCo_2 , $\text{Ce}(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)_3$ et YCo_3 une perte de cristallinité progressive avec la fluence est observée par diffraction de rayons X. Nous interprétons ces résultats comme dus à la stabilisation, par irradiation, de régions amorphes dans la matrice cristalline. Pour YCo_2 et $\text{Ce}(\text{CoFe})_3$ cela a pu être confirmé par les mesures magnétiques: une augmentation de l'aimantation à saturation et de la température d'ordre est observée dans les échantillons irradiés par rapport aux échantillons non irradiés. Les fractions amorphisées déduites par rayons X sont en accord avec celles déduites par mesures magnétiques.

Le comportement sous irradiation de composés YCo_2 et CeCo_3 a été interprété au moyen d'un modèle phénoménologique qui associe amorphisation et recristallisation. Cela a permis de déterminer le diamètre de traces latentes. L'ordre de grandeur des diamètres ainsi calculé est de quelques nanomètres pour les deux composés. Le diamètre de traces n'a pu être estimé pour YCo_3 , mais le bon accord avec les fractions amorphisées de YCo_2 et CeCo_3 , autorise à conclure que le diamètre des traces doit être comparable.

Bien que plusieurs tentatives d'observation directe de traces par microscopie électronique dans le composé YCo_2 irradié, aient été effectuées soit par C. Jaouen de l'Université de Poitiers, soit par M. Aindow de l'Université de Birmingham, aucune image des traces latentes n'a pu être obtenue.

2) Dans le composé CeCo_2 , une phase metastable est induite par l'irradiation. Un dédoublement de certaines réflexions est observé. La structure cristallographique de cette phase n'a pu être déterminée en raison du petit nombre de pics observés. Des expériences complémentaires doivent être effectuées, puisqu'il est possible que la transformation de phase observée soit associée à un changement de l'état de valence du cérium, induit par l'irradiation.

3) Aucune modification structurale ou de l'ordre magnétique n'a été mise en évidence dans le composé TmCo_2 irradié.

Enfin, le comportement sous irradiation des composés YCo_2 , YCo_3 , CeCo_2 et CeCo_3 a été interprété avec un modèle basé sur le mécanisme de la pointe thermique développé au CIRIL par Ch. Dufour et M. Toulemonde, et que nous avons adapté aux composés intermétalliques. Le composé TmCo_2 n'a pu être simulé en raison de l'inexistence de la plupart des données expérimentales sur les paramètres physiques requis pour le calcul.

Références

1. E. Balanzat, S. Bouffard, *Solid State Phenomena* **30-31**, (1993).
2. D. F. Pedraza, *J. Less. Comm. Met.* **140**, 219 (1988).
3. P. Bellon, G. Martin, *Sol. State Phenomena*, **30-31**, 107 (1993).
4. D. E. Luzzi, M. Meshii, *J. Less Comm. Met.* **140**, 193 (1988).
5. E. Balanzat, *Rad. Eff. Def. Solids* **126**, 97 (1993).
6. H. Heitman, C. Fritzsche, P. Hansen, J. P. Krumme, R. Spohr, K. Witter, *J. Magn. Magn. Mat.* **7**, 40 (1978).
7. H. Heitmann, P. Hansen, K. Witter, R. Spohr, *J. Magn. Magn. Mat.* **10**, 97 (1979).
8. H. Dotsch, C. Vittoria, H. Heitmann, *IEEE Trans. Magn.* **MAG-17**, 2982 (1981).
9. P. Hansen, H. Heitmann, P. H. Smit, *Phys. Rev. B* **26**, 3539
10. M. Toulemonde, F. Studer, *Phil. Mag. A* **58**, 799 (1988).
11. M. Toulemonde, G. Fuchs, N. Nguyen, F. Studer, D. Groult, *Phys. Rev. B* **35**, 6560 (1987).
12. R. L. Fleischer, P. B. Price, R. M. Walker, *J. Appl. Phys.* **36**, 3645 (1965).
13. D. Lesueur, *Rad. Eff. Def. Solids* **24**, 101 (1975).
14. S. Klaumünzer, M.-d. Hou, G. Schumacher, *Phys. Rev. Lett.*, **57**, 850 (1986).
15. A. Audouard, E. Balanzat, G. Fuchs, J. C. Jousset, D. Lesueur, L. Thomé, *Europhys. Lett.* **5**, 241 (1988).
16. A. Audouard, E. Balanzat, J. C. Jousset, D. Lesueur, L. Thomé, *J. Phys. Cond. Matter* **5**, 995 (1993).
17. A. Iwase, S. Sazaki, T. Iwata, T. Nihira, *Phys. Rev. Lett.*, **58**, 2450 (1987).
18. A. Dunlop, D. Lesueur, J. Morillo, J. Dural, R. Spohr, J. Vetter, *C. R. Acad. Sci. Paris*, **309**, 1277 (1989).
19. A. Dunlop, D. Lesueur, *Rad. Eff. Def. Solids* **126**, 123 (1993).
20. P. Legrand, A. Dunlop, D. Lesueur, N. Lorenzelli, J. Morillo, S. Bouffard, *Mat. Sci. Forum* **97-99**, 587 (1992).
21. J. Henry, A. Barbu, B. Leridon, D. Lesueur, A. Dunlop, *Nucl. Instr. Meth. B* **67**, 390 (1992).
22. A. Barbu, A. Dunlop, J. Henry, D. Lesueur, N. Lorenzelli, *Mat. Sci. Forum* **97-99**, 577 (1992).
23. A. Audouard, E. Balanzat, S. Bouffard, J. C. Jousset, A. Chamberod, A. Dunlop, D. Lesueur, G. Fuchs, R. Spohr, J. Vetter, L. Thomé, *Phys. Rev. Lett.*, **65**, 875 (1990).
24. A. Barbu, A. Dunlop, D. Lesueur, R. S. Averback, *Europhys. Lett.* **15**, 37 (1991).
25. C. Dufour, P. Bauer, G. Marchal, J. Grilhe, C. Jaouen, J. Pacaud, J. C. Jousset, *Europhys. Lett.* **21**, 671 (1993).
26. D. Lesueur, A. Dunlop, *Rad. Eff. Def. Solids* **126**, 163-173 (1993).
27. A. Dunlop, P. Legrand, D. Lesueur, N. Lorenzelli, J. Morillo, A. Barbu, S. Bouffard, *Europhys. Lett.* **15**, 765-770 (1991).
28. A. Dunlop, D. Lesueur, *Mat. Sci. Forum* **97-99**, 553-576 (1992).
29. J. G. Fujimoto, J. M. Liu, E. P. Ippen, *Phys. Rev. Lett.* **53**, 1837 (1984).

30. H. E. Elsayed-Ali, T. B. Norris, M. A. Pessot, G. A. Mourou, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 1212 (1987).
31. S. D. Brorson, A. Kazeroonian, J. S. Moodera, D. W. Face, T. K. Cheng, E. P. Ippen, M. S. Dresselhaus, G. Dresselhaus, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2172 (1990).
32. F. Seitz, J. S. Koehler, *Solid State Physics* (Academic Press, 1956), vol. 2.
33. M. Toulemonde, C. Dufour, E. Paumier, *Phys. Rev. B* **46**, 14362-14369 (1992).
34. M. Toulemonde, E. Paumier, C. Dufour, *Rad. Eff. Def. Solids* **126**, 201-206 (1993).
35. C. Dufour, *Thèse*, (Université de Caen, 1993).
36. Z. G. Wang, C. Dufour, E. Paumier, M. Toulemonde, *J. Phys.: Condens. Matter* **6**, 6733-6750 (1994).
37. A. Iandelli, A. Palenzona, in *Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths* K. A. Gschneidner, L. R. Eyring, Eds. (North Holland, Amsterdam, 1979), vol. 2,.
38. L. J. Tao, S. Kirkpatrick, R. J. Gambino, J. J. Cuomo, *Sol. State Comm.* **13**, 1491 (1973).
39. K. Moorjani, J. M. D. Coey, *Magnetic Glasses*. S. P. Wolshky, A. W. Czaderna, Eds., (Elsevier, Amsterdam, 1984).
40. D. Malterre, J. Durand, A. Siari, G. Marchal, *J. de Physique C8 S12-49*, 1359 (1988).
41. E. Burzo, A. Chelkowski, H. R. Kirchmayr, in *Magnetic Properties of Metals* H. P. J. Wijn, Eds. (Springer, , vol. d2,.
42. G. Longworth, I. R. Harris, *J. Less Comm. Metals* **41**, 175 (1975).
43. R. Lemaire, e. al, *J. Phys. Chem. Solids* **28**, 2471 (1967).
44. J. F. Ziegler, J. P. Biersack, U. Littmark, *Stopping Power and Ranges of Ions in Matter*. J. F. Ziegler, Eds., (Pergamon, New York, 1985).
45. E. T. d. Lacheisserie, *communication privée* .
46. H. Wada, K. Yoshimura, G. Kido, M. Shiga, M. Mekata, Y. Nakamura, *Sol. State Comm.* **65**, 23 (1988).
47. N. W. Ashcroft, N. D. Mermin, *Solid State Physics* (Saunders, Philadelphia, 1988).
48. Y. V. Martynenko, Y. N. Yavlinski, *Sov. Phys. Dokl.* **28**, 391 (1983).
49. E. Gratz, M. J. Zuckermann, in *Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths* K. A. Gschneidner, L. R. Eyring, Eds. (North Holland, Amsterdam, 1982), vol. 5,.
50. P. V. duPlessys, T. Germishuys, *J. Mag. Mag. Mat.* **104-107**, 1349 (1992).
51. *Handbook of Physics and Chemistry* .
52. C. Colinet, A. Pasturel, in *Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths* Vol. 19 K. A. Gschneidner, L. Eyring, G. H. Lander, G. R. Choppin, Eds. 1994).
53. O. Y. Sidorov, Y. O. Esin, P. V. Geld, S. M. Kirova, *Rasplavy* **2**, 101 (1988).
54. Fitzner, Kleppa, *Metall. Mat. Trans. A* **25**, 1495 (1994).
55. J. Voiron, *Thèse* (Université Scientifique et Médicale, Grenoble, 1973).
56. D. Pines, *Elementary excitations in solids* (Addison-Wesley, 1963).

CHAPITRE 3

NANOCOLONNES MAGNETIQUES DANS LE SYSTEME Y-Co IRRADIE

3.1 Propriétés magnétiques avant irradiation	71
3.2 Rappel des résultats structuraux sur les échantillons irradiés.....	73
3.3 Propriétés magnétiques après irradiation	74
3.3.1 Aimantation en fonction du champ magnétique et de la température: résultats et discussion.....	74
3.3.1.1 Susceptibilité initiale	74
3.3.1.2 Cycles d'hystérésis en fonction de la fluence.....	76
3.3.1.3 Variation thermique de l'aimantation ($H = 10$ kOe).....	76
3.3.1.4 Variation thermique de l'aimantation en champ faible	78
3.3.2 Anisotropie: résultats, discussion.....	79
3.3.2.1 Échantillons irradiés à 10^{12} ions/cm ² : anisotropie de forme perpendiculaire	79
3.3.2.2 Variation du champ d'anisotropie avec la fluence	83
3.3.3 Coercivité: résultats, discussion.	84
3.3.3.1 Échantillons irradiés à 10^{12} ions/cm ²	84
3.3.3.2 Variation du champ coercitif avec la fluence	86
3.3.3.3 Variation thermique du champ coercitif.....	87
3.4 Conclusions.....	88

CHAPITRE 3

NANOCOLONNES MAGNÉTIQUES DANS LE SYSTÈME Y-CO IRRADIÉ

3.1 Propriétés magnétiques avant irradiation

La cristallisation de la phase de Laves YCo_2 a été obtenue pour deux séries d'échantillons initialement déposées avec les compositions suivantes :

Si (100) / Ta 1000 Å / YCo_2 15000 Å / Ta 1000 Å (échantillons A)

Si(100)/Ta 500 Å / $\text{YCo}_{1.1}$ 2300 Å / Ta 500 Å (échantillons B)

Les cycles d'hystérésis à basse température, avec le champ magnétique appliqué dans les directions parallèles et perpendiculaires au plan de la couche sont montrés dans les figures (3.1) et (3.2), pour les échantillons A et B amorphes.

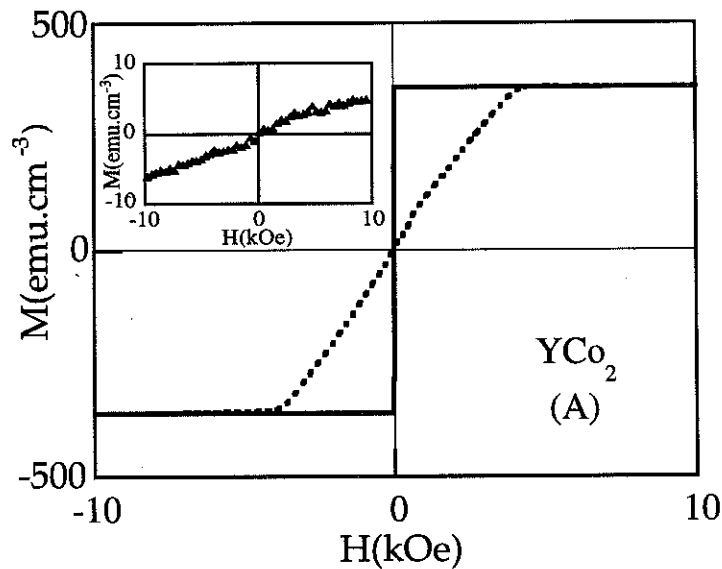


Fig. 3.1 Trait continu: cycle d'hystérésis pour un échantillon A amorphe avec le champ magnétique appliqué dans le plan de la couche. Trait pointillé: cycle d'hystérésis avec le champ appliqué perpendiculairement au plan de la couche.

Insert: cycles d'hystérésis sur le même échantillon après un recuit d'une heure à 600°C.

Pour les échantillons A, une aimantation à saturation de 360 uem/cm³ est mesurée, qui correspond à 1 μ_B /at(Co), en accord avec la littérature [1]. Pour les échantillons B,

l'aimantation à saturation est faible (25 uem/cm^3). Cela est dû à la composition beaucoup plus riche en Y (voir Fig.2.2a, Chapitre 2).

Pour les échantillons A, une susceptibilité très importante est obtenue avec le champ magnétique appliqué dans le plan de la couche. Dans le cas où le champ magnétique est appliqué perpendiculairement au plan de la couche, l'aimantation est saturée pour un champ de 4.2 kOe qui correspond à la valeur du champ démagnétisant des couches minces $H_d = 4\pi M_s$. L'anisotropie magnétocristalline peut donc être négligée par rapport à l'anisotropie de forme.

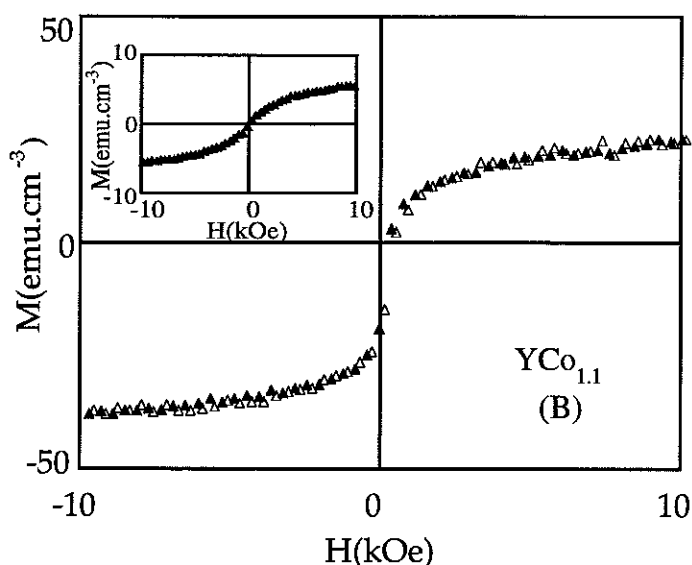


Fig.3.2 Triangles noirs: cycles d'hystérésis d'un échantillon B amorphe avec le champ magnétique appliqué dans le plan de la couche. Triangles blancs: cycles d'hystérésis pour le même échantillon avec le champ appliqué perpendiculairement au plan de la couche.
Insert: courbe d'aimantation sur le même échantillon après un recuit d'une heure à 600°C .

Pour les échantillons B, les courbes d'aimantation effectuées avec le champ magnétique appliqué parallèlement ou perpendiculairement au plan de la couche sont similaires. Une susceptibilité non négligeable est présente jusqu'à un champ appliqué de 10 kOe. Nous l'interprétons comme due à du paramagnétisme superposé, en accord avec la stoechiométrie de l'alliage proche de la concentration critique pour la disparition du magnétisme.

Une valeur très faible de l'aimantation à saturation (5 uem/cm^3) est mesurée pour les échantillons A et B cristallisés par traitement thermique (encadrés de Fig. 3.1 et 3.2). Cette contribution magnétique résiduelle pourrait être due soit à la présence d'une petite fraction d'échantillon non cristallisé, soit à la ségrégation de Co libre ou à la présence d'une phase magnétique cristallisée plus riche en Co que YCo_2 qui pourraient résulter de l'oxydation d'Y à travers la couche protectrice de Ta.

3.2 Rappel des résultats structuraux sur les échantillons irradiés

Les échantillons cristallisés ont été irradiés sur la ligne SME du GANIL avec des ions ^{208}Pb (1 GeV, échantillons A) et ^{238}U (0.88 GeV, échantillons A et B).

Pour les échantillons A irradiés au Pb, les fluences totales de 10^{10} , 10^{11} , 10^{12} ions/cm² ont été obtenues. Dans les échantillons irradiés aux fluences de 10^{10} ions/cm² et 10^{11} ions/cm², la fraction amorphisée était trop faible pour être mise en évidence, par diffraction des rayons X ou par mesures magnétiques. Cela a empêché la caractérisation de la morphologie de traces et l'étude des propriétés magnétiques en fonction de la fluence. L'échantillon irradié à 10^{12} ions/cm² a néanmoins été caractérisé du point de vue magnétique (échantillon A'1).

Pour les échantillons irradiés avec ^{238}U les fluences de 10^{12} ions/cm² échantillons (A1 et B1), 5.10^{12} ions/cm² (échantillons A2 et B2) et 10^{13} ions/cm² (échantillons A3 et B3) ont été obtenues.

Les sections efficaces d'amorphisation et de recristallisation pour les échantillons A et B irradiés à l'uranium, calculées par un ajustement des données expérimentales basé sur le modèle d'amorphisation-recristallisation décrit au Chapitre 2, sont montrées dans le tableau 3.1. Les diamètres de traces déduits en faisant l'hypothèse que les traces sont continues sont également rappelés.

	$\sigma_a(\text{cm}^2)$	$\sigma_r(\text{cm}^2)$	$D_1(\text{\AA})$	$D_2(\text{\AA})$
YCo ₂ (A)	$0.36.10^{-13}$ ($0.14.10^{-14}$)	$2.62.10^{-13}$ ($0.17.10^{-13}$)	21 (0.5)	61 (1.5)
YCo _{1.1} (B)	$1.87.10^{-13}$ ($0.9.10^{-14}$)	$2.72.10^{-13}$ ($0.23.10^{-13}$)	49 (1)	76 (4)

Tab. 3.1 Sections efficaces d'amorphisation et de recristallisation et diamètres correspondants (déduits de l'éq. 2.12) obtenues avec le meilleur ajustement des valeurs de $p_a(\Phi)$ et $p'_a(\Phi)$ de la Fig. 2.7 (les erreurs calculées pour chaque paramètre sont données entre parenthèses).

3.3 Propriétés magnétiques après irradiation

3.3.1 Aimantation en fonction du champ magnétique et de la température: résultats et discussion.

3.3.1.1 Susceptibilité initiale

Les courbes de première aimantation en direction facile effectuées à basse température sur les échantillons désaimantés thermiquement sont montrées dans la Fig. 3.3.

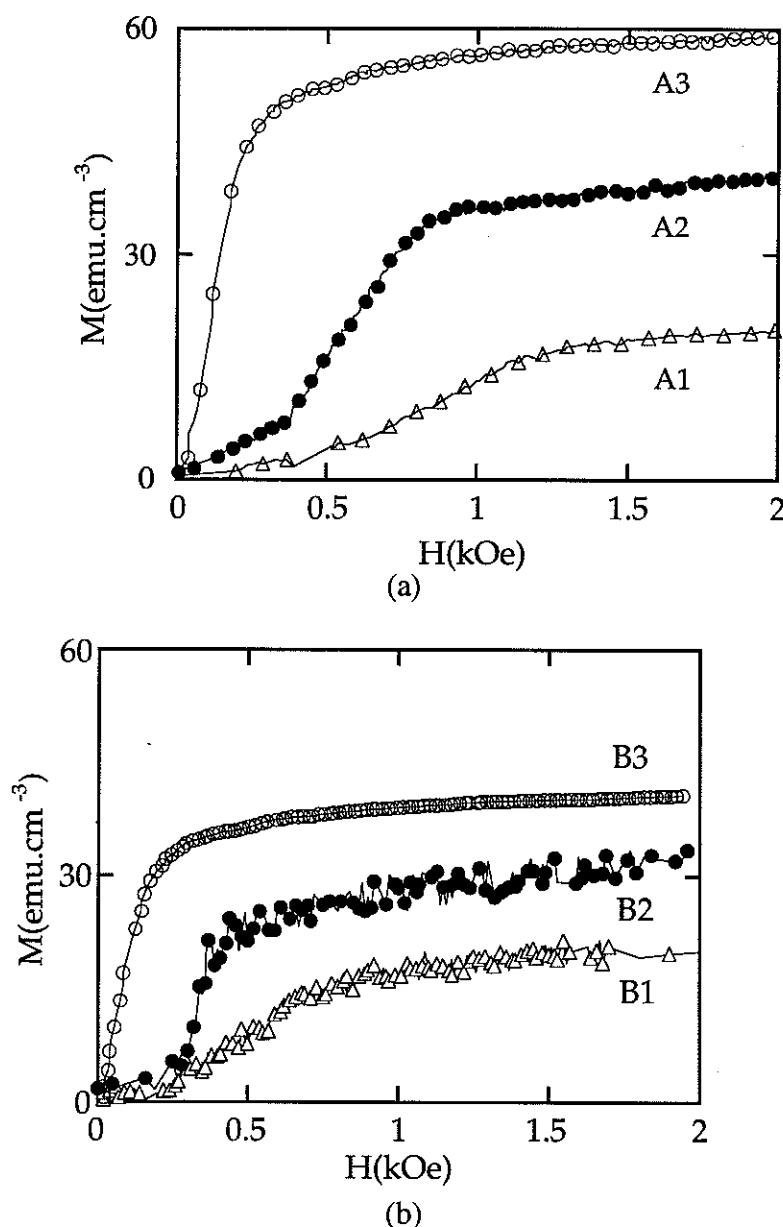


Fig.3.3 : (a) courbes de première aimantation en direction facile pour les échantillons A1, A2 et A3; (b): courbes de première aimantation en direction facile pour les échantillons B1, B2 et B3.

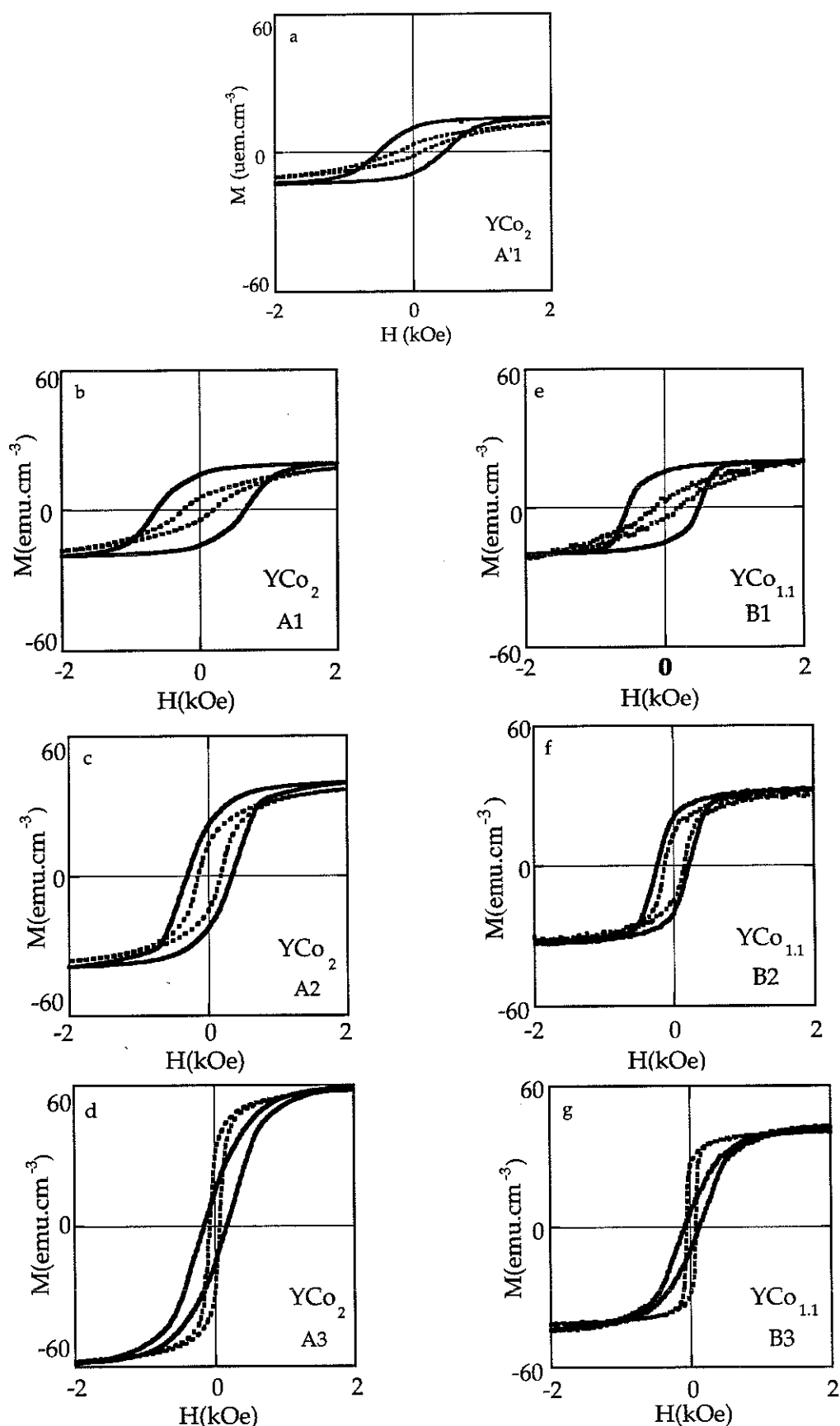


Fig.3.5 Cycles d'hystérésis mesurés avec le champ parallèle (trait discontinu) et perpendiculaire (trait continu) au plan de la couche pour les échantillons A et B. (a) A'1 (Pb, 10^{12} ions/cm²); (b) A1 (U, 10^{12} ions/cm²); (c) A2 (U, 5.10^{12} ions/cm²); (d) A3 (U, 2.10^{13} ions/cm²); (e) B1 (U, 10^{12} ions/cm²); (f) B2 (U, 5.10^{12} ions/cm²); (g) B3 (U, 2.10^{13} ions/cm²).

Dans tous les échantillons la susceptibilité initiale est faible jusqu'à des valeurs de champ magnétique comparables aux champs coercitifs mesurés dans les cycles d'hystérésis (Fig.3.4). En tenant compte de la taille réduite des nanoparticules (voir 3.1 et Chapitre 2), cela peut être attribué à un comportement monodomaine.

3.3.1.2 Cycles d'hystérésis en fonction de la fluence

Les cycles d'hystérésis mesurés à basse température avec le champ magnétique appliqué parallèlement ou perpendiculairement au plan des couches sont montrés pour les échantillons A et B dans la Fig. 3.5. On remarque trois effets. La valeur de l'aimantation à saturation augmente avec la fluence dans les échantillons A et B irradiés à l'uranium. Cela est en accord avec l'augmentation de la fraction volumique amorphisée déjà observée au Chapitre 2.

La direction de facile aimantation varie avec la fluence. Dans tous les échantillons irradiés à 10^{12} ions/cm², une direction de facile aimantation perpendiculaire aux plans des couches est observée. Dans les échantillons irradiés à $5 \cdot 10^{12}$ ions/cm² (A2 et B2) aucune direction nettement privilégiée n'est observée. Dans les échantillons irradiés à 10^{13} ions/cm², une direction de facile aimantation parallèle aux plans des couches est observée. Enfin, on observe également une diminution progressive de la coercivité avec la fluence. L'anisotropie, la coercivité et leurs variations avec la fluence seront analysées dans les sections 3.3.2 et 3.3.3.

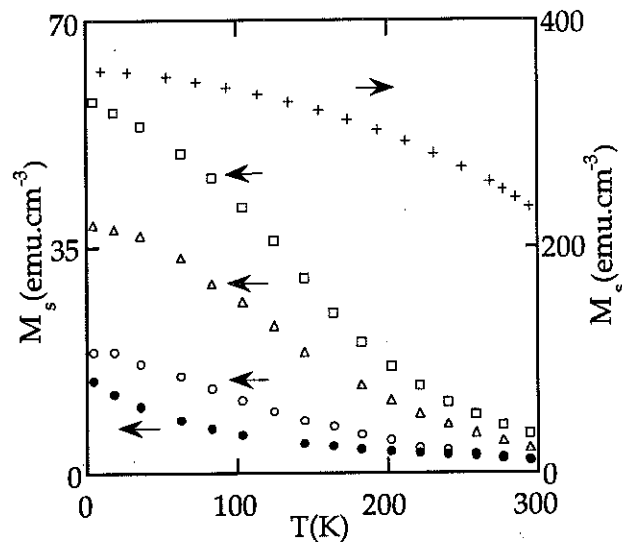
La fraction volumique amorphisée $p'_a(\Phi)$ a été déterminée en faisant le rapport entre l'aimantation à saturation en fonction de la fluence, $M_s(\Phi)$, corrigée de l'aimantation résiduelle (5 uem/cm^3) observée dans les échantillons recuits, et l'aimantation $M_s^{(a)}$ de l'échantillon tout amorphe. En faisant l'hypothèse que seules les nanocolonnes sont magnétiques, on obtient pour tous les échantillons le moment magnétique à saturation du Co : $\mu_s = 1,0 \pm 0,2 \text{ } \mu\text{B/at}(\text{Co})$, en accord avec la valeur mesurée dans YCo₂ amorphe massif (voir fig. 3.7b).

3.3.1.3 Variation thermique de l'aimantation (H = 10 kOe)

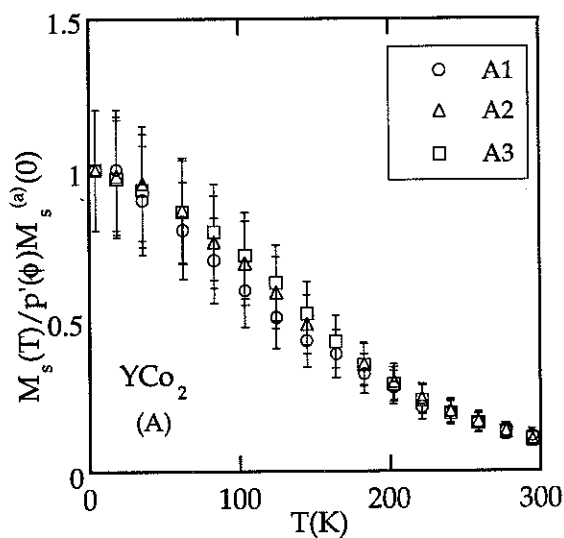
La dépendance en température de l'aimantation mesurée dans un champ de 10 kOe pour les échantillons A, irradiés au Pb (A'1) et à l'U (A1, A2, A3) est montrée dans la Fig. 3.7a. La variation thermique de l'échantillon YCo₂ tout amorphe est également montrée pour référence.

La fig. 3.7b montre la variation thermique de l'aimantation, corrigée de l'aimantation résiduelle observée dans les échantillons recuits, normalisée à la valeur de $M_s^{(a)}(0)$ et à la valeur de $p'(\Phi)$. Un comportement identique est observée pour les échantillons A1, A2 et A3, ce qui démontre que la morphologie des nanocolonnes ne change pas avec la fluence. Une température d'ordre moyenne peut être localisée à 150 K environ pour les échantillons irradiés à l'U.

Dans l'échantillon irradié au Pb (A'1), la variation thermique de l'aimantation est beaucoup plus rapide et une température d'ordre moyenne peut être localisé à 100 K environ. Pour tous les échantillons, il y a de très grandes différences avec la dépendance en température de l'aimantation d'YCo₂ amorphe massif: la décroissance est beaucoup plus rapide et la température d'ordre est fortement réduite. On peut attribuer ce comportement à des effets de dimensionnalité réduite, par analogie avec les couches magnétiques ultra-minces [2].



(a)



(b)

Fig.3.7 (a): variation thermique de l'aimantation pour $H = 10$ kOe pour les échantillons irradiés comparés avec celle d'un échantillon A tout amorphe. Carrés noirs: A'1 (Pb, 10^{12} ions.cm⁻²). Cercles: A1 (U, 10^{12} ions.cm⁻²). Triangles: A2 (U, $5 \cdot 10^{12}$ ions.cm⁻²). Carrés blancs: A3 (U, $2 \cdot 10^{13}$ ions.cm⁻²).

(b): variation avec la température de $M(T)/p'(\Phi)M_s^{(a)}(0)$ pour les échantillons A1, A2, A3.

Dans ces dernières, les effets de dimensionalité apparaissent lorsque l'épaisseur devient de l'ordre de 2 nm. Si l'on considère une nanocolonne de forme cylindrique, avec un diamètre de 2 nm et une hauteur de 1 μm , on peut estimer que 40% des atomes qui constituent la particule sont à la surface et donc soumis à un défaut d'échange, contre 20% des atomes dans une couche mince de 2 nm d'épaisseur. Il semble donc raisonnable que la variation brutale de l'aimantation à saturation des nanocolonnes et la diminution de la T_C soient dues à la dimensionnalité réduite des nanocolonnes.

3.3.1.4 Variation thermique de l'aimantation en champ faible

La susceptibilité à bas champ a été mesurée en fonction de la température pour les échantillons A'1 et A1 irradiés à 10^{12} ions/cm², respectivement au Pb et à l'U (Fig. 3.6). Après refroidissement en champ nul, un maximum dans la susceptibilité est observé en température croissante, mais pas en température décroissante.

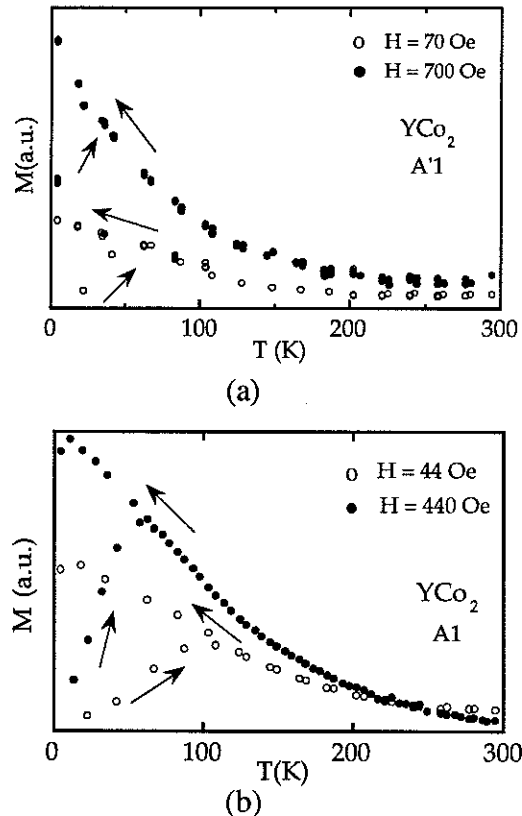


Fig.3.6 Variation thermique de l'aimantation pour différents champs appliqués après refroidissement en champ nul pour les échantillons A'1 (Pb, 10^{12} ions.cm⁻²) et A1 (U, 10^{12} ions.cm⁻²).

La variation de la position du pic a été étudiée en fonction de la valeur du champ magnétique appliqué. Nous avons observé que lorsqu'on augmente le champ magnétique, la position du pic se déplace vers les basses températures. Le pic disparaît lorsqu'on applique un champ magnétique d'environ 1 kOe. Ce comportement, qui n'a pu être approfondi, pourrait être dû à l'existence de faibles contributions superparamagnétiques.

3.3.2 Anisotropie: résultats, discussion

3.3.2.1 Échantillons irradiés à 10^{12} ions/cm²: anisotropie de forme perpendiculaire

La comparaison des cycles d'hystérésis obtenus pour H appliqué parallèlement et perpendiculairement au plan des couches, montre que dans les échantillons irradiés à la fluence la plus faible (A'1, A1, B1), la direction de facile aimantation est perpendiculaire au plan de la couche. Cependant, une aimantation rémanente de $0,2 M_s$ est observée dans les cycles effectués selon l'axe "difficile". Cela montre que l'aimantation n'est pas parfaitement orientée perpendiculairement au plan de la couche, probablement en raison de l'existence d'une fonction de distribution des orientations relatives des nanocolonnes. Pour clarifier ce point, nous avons effectué plusieurs observations des échantillons irradiés par microscopie électronique en transmission. Aucune image des traces n'a cependant pu être obtenue.

Le comportement de l'anisotropie peut tout de même être discuté, en négligeant en première approximation la déviation de l'aimantation par rapport à la direction perpendiculaire au plan de la couche. Nous avons mesuré les courbes de première aimantation en fonction de la température, avec le champ magnétique appliqué dans le plan de la couche, pour les échantillons A1 et A'1. La variation thermique de l'énergie d'anisotropie (E_A) a pu ainsi être déterminée. Les résultats obtenus pour l'échantillon A1 sont montrés dans la fig. 3.8.

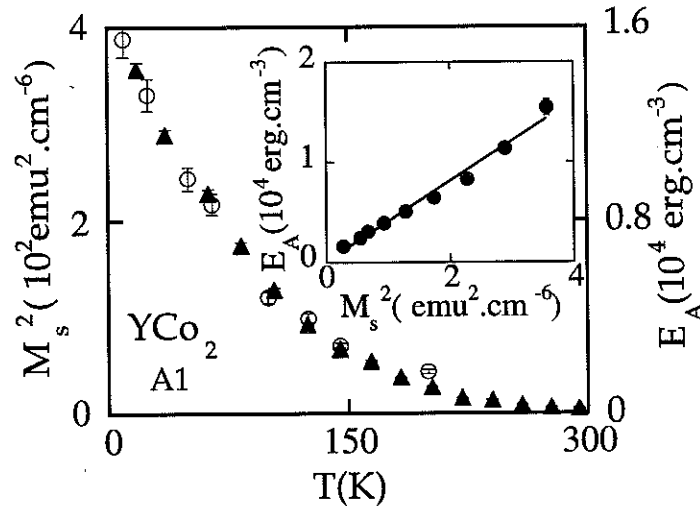


Fig.3.8 Échantillon A1 ($U, 10^{12}$ ions/cm²): variation thermique de l'énergie d'anisotropie comparée avec celle de M_s^2 .

La variation de E_A avec la température est proportionnelle à celle de M_s^2 . Cela indique que la contribution prédominante à l'anisotropie est l'énergie associée au champ démagnétisant des nanocolonnes:

$$E_A = \frac{1}{2} H_A M_s = \frac{1}{2} N M_s^2 \quad (3.1)$$

S'il existait une contribution d'origine magnétocristalline, la variation de E_A serait plus rapide qu'une variation en M_s^2 [2]. L'anisotropie magnétocristalline peut donc être négligée, en accord avec sa faible valeur observée dans les échantillon Y-Co amorphes. Un comportement identique est observé pour l'échantillon A'1.

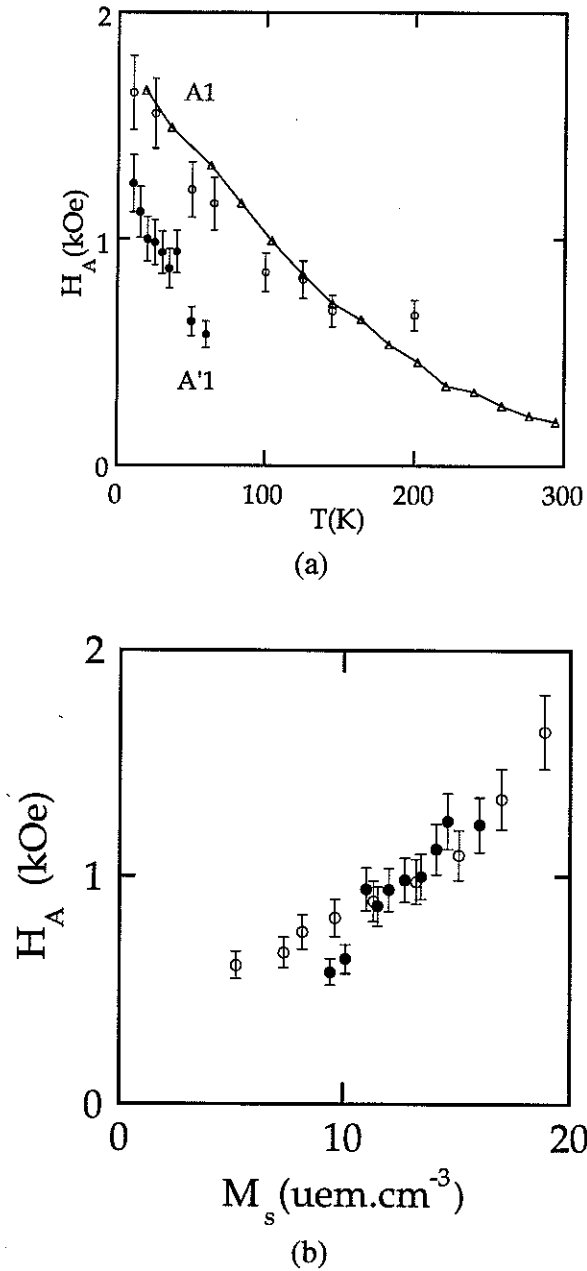


Fig.3.9 (a): variation thermique du champ d'anisotropie mesurée pour les échantillons A'1 et A1;
variation thermique calculée avec éq. (3.3) pour l'échantillon A1;
(b): champ d'anisotropie en fonction de l'aimantation à saturation pour les échantillons A'1 et A1.

L'existence d'une anisotropie de forme perpendiculaire au plan des couches est en accord avec la formation par irradiation de colonnes magnétiques allongées suivant la direction d'irradiation.

Les valeurs du champ d'anisotropie en fonction de la température ont été déduits à partir de l'éq. (3.1), pour les échantillons A1 et A'1 (fig. 3.9).

Pour calculer la variation du champ d'anisotropie en fonction de la température et de la fluence, il faut prendre en compte les interactions magnétostatiques entre les nanocolonnes. En première approximation, nous faisons l'hypothèse que l'approximation du milieu continu est valide et nous exprimons l'interaction entre colonnes par un champ démagnétisant, créé par une couche continue d'aimantation $p_a(\Phi)M_s^{(a)}$. Dans ce formalisme, l'énergie totale d'une nanocolonne peut s'écrire:

$$E = 2\pi N_{//} M_s^{(a)2} \cos^2 \theta + 2\pi N_{\perp} M_s^{(a)2} \sin^2 \theta + 2\pi p(\Phi) M_s^{(a)2} \cos^2 \theta - 2\pi N_{\perp} p(\Phi) M_s^{(a)2} \sin^2 \theta - M_s^{(a)} H \sin \theta \quad (3.2)$$

où $N_{//}$ et $N_{\perp}$ sont respectivement les coefficients de champ démagnétisant parallèle et perpendiculaire à l'axe majeur des colonnes et θ est l'angle entre la direction de l'aimantation et la normale au plan de la couche. Les deux premier termes dans l'éq.(3.2) représentent l'énergie dipolaire d'une colonne isolée. Les deux termes suivants représentent les interactions dipolaires entre colonnes dans l'approximation du milieu continu, tandis que le dernier terme représente l'énergie Zeeman.

Le champ d'anisotropie déduit à partir de l'Eq.(3.2) s'écrit:

$$H_A = 4\pi \{ N_{\perp} [1 - p(\Phi)] - N_{//} - p(\Phi) \} M_s \quad (3.3)$$

En substituant les valeurs expérimentales de $p(\Phi) = 0,03$ et $H_A = 1,6$ kOe (à basse température) pour l'échantillon A1, les valeurs $N_{//} = 0,06$ et $N_{\perp} = 0,47$ sont obtenus avec l'éq.(3.2) en tenant compte de ce que $N_{//} + 2N_{\perp} = 1$.

Pour l'échantillon B1, on obtient $N_{//} = 0,12$ et $N_{\perp} = 0,44$, en substituant $p(\Phi) = p_a(\Phi)/4$ (pour tenir compte du fait que la fraction volumique estimée d' YCo_2 est égale à 25%) et $H_A = 1,2$ kOe.

Ces valeurs suggèrent que les nanoparticules ne sont pas des cylindres idéalement allongés ($N_{//} = 0$ et $N_{\perp} = 0,5$). Les traces pourraient être discontinues ou de forme irrégulière. Dans $NiZr_2$, le seul composé métallique où des traces latentes ont été observées par microscopie électronique, la géométrie est discontinue [3].

Le modèle le plus simple pour rendre compte de la géométrie irrégulière des traces est le modèle de la chaîne de sphères. Ce modèle a été développé pour expliquer le retournement de l'aimantation dans des chaînes de particules sphériques d'anisotropie magnétocristalline nulle. Seules les interactions dipolaires entre sphères sont considérées. Le champ d'anisotropie associé à une rotation parallèle de moments magnétiques pour une chaîne de sphères isolée s'exprime :

$$H_A = \pi M_s K_n$$

où K_n est une série qui dépend du nombre n de sphères dans la chaîne.

Pour $n \rightarrow \infty$, $H_A \rightarrow 1,2\pi M_s$. En substituant la valeur à basse température de l'aimantation à saturation d' YCo_2 , on obtient $H_A \approx 1,4$ kOe. Dans un ensemble de chaînes en interaction dipolaire, l'effet des interactions peut être estimé très grossièrement en utilisant encore une fois l'éq. (3.3). On obtient alors $H_A \approx 1,2$ kOe, en accord avec les valeurs du champ d'anisotropie observés pour les échantillons A'1 et B1.

3.3.2.2 Variation du champ d'anisotropie avec la fluence

Quand la fluence augmente à $5 \cdot 10^{12}$ ions.cm⁻² (échantillons A2 et B2) les cycles d'hystérésis sont presque identiques, quelle que soit la direction du champ magnétique appliqué. Dans les échantillons A3 et B3, la direction de facile aimantation se trouve dans le plan. Puisque la variation thermique de l'aimantation à saturation est identique pour A1, A2 et A3, on peut supposer que les nanocolonnes sont identiques quelle que soit la fluence. La variation du champ d'anisotropie ne peut donc s'expliquer que du fait d'interactions entre colonnes. Ces interactions peuvent être d'échange ou dipolaires. Les interactions d'échange sont en general isotropes.

En première approximation nous avons donc considéré seulement les interactions dipolaires et nous avons appliqué l'éq.(3.2) aux échantillons A. Dans fig. 3.10 les résultats ainsi obtenus sont comparés avec les valeurs expérimentales.

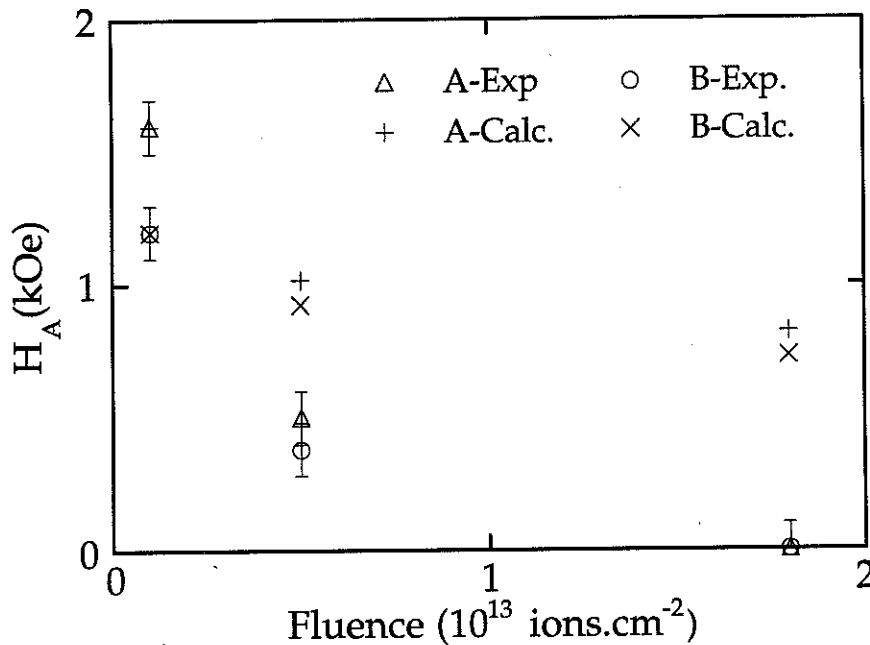


Fig. 3.10 Comparaison entre les valeurs du champ d'anisotropie mesurées expérimentalement pour les échantillons A et B et celles calculées dans l'approximation du milieu continu.

La variation calculée est plus lente d'un facteur deux. L'approximation du milieu continu n'est pas valide, surtout pour les fluences élevées, pour lesquelles les interactions dipolaires peuvent être fortement augmentées par les fluctuations statistiques dans la fonction de distribution des nanocolonnes. Ce résultat suggère que des interactions magnétostatiques très fortes sont développées quand la densité de traces augmente. Or les interactions dipolaires dépendent fortement de la configuration initiale des aimantations de nanocolonnes en champ nul qui elle-même dépend des interactions d'échange entre colonnes, que nous avons négligées en première approximation. De telles interactions d'échange entre colonnes pourraient être véhiculées par les électrons itinérants de type 3d de la matrice. Il en résulterait la formation de régions corrélées d'aimantation moyenne importante, qui seraient à l'origine d'interactions dipolaires élevées.

3.3.3 Coercivité: résultats, discussion.

3.3.3.1 Échantillons irradiés à 10^{12} ions/cm²

Les valeurs des champs coercitifs à basse température sont $H_c=650$ Oe pour l'échantillon A1, $H_c=500$ Oe pour l'échantillon A'1 et $H_c=550$ Oe pour l'échantillon B1. Les valeurs des rapports H_c/H_a sont comprises entre 1/2 et 1/3 pour tous les échantillons. Ce sont des valeurs inhabituelles, car dans les matériaux magnétiques durs les valeurs expérimentales du champ coercitif sont des fractions significativement plus faibles du champ d'anisotropie (valeur typique $H_c/H_a \approx 1/10$).

D'après la théorie classique de la nucléation, il existe trois mécanismes possibles de renversement de l'aimantation dans les matériaux à anisotropie de forme: la rotation cohérente, le curling et le buckling. Le champ coercitif a été calculé [4] pour des cylindres infinis pour les trois mécanismes en fonction du rapport R/R_0 , où R est le rayon du cylindre et R_0 est une longueur caractéristique :

$$R_0 = \sqrt{\frac{A}{M_s^2}}$$

où A et M_s sont respectivement la constante d'échange et l'aimantation à saturation du matériau. D'après ces calculs, seuls la rotation cohérente et le curling sont favorisés du point de vue énergétique. Dans le cas de la rotation cohérente $H_c/H_a=1$ pour toutes les valeurs de R/R_0 . Dans le cas du curling, H_c/H_a est compris entre 1/5 et 1/10.

En considérant $M_s = 360$ uem/cm³ et $A=5.10^{-7}$ erg/cm [5] et le diamètre des traces déterminés au Chapitre 2, on obtient $R/R_0 \approx 0,05$ pour les échantillons A et $R/R_0 \approx 0,13$ pour les échantillons B. D'après la théorie classique de la nucléation, la rotation cohérente devrait donc être énergétiquement favorisée dans nos particules par rapport au curling. Cela est dû essentiellement au diamètre extrêmement petit de nos nanocolonnes, qui rend le curling défavorable du point de vue de l'énergie d'échange. Néanmoins, nous n'observons pas $H_c/H_a = 1$.

En effet, l'état d'aimantation uniforme pour un cylindre fini peut être considéré comme un état instable par rapport à celui d'un cylindre infini [6], car le champ démagnétisant est non uniforme à l'intérieur de la particule. On peut imaginer que la nucleation d'un mode de renversement de l'aimantation ait lieu à partir des extrémités du cylindre, où la valeur du champ démagnétisant est maximale. Le renversement de l'aimantation pourrait ensuite se produire par un mécanisme collectif le long de l'axe longitudinal des nanocolonnes, comme schématisé dans la Fig. 3.11. L'aimantation reste uniforme radialement pendant le retournement, en raison du diamètre extrêmement petit de la nanocolonne. Ce mécanisme pourrait être défini comme "curling 1-D".

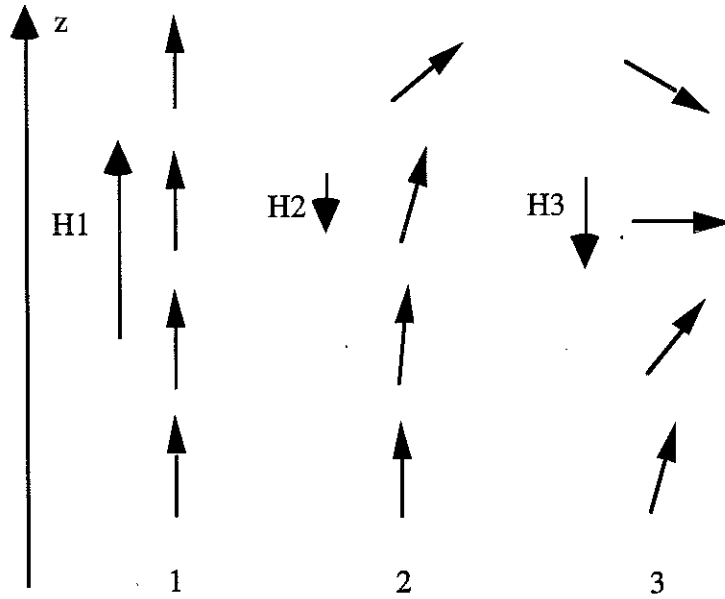


Fig. 3.11 Nucleation d'un mode collectif de renversement de l'aimantation selon l'axe longitudinal d'une nanocolonne.

Calcul de H_c dans une particule isolée

En toute première approximation, le mécanisme proposé peut être schématisé comme équivalent à la nucleation d'une paroi de Néel à 180° dans une chaîne de spins 1-D.

La valeur du champ coercitif déterminée expérimentalement peut être ainsi estimée en supposant que la variation en θ entre les moments magnétiques de la paroi est uniforme:

$$d\theta = \frac{\pi}{\lambda} dz \quad (3.3)$$

où λ est l'épaisseur de la paroi.

L'énergie nécessaire à la création de la paroi est donnée par la somme des contributions de l'énergie d'échange et de l'énergie dipolaire associées à la configuration non uniforme de l'aimantation.

L'augmentation de l'énergie d'échange peut s'écrire:

$$E_{ex} = \int_0^\lambda A \left(\frac{d\theta}{dz} \right)^2 dz = \frac{A\pi^2}{\lambda} \quad (3.4)$$

L'énergie dipolaire est donnée par l'apparition de pôles non compensés dus à la composante radiale de l'aimantation. L'énergie dipolaire associée à la création de la paroi est donc:

$$E_{\text{dip}} = \int_0^\lambda 2\pi N_\perp M_s^2 \sin^2 \theta dz = \pi \lambda N_\perp M_s^2 \quad (3.5)$$

L'épaisseur de la paroi est alors déterminée en minimisant l'énergie :

$$\frac{\partial(E_{\text{ex}} + E_{\text{dip}})}{\partial \lambda} = 0 = -\frac{A\pi^2}{\lambda^2} + \pi N_\perp M_s^2 \quad (3.6)$$

La solution de l'éq.(3.6) est:

$$\lambda = \sqrt{\frac{\pi}{N_\perp}} \sqrt{\frac{A}{M_s^2}} \quad (3.7)$$

En prenant $A=5.10^{-7}$ erg/cm [5] et $M_s^{(a)}= 360$ uem/cm³ pour YCo₂ et les valeurs de $N_\perp$ calculés dans le paragraphe précédent pour les différents échantillons, on obtient $\lambda \approx 500$ Å pour tous les échantillons.

Le champ de nucléation H_n associé à la formation de la paroi dans une nanocolonne isolée peut être ensuite estimé en égalant l'énergie Zeeman et les énergies dipolaire et d'échange :

$$M_s H_n \lambda = \pi \lambda N_\perp M_s^2 + \frac{A\pi^2}{\lambda} \quad (3.8)$$

En considérant $\lambda=500$ Å, la valeur du champ de nucléation est $H_n=1$ kOe. Il est intéressant de remarquer que cette valeur est inférieure au champ d'anisotropie déterminé expérimentalement.

3.3.3.2 Variation du champ coercitif avec la fluence

En première approximation, la valeur du champ coercitif de l'ensemble des nanoparticules peut être déterminée en considérant les interactions dipolaires entre nanocolonnes dans l'approximation du milieu continu:

$$H_c = H_n - 4\pi p(\Phi) M_s \quad (3.9)$$

Les valeurs calculées à partir de (3.9) sont comparées aux valeurs expérimentales dans la Fig.3.12 :

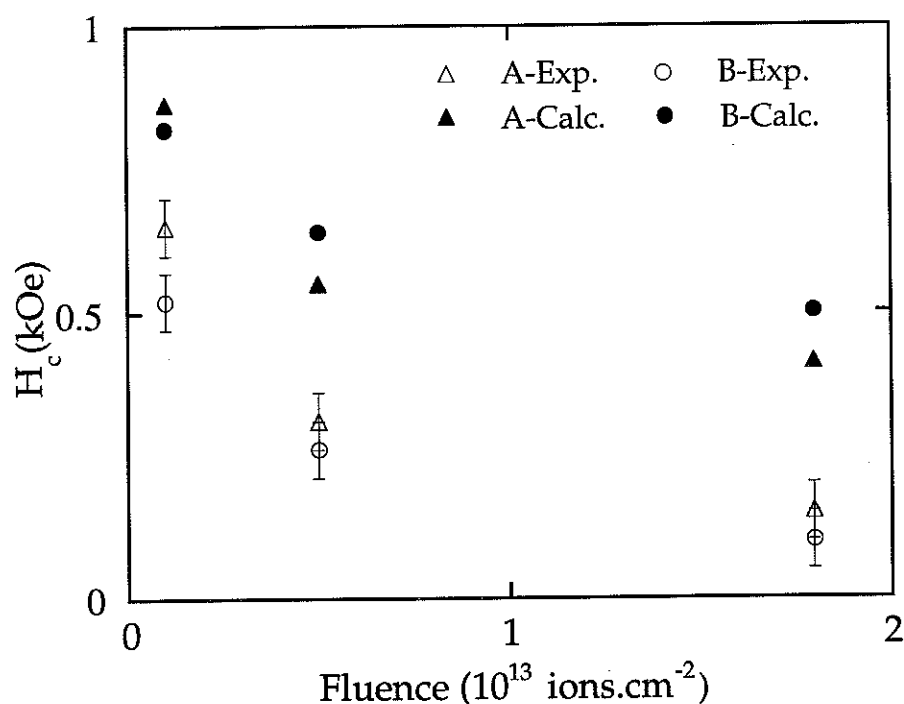


Fig.3.12 Points blancs: valeurs expérimentales du champ coercitif pour les échantillons A (triangles) et pour les échantillons B (cercles). Points noirs: valeurs calculées du champ coercitif pour les échantillons A (triangles) et pour les échantillons B (cercles).

3.3.3.3 Variation thermique du champ coercitif

La variation du champ coercitif avec la température a été déterminée pour les échantillons A1 et A'1 (Fig. 3.9). Dans les deux cas, la variation est beaucoup plus rapide que celle de H_A (Fig. 3.13). D'ailleurs, le fait que le champ coercitif de l'échantillon A'1 diminue plus rapidement de celui de A1, pourrait être une indication supplémentaire que la taille moyenne des nanoparticules obtenues en irradiant avec le Pb est inférieure à celle obtenue avec l'U.

Cela démontre que l'activation thermique joue un rôle important dans le mécanisme de renversement de l'aimantation, comme c'est le cas dans les processus non collectifs, du type de celui proposé dans le paragraphe précédent. En effet les effets d'activation ne peuvent jouer un rôle que si le retournement se passe sur un volume très petit. Pour vérifier cette hypothèse, des expériences de traînage magnétique sont en cours, qui permettront l'accès au volume d'activation dans lequel débute le retournement de l'aimantation.

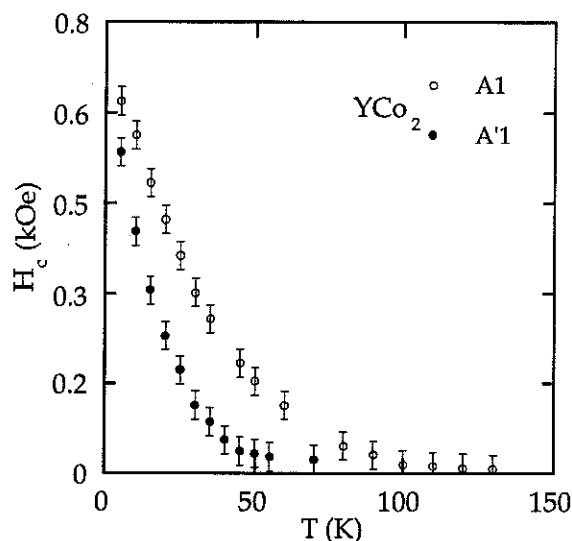


Fig.3.13 Variation thermique des champs coercitifs des échantillons A1 et A'1.

3.4 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons étudié les propriétés magnétiques de plusieurs couches minces polycristallines d'YCo₂, irradiées au GANIL avec des ions de Pb et d'U, d'énergie 1 et 0,88 GeV respectivement. L'irradiation stabilise des colonnes amorphes magnétiques de dimensions nanométriques ($\varnothing \approx 2$ nm).

Les nanocolonnes ont un moment magnétique à saturation d'environ 1 $\mu\text{B/at}(\text{Co})$ en accord avec la valeur d'YCo₂ amorphe massif, tandis que leur température d'ordre est considérablement réduite. Cet effet pourrait être lié à la dimensionnalité réduite de ces nanocolonnes.

Dans tous les échantillons irradiés à la plus faible fluence (10^{12} ions/cm²), une direction de facile aimantation perpendiculaire au plans des couches est observée. La contribution prédominante à cette anisotropie est une anisotropie de forme révélée expérimentalement en comparant la variation thermique de l'énergie d'anisotropie avec celle de M^2_s . Ce résultat est cohérent avec la formation de colonnes ferromagnétiques allongées dans la matrice d'YCo₂.

Une diminution progressive de l'anisotropie est observée en augmentant la fluence. En première approximation, cette variation a été discutée uniquement en termes d'interactions dipolaires entre les nanocolonnes à l'aide d'un modèle basé sur l'approximation du milieu continu. L'accord entre les valeurs ainsi calculées et les valeurs expérimentales est uniquement qualitatif. Les valeurs déterminées expérimentalement diminuent beaucoup

plus rapidement par rapport aux valeurs calculées. Ce désaccord pourrait être dû à l'existence d'interactions d'échange entre colonnes à travers la matrice paramagnétique, qui pourraient déterminer la formation de régions corrélées avec une aimantation moyenne importante.

Dans tous les échantillons irradiés à la plus faible fluence, nous avons observé des rapports H_C/H_A inhabituellement élevés. Pour interpréter ce résultat, nous avons discuté le renversement de l'aimantation dans les nanocolonnes en termes d'un processus de retournement non collectif, qui consiste en la nucléation et en la propagation d'une paroi de Néel à 180° . Les valeurs des champs coercitifs associés à un tel mécanisme ont été estimés. L'accord avec les valeurs expérimentales est raisonnablement bon, si l'on tient compte de la simplicité de l'hypothèse. La variation thermique du champ coercitif est extrêmement rapide, comme attendu dans un processus non collectif.

L'étude que nous avons effectué reste néanmoins incomplète. Il est indispensable d'obtenir une caractérisation plus détaillée de la taille et de la morphologie des traces. Plusieurs essais d'observation directe de traces par microscopie électronique en transmission ont été effectués sans succès soit par C. Jaouen de l'Université de Poitiers, soit par M. Aindow de l'Université de Birmingham.

Par ailleurs, des expériences de diffusion centrale des neutrons sont prévues en collaboration avec MM Fermon et Hans du Laboratoire L. Brillouin à Saclay. Suite à une expérience préliminaire dans laquelle la quantité de signal détecté était insuffisante, une nouvelle expérience d'irradiation sera effectuée en décembre prochain au GANIL pour irradier des échantillons de taille importante.

Références

1. K. Moorjani, J. M. D. Coey, *Magnetic Glasses*. S. P. Wolshky, A. W. Czaderna, Eds., (Elsevier, Amsterdam, 1984).
2. H. B. Callen, E. Callen, *J. Phys. Chem. Solids* **27**, 1271 (1966).
3. A. Barbu, A. Dunlop, D. Lesueur, S. Averback, *Europhys. Lett.* **15**, 37 (1991).
4. E. H. Frei, S. Shtrikman, D. Treves, *Phys. Rev.* **106**, 446 (1957).
5. B. Dieny, D. Givord, J. M. B. Ndjaka, *J. Magn. Magn. Mat.* **93**, 503 (1991).
6. M. E. Schabes, *J. Magn. Magn. Mat.* **95**, 249 (1991).

CHAPITRE 4

SYSTÈMES MAGNÉTIQUES HÉTÉROGÈNES OBTENUS PAR IRRADIATION D'IONS LOURDS

4.1 Mélange de phases magnétiques à l'échelle nanométrique: $\text{Ce}(\text{}^{57}\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x})_3$

4.1.1 Propriétés magnétiques avant irradiation.....	91
4.1.2 Rappel des échantillons irradiés et des résultats structuraux.....	93
4.1.3 Propriétés magnétiques après irradiation: résultats.	94
4.1.3.1 Variation thermique de l'aimantation à saturation	94
4.1.3.2 Cycles d'hystérésis en fonction de la température et de la ... fluence	94
4.1.4 Discussion.....	98

4.2 Piégeage des parois de Bloch dans des matériaux magnétiques durs irradiés

4.2.1 Introduction	100
4.2.2 Préparation des échantillons.....	100
4.2.3 Variation des propriétés magnétiques induite par l'irradiation.....	101

CHAPITRE 4

SYSTÈMES MAGNÉTIQUES HÉTÉROGÈNES OBTENUS PAR IRRADIATION D'IONS LOURDS

4.1 Mélange de phases magnétiques à l'échelle nanométrique: $\text{Ce}(\text{}^{57}\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x})_3$

4.1.1 Propriétés magnétiques avant irradiation

La cristallisation de la phase CeCo_3 a été obtenue pour une série d'échantillons initialement déposés avec la composition suivante (voir Chapitre 2):

$\text{Si}(100)/\text{Mo}(500 \text{ \AA})/\text{Ce}(\text{Co}_{1-x}\text{}^{57}\text{Fe}_x)_3(3700 \text{ \AA})/\text{Mo}(200 \text{ \AA})$ (échantillons F)

La Fig.4.3a montre la variation thermique de l'aimantation à saturation pour l'échantillon amorphe ainsi qu'après cristallisation. A basse température l'aimantation à saturation pour l'amorphe est de 200 uem/cm^3 , qui correspond à $1,5 \text{ } \mu\text{B/u.f.}$, en accord raisonnable avec la valeur de $1,8 \text{ } \mu\text{B/u.f.}$ reportée dans la littérature [1].

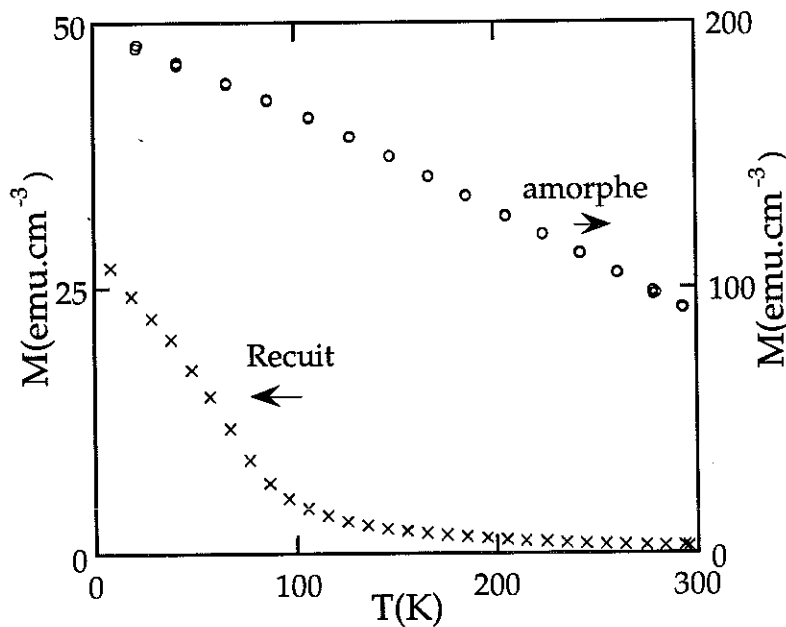


Fig. 4.1 Variation thermique de l'aimantation à saturation ($H = 10 \text{ kOe}$) pour l'échantillon amorphe et pour le même échantillon cristallisé après recuit à 600°C .

Pour le même échantillon après la cristallisation, le moment magnétique à saturation et la température d'ordre sont considérablement réduits par rapport à l'échantillon amorphe. On observe un moment magnétique à saturation de $0,24 \mu_B/\text{u.f.}$, et une température d'ordre de 100 K environ. Ces valeurs sont légèrement supérieures aux valeurs de $\mu_s = 0,2 \mu_B/\text{u.f.}$ et de $T_c = 78 \text{ K}$ reportées dans la littérature pour CeCo_3 massif [2]. Ce désaccord peut être attribué à la présence de fer en faible quantité dans la couche. L'analyse de rayonnement X de fluorescence n'a pu mettre en évidence la présence de fer ; la fraction x de fer présente est donc inférieure à la sensibilité de l'instrument, soit $x \leq 0,05$.

La Fig. 4.2a montre les cycles d'hystérésis pour l'échantillon amorphe avec le champ magnétique appliqué dans les directions parallèle et perpendiculaire au plan de la couche. Les mesures ont été effectuées à $T = 10 \text{ K}$. Une susceptibilité très importante est observée lorsque le champ magnétique est appliqué dans le plan de la couche. Dans le cas où le champ magnétique est appliqué perpendiculairement au plan de la couche, l'aimantation est saturée pour un champ d'environ 2,2 kOe qui correspond à la valeur du champ démagnétisant des couches minces $H_d = 4\pi M_s = 2,5 \text{ kOe}$. L'anisotropie magnétocristalline peut être négligée par rapport à l'anisotropie de forme.

La Fig. 4.2b montre les mêmes cycles mesurés pour l'échantillon cristallisé. Le champ de saturation dans le plan de la couche est plus faible que celui mesuré dans la direction perpendiculaire au plan de la couche. Un champ coercitif considérable ($H_c = 6,4 \text{ kOe}$) est mesuré dans le plan, associé à l'anisotropie magnétocristalline de CeCo_3 .

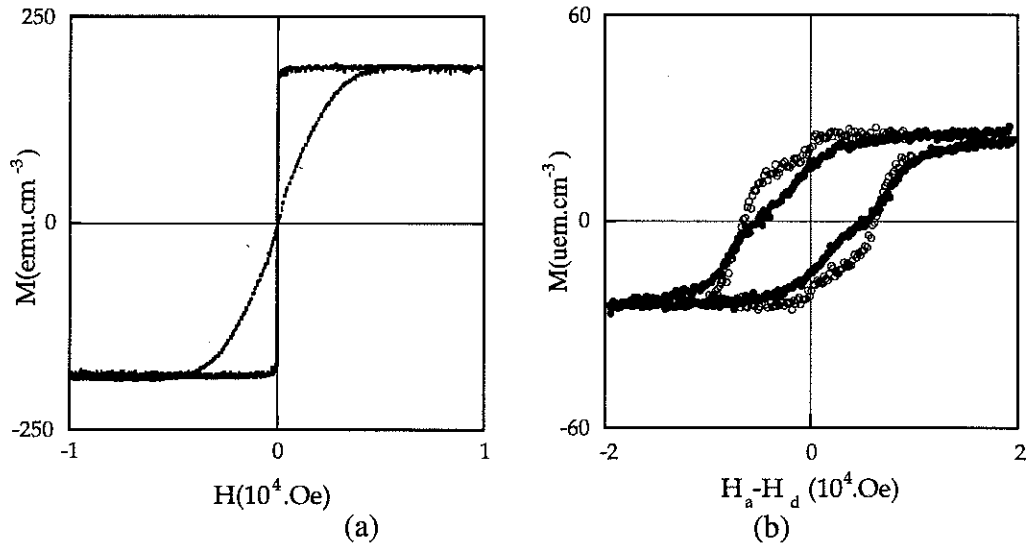


Fig. 4.2 (a) Cycles d'hystérésis pour $T = 10 \text{ K}$ sur l'échantillon amorphe avec le champ appliqué parallèle (trait continu) et perpendiculaire (trait pointillé) au plan de la couche; (b) cycles d'hystérésis pour $T = 10 \text{ K}$ pour le même échantillon recuit à 600°C avec le champ appliqué parallèle (points blancs) et perpendiculaire (points noirs) au plan de la couche.

4.1.2 Rappel des échantillons irradiés et des résultats structuraux

Les échantillons cristallisés ont été irradiés sur la ligne Haute Énergie du GANIL avec des ions de ^{208}Pb de 5 GeV d'énergie. Des fluences de 10^{12} ions/cm² (échantillon E1), 5.10^{12} ions/cm² (échantillon E2) et 10^{13} ions/cm² (échantillon E3) ont été obtenues. Le tableau 4.1 montre les sections efficaces d'amorphisation et de recristallisation déduites par un ajustement des données expérimentales basé sur le modèle d'amorphisation / recristallisation décrit au Chapitre 2. Les diamètres obtenus en faisant l'hypothèse que les traces sont continues sur l'épaisseur de la couche sont aussi reportés.

	$\sigma_a(\text{cm}^2)$	$\sigma_r(\text{cm}^2)$	$D_1(\text{\AA})$	$D_2(\text{\AA})$
CeCo ₃	$6.99.10^{-14}$ ($6.78.10^{-15}$)	$4.60.10^{-13}$ ($6.33.10^{-14}$)	30 (3)	77 (11)

Tab. 4.1 Sections efficaces d'amorphisation et de recristallisation obtenues par un ajustement des valeurs $p_d(\Phi)$ obtenues par mesures magnétiques et par mesures de rayons X. Les erreurs calculées pour chaque paramètre sont données entre parenthèses.

4.1.3 Propriétés magnétiques après irradiation: résultats.

4.1.3.1 Variation thermique de l'aimantation à saturation

La variation de l'aimantation à saturation en fonction de la température a été mesurée pour les échantillons irradiés à toutes les fluences (Fig.4.3). L'aimantation augmente avec la fluence, ce qui est cohérent avec la précipitation d'une phase amorphe d'aimantation plus importante que celle de la matrice cristalline. De fait, dans les échantillons irradiés on observe la coexistence à basse température de deux phases magnétiques: la matrice ($T_c = 100$ K, environ) et les nanoparticules amorphes ($T_c > RT$). La fraction volumique amorphisée $p'_a(\Phi) = M_s(\Phi)/M_s^{(a)}$ est en accord avec la fraction $p_a(\Phi)$ déterminée par mesures de diffraction de rayons X (voir Chapitre 2). Cette valeur est déduite à 100 K (où seules les nanoparticules amorphes sont magnétiques) après correction de la valeur de l'aimantation résiduelle mesurée dans l'échantillon non irradié.

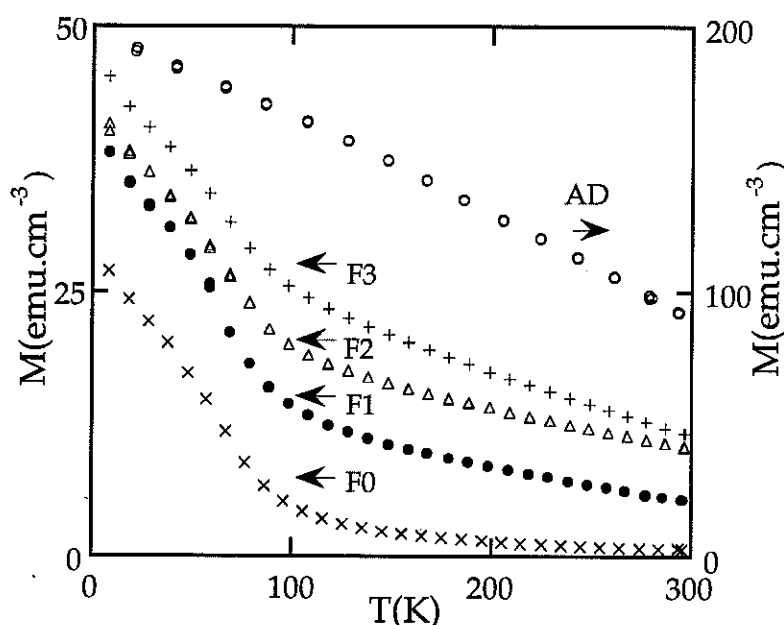


Fig.4.3 Variation thermique de l'aimantation à saturation pour les échantillons irradiés aux fluences de 10^{12} ions/cm² (F1), 5.10^{12} ions/cm² (F2) et 10^{13} ions/cm² (F3). Les variations thermiques des aimantations à saturation de l'échantillon non irradié (F0) et de l'échantillon tout amorphe (AD) sont représentées pour référence.

4.1.3.2 Cycles d'hystérésis en fonction de la température et de la fluence

Les Fig. 4.4, 4.5 et 4.6. pages suivantes montrent les cycles d'hystérésis à différentes températures pour les échantillons F1, F2 et F3 et pour l'échantillon non irradié F0, avec le champ magnétique appliqué parallèlement et perpendiculairement au plan de la couche.

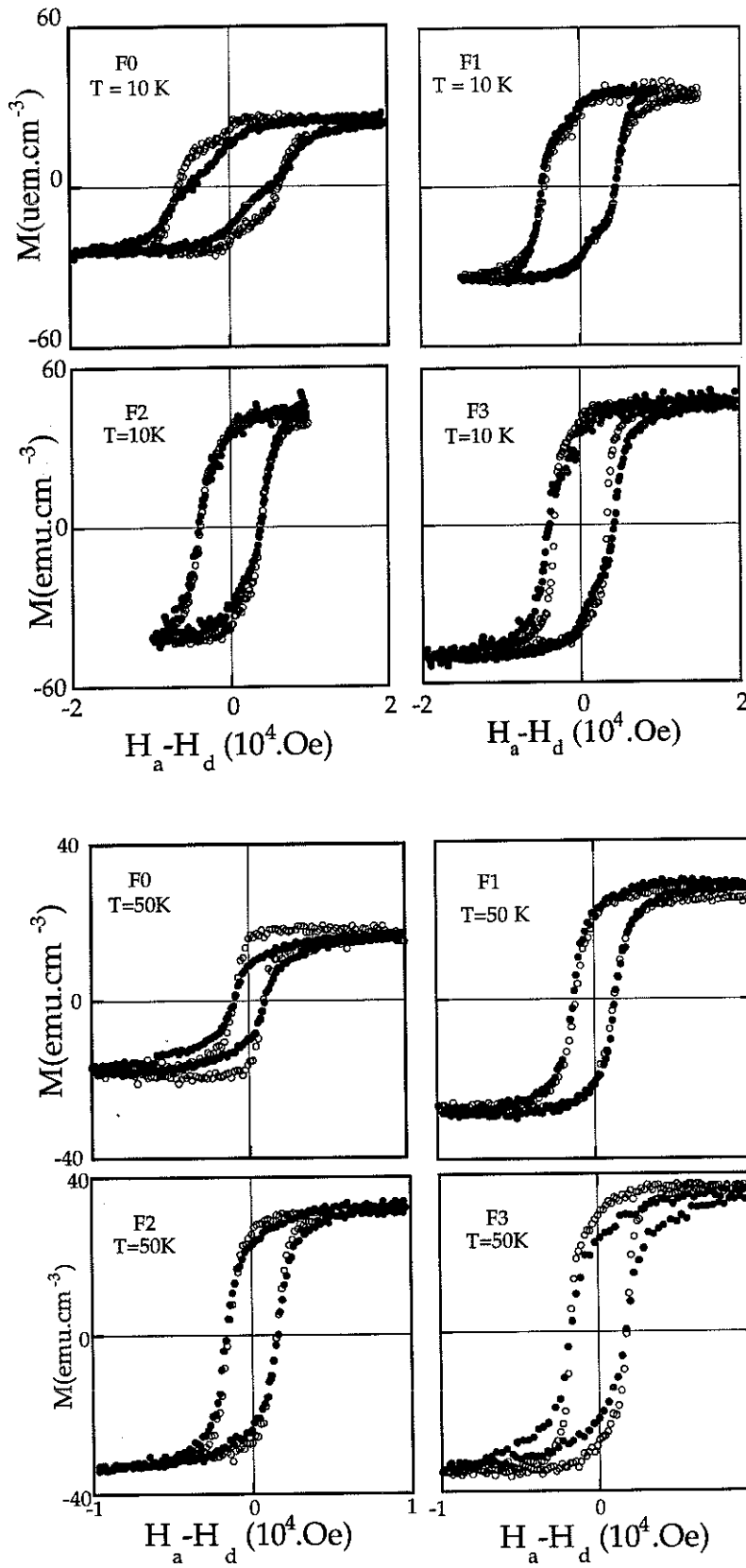


Fig. 4.4 Point blancs: cycles d'hystérésis à $T = 10 \text{ K}$ et $T = 50 \text{ K}$ avec le champ magnétique appliqué dans le plan de la couche pour les échantillons F0 (non irradié), F1 ($10^{12} \text{ ions/cm}^2$), F2 ($5 \cdot 10^{12} \text{ ions/cm}^2$), F3 ($10^{13} \text{ ions/cm}^2$). Point noirs: cycles d'hystérésis à $T = 10 \text{ K}$ et $T = 50 \text{ K}$ pour les mêmes échantillons avec le champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan de la couche.

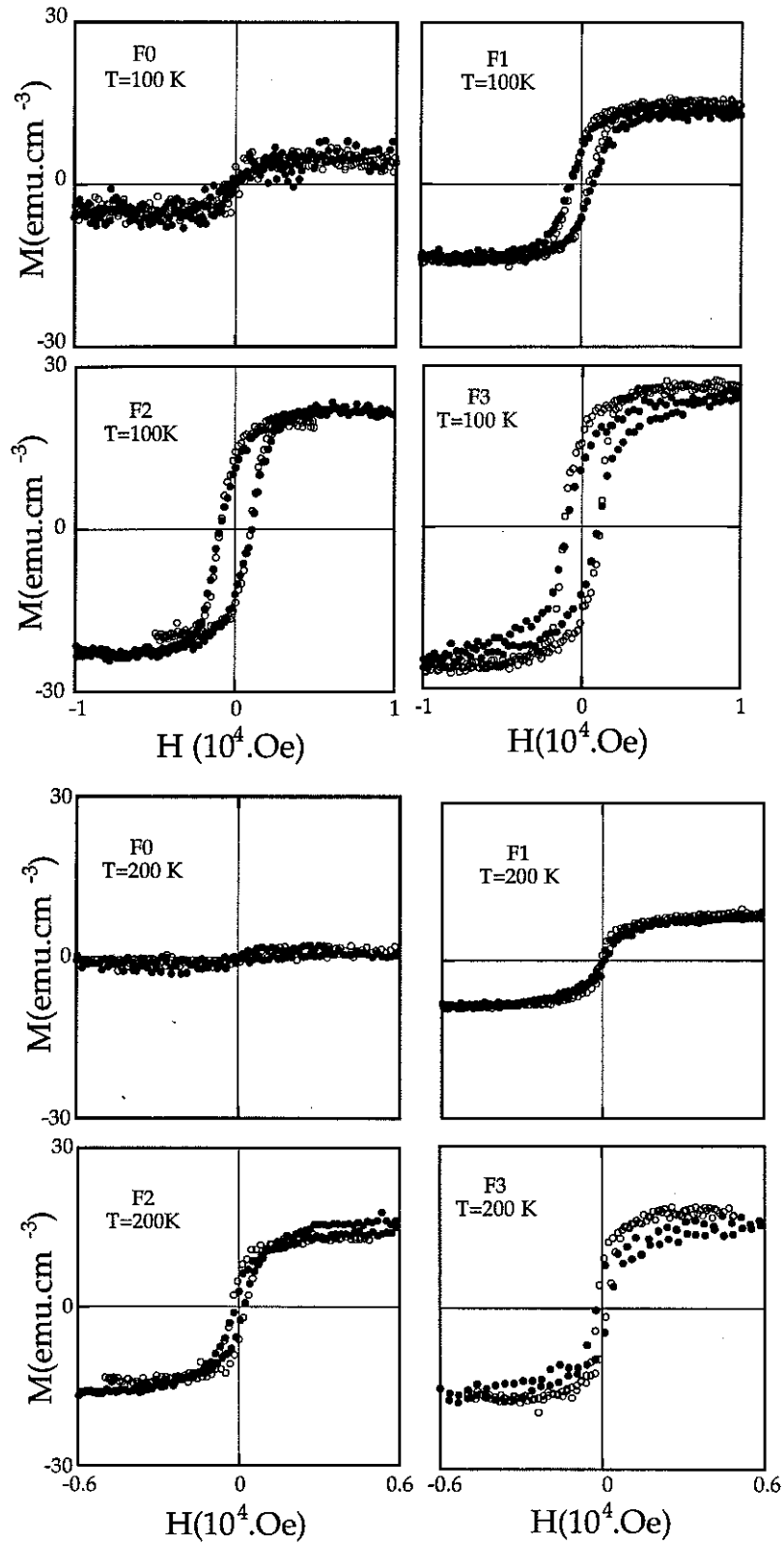


Fig. 4.5 Point blancs: cycles d'hystérésis à $T=100$ K et à $T=200$ K avec le champ magnétique appliqué dans le plan de la couche pour les échantillons F0 (non irradié), F1 (10^{12} ions/cm²), F2 ($5 \cdot 10^{12}$ ions/cm²), F3 (10^{13} ions/cm²). Point noirs: cycles d'hystérésis à $T=100$ K et à $T=200$ K pour les mêmes échantillons avec le champ magnétique appliqué perpendiculairement au plan de la couche.

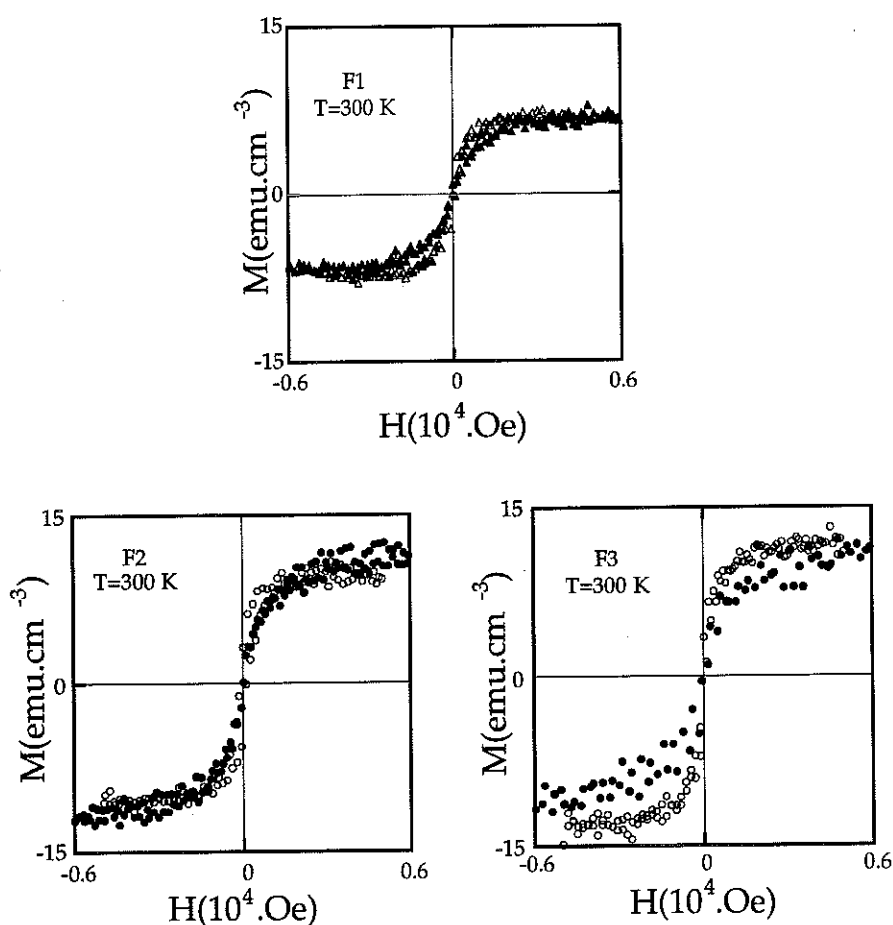


Fig. 4.6 Point blancs: cycles d'hystérésis à $T=300$ K avec le champ magnétique appliqué dans le plan de la couche pour les échantillons F1 (10^{12} ions/cm²), F2 (5.10^{12} ions/cm²), F3 (10^{13} ions/cm²). Point noirs: cycles d'hystérésis à $T=300$ K pour les mêmes échantillons avec le champ magnétique appliqué perpendiculaire au plan de la couche.

A toutes les températures, l'aimantation à saturation augmente avec la fluence. A partir de $T = 100$ K, qui correspond à la température d'ordre de la matrice cristalline, une faible contribution ferromagnétique est observée dans l'échantillon E0 non irradié. En revanche les échantillons irradiés sont bien ferromagnétiques.

A toutes les températures et pour tous les échantillons, aucune direction de facile aimantation n'est clairement observée. En revanche, la variation du champ coercitif avec la fluence change avec la température. A $T=10$ K, la coercitivité diminue progressivement avec la fluence, tandis qu'à partir de $T = 50$ K elle augmente.

4.1.4 Discussion

L'étude de ce système est encore dans sa phase initiale. Nous nous limitons donc à proposer une explication qualitative des phénomènes observés.

La variation thermique de l'aimantation à saturation montre que l'irradiation a stabilisé une phase ferromagnétique supplémentaire, avec une température d'ordre supérieure à celle de la matrice cristalline. Le moment magnétique à saturation observé dans les échantillons irradiés pour $T > 100$ K à partir des mesures magnétiques et de l'analyse structurale effectuée au Chapitre 2, correspond assez bien à la valeur mesurée dans CeCo_3 amorphe.

Les échantillons irradiés sont donc des mélanges d'une phase "dure" (la matrice cristalline résiduelle), avec un champ coercitif $H_c = 6,4$ kOe et une aimantation à saturation faible ($M_s = 35$ uem/cm³, à basse température), et d'une phase "douce" (CeCo_3 amorphe) avec un champ coercitif négligeable (Fig. 4.1a), mais avec une aimantation à saturation beaucoup plus élevée (200 uem/cm³, à basse température).

L'analyse des cycles d'hystérésis pour les échantillons irradiés montre que le système se comporte de façon homogène à toutes les températures. Le renversement de l'aimantation a lieu pour une valeur de H unique, alors que dans un système magnétiquement hétérogène on observerait deux sauts d'aimantation correspondant aux champs coercitifs individuels des différentes phases. Ce comportement s'explique par les faibles dimensions des nanoparticules, comparables à la longueur caractéristique de l'interaction d'échange, de l'ordre du nanomètre. Les deux phases sont donc couplées par interaction d'échange et un effet de moyenne sur leurs propriétés est observé: M_s augmente lorsque H_c diminue. Des effets similaires ont été récemment observés dans les matériaux nanostructurés massifs obtenus par trempe sur roue, couramment appelés "spring-magnets" [3].

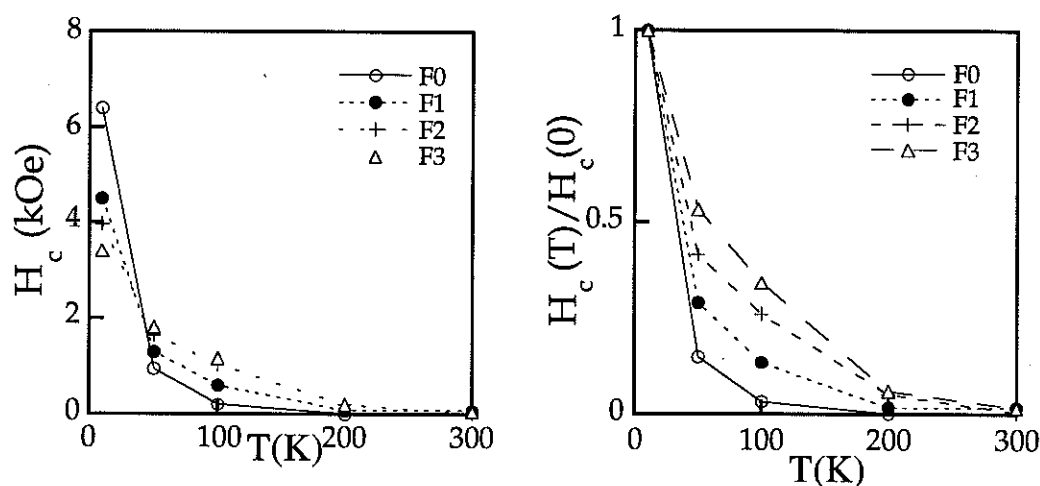


Fig.4.7 Variation thermique du champ coercitif des échantillons irradiés comparée avec celle de l'échantillon non irradié.

La fig.4.7 montre la variation thermique du champ coercitif pour les échantillons irradiés et pour l'échantillon non irradié de référence. La variation thermique est extrêmement rapide dans l'échantillon E0, elle est plus lente dans les échantillons irradiés, et d'autant plus lente que la fluence augmente. La variation thermique du champ coercitif de l'échantillon E0 non irradié est typique d'une évolution liée à la variation thermique de l'anisotropie magnétocristalline.

Puisque le matériau se comporte de manière homogène, on peut comprendre la variation moins brutale du champ coercitif lorsque la fluence augmente, si l'on suppose que la variation thermique du champ coercitif des nanocolonnes amorphes est plus lente de celle de la matrice. Cet argument paraît justifié au regard de la différence importante de températures d'ordre entre l'état amorphe et l'état cristallin.

Le fait que le champ coercitif continue à augmenter avec la fluence même au dessus de la température d'ordre de la matrice implique la persistance d'interactions d'échange entre particules à travers la matrice faiblement ferromagnétique où paramagnétique. L'effet du couplage ferromagnétique à travers un milieu paramagnétique, qui est bien connu dans les multicouches (du type Fe / Cr / Fe, par exemple)[4], a été récemment mis en évidence par Hernando et Kulik dans des nanocristaux ferromagnétiques dispersés dans une matrice amorphe paramagnétique [5].

Par rapport à YCo_2 irradié, il semblerait donc que les interactions d'échange entre les nanoparticules prédominent par rapport aux interactions dipolaires, dont l'effet serait plutôt de faire diminuer le champ coercitif avec la fluence. Cela peut se comprendre en supposant que la susceptibilité paramagnétique de la matrice cristalline de CeCo_3 est plus élevée que celle d' YCo_2 , puisque CeCo_3 est ferromagnétique, alors que YCo_2 est paramagnétique de Pauli. D'autre part, l'aimantation à saturation de CeCo_3 amorphe est réduite d'un facteur deux environ par rapport à celle d' YCo_2 amorphe. Si l'on considère que la distance moyenne entre les nanoparticules est à peu près la même (en accord avec les fractions volumiques amorphisées comparables pour les trois fluences), cela implique que l'énergie associée aux interactions dipolaires entre les nanocolonnes de CeCo_3 est quatre fois plus faible par rapport aux nanocolonnes d' YCo_2 .

4.2 Piégeage des parois de Bloch dans des matériaux magnétiques durs irradiés

4.2.1 Introduction

Dans les matériaux magnétiques durs, les défauts structuraux jouent un rôle important dans les mécanismes de renversement de l'aimantation. Ils peuvent à la fois agir comme sites de nucléation ou comme sites de piégeage d'une paroi de Bloch. Dans le premier cas, ils réduisent la valeur du champ coercitif, dans le deuxième ils l'augmentent.

Deux paramètres importants sont à considérer pour estimer le rôle de défauts: leurs dimensions et leur densité.

Nous avons irradié deux matériaux magnétiques durs: SmCo_5 et $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$.

Le premier est un matériau très utilisé dans la fabrication des aimants permanents et reste coercitif même à l'état de lamelle mince (c'est n'est pas le cas de $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$, par exemple). Le second est un matériau d'anisotropie élevée, mais dont le champ coercitif obtenu par les techniques classiques de préparation est encore trop faible pour les applications. L'irradiation de $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ a été proposée par N. Dempsey et J.M.D. Coey du Trinity College de Dublin. Les expériences d'irradiation de ce composé ont été effectuées en collaboration avec N. Dempsey, dans le cadre de sa thèse de doctorat qui concerne les processus de durcissement magnétique de $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$.

4.2.2 Préparation des échantillons

$\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$

Les échantillons ont été préparés à Trinity College sous forme de poudres isotropes par nitruration à haute température d'un alliage $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ massif [6]. Afin d'obtenir des épaisseurs suffisamment minces, les poudres, mélangées à de la résine, ont été sandwichées entre deux feuilles d'aluminium. Le tout a été ensuite laminé à froid jusqu'à une épaisseur totale d'environ 80 μm , qui correspond à la profondeur de pénétration des ions de Pb de haute énergie, que nous avons préalablement calculée avec le code TRIM.

Les échantillons ont été ensuite caractérisés magnétiquement avant irradiation. Un champ coercitif $H_c = 4,5 \text{ kOe}$ a été observé.

SmCo_5

Les aimants SmCo_5 ont été fournis par la société UGIMAG. Il s'agit d'aimants anisotropes préparés par métallurgie des poudres. Nous avons coupé les aimants par électroérosion en lamelles minces d'épaisseur 200 μm . Ensuite nous les avons amincis par polissage mécanique jusqu'à des épaisseurs comprises entre 80 et 100 μm , qui correspondent *grosso modo* à la profondeur de pénétration des ions de Pb de haute énergie, que nous avons préalablement calculée avec le code TRIM.

Les échantillons ont été ensuite caractérisés magnétiquement avant irradiation. Un champ coercitif de $H_c = 35$ kOe a été mesuré.

4.2.3 Variation des propriétés magnétiques induite par l'irradiation

Les échantillons ont été irradiés sur la ligne haute énergie du G.A.N.I.L. avec des ions de ^{208}Pb d'énergie 5 GeV. Les fluences de 10^8 ions/cm², 10^9 ions/cm², 10^{10} ions/cm², 10^{11} ions/cm², 10^{12} ions/cm² et 10^{13} ions/cm² ont été obtenues.

L'analyse des résultats sur les échantillons irradiés est encore à un stage préliminaire aussi bien du point de vue structural que du point de vue magnétique. Le but de cette discussion est donc simplement de mettre en évidence la nature des phénomènes d'un point de vue entièrement qualitatif.

Sm₂Fe₁₇N₃:

Des expériences de spectroscopie Mossbauer effectuées au Trinity College montrent une faible fraction volumique amorphisée, de l'ordre de 3% dans l'échantillon irradié à 10^{13} ions/cm² [7]. Le champ coercitif a été déterminé en fonction de la fluence pour tous les échantillons irradiés et comparés avec le champ coercitif de l'échantillon non irradié. Aucune variation significative n'est mesurée, jusqu'à la fluence de 10^{13} ions/cm² où une augmentation très importante du champ coercitif est observée, comme le montrent les figures 4.8 ci-dessous.

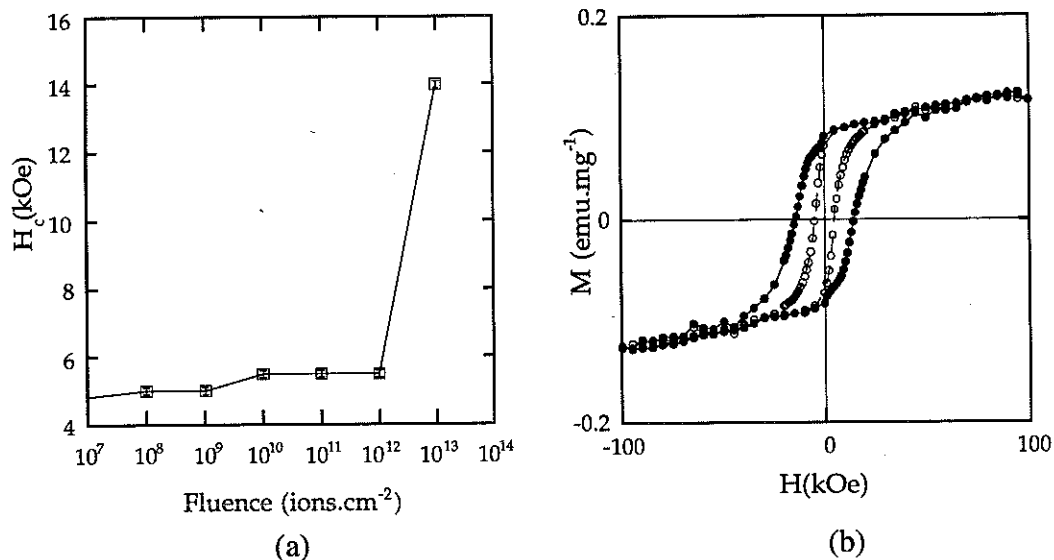


Fig. 4.8 (a) Variation du champ coercitif en fonction de la fluence pour les échantillons *Sm₂Fe₁₇N₃* irradiés. La valeur pour le champ coercitif de l'échantillon non irradié est $H_c = 4.5$ kOe. (b) Cycles d'hystérésis à $T = 5$ K pour l'échantillon irradié à 10^{13} ions/cm² (points noirs) et pour l'échantillon non irradié (point blancs).

Les figures 4.9 montrent les courbes de première aimantation pour l'échantillon non irradié et pour les échantillons irradiés à 10^{11} ions/cm², 10^{12} ions/cm² et 10^{13} ions/cm². Dans l'échantillon de référence, la susceptibilité initiale est élevée, ce qui correspond au libre déplacement des parois de Bloch. Dans les échantillons irradiés, on observe une diminution de la susceptibilité initiale, qui est faible pour les échantillons irradiés à 10^{11} et 10^{12} ions/cm², mais très prononcée pour l'échantillon irradié à 10^{13} ions/cm². Ce comportement peut être attribué au piégeage des parois de Bloch par les défauts induits par irradiation.

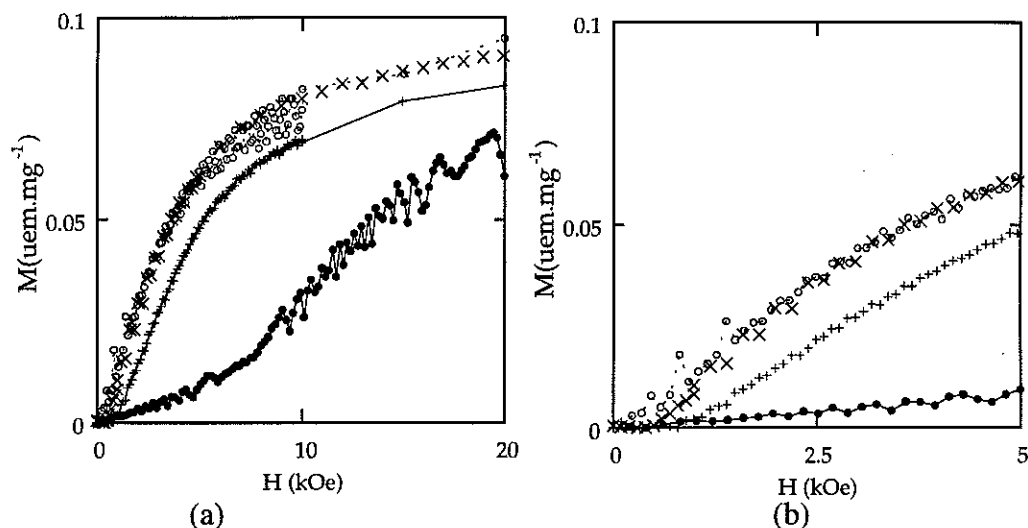


Fig.4.9 (a) Courbes de première aimantation à $T = 5$ K pour l'échantillon non irradié (point blancs), pour l'échantillon irradié à 10^{11} ions/cm² (croix grecques), pour l'échantillon irradié à 10^{12} ions/cm² (croix latines) et pour l'échantillon irradié à 10^{13} ions/cm² (points noirs);
(b) Vue détaillée : l'augmentation progressive du champ de dépiégeage est visible.

Le champ de dépiégeage, défini comme le champ correspondant à la discontinuité observée dans la courbe de première aimantation, augmente quand la fluence, et donc la densité des défauts, augmentent.

Cela suggère que tant que le champ de dépiégeage est inférieur au champ coercitif de l'échantillon non irradié, les défauts induits par irradiation n'interviennent pas de façon significative dans les mécanismes de renversement de l'aimantation. Lorsque le champ de dépiégeage devient supérieur au champ coercitif de l'échantillon non irradié, le piégeage des parois par les défauts induits par l'irradiation devient prédominant.

La valeur du champ coercitif pour l'échantillon irradié à 10^{13} ions/cm² a été estimée dans le cadre du modèle de Gaunt [8] adapté à des défauts de géométrie cylindrique. En utilisant la valeur de la fraction volumique amorphisée déterminée par spectroscopie Mossbauer, on trouve une valeur de $H_c = 13$ kOe pour des défauts de diamètre 5 nm environ [7].

Les échantillons de SmCo₅ ont été caractérisés uniquement du point de vue magnétique. Aucune variation significative de la coercivité n'a été observée. Dans les courbes de première aimantation effectuées en direction facile sur les échantillons irradiés, on observe cependant une très faible augmentation du champ de dépiégeage avec la fluence d'irradiation. Pour toutes les fluences, la valeur du champ de dépiégeage reste quand même une fraction négligeable du champ coercitif. Comme l'anisotropie magnétocristalline de SmCo₅ est plus importante que celle de Sm₂Fe₁₇N₃, tandis que l'aimantation à saturation est plus faible, on s'attendrait, à endommagement égal, à observer des effets plus importants. Il semble donc que SmCo₅ soit très peu sensible à l'irradiation. Cet argument pourra être confirmé par des mesures de diffraction de rayons X.

Références

1. D. Malterre, J. Durand, A. Siari, G. Marchal, *J. de Physique* C8 **S12-49**, 1359 (1988).
2. R. Lemaire, e. al, *J. Phys. Chem. Solids* **28**, 2471 (1967).
3. R. Coehoorn, D.B. d. Mooij, J.P.W. Duchateau, K.H.J. Buschow, *J. de Physique* **49**, 669 (1988).
4. P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M.B. Brodsky, H. Sowers, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 2442 (1986).
5. A. Hernando, T. Kulik, *Phys. Rev. B* **49**, 7064 (1994).
6. J. M. D. Coey, H. Sun, *J. Mag. Mag. Mat.* **87**, L251 (1990).
7. N. Dempsey, J. P. Nozières, J. M. D. Coey, M. Ghidini, D. Givord, I. A. Campbell, *à paraître*
8. P. Gaunt, *Phil. Mag. B* **48**, 261 (1983).

CONCLUSION

Plusieurs composés intermétalliques ont été élaborés sous forme de couche minces polycristallines par pulvérisation cathodique et traitement thermique ex-situ. Ces composés ont ensuite été irradiés au GANIL avec des faisceaux de ^{208}Pb ou ^{238}U d'énergie 1-5 GeV.

L'endommagement induit par l'irradiation a été caractérisé par mesures magnétiques et par mesures de diffraction de rayons X. Une amorphisation induite par irradiation des alliages YCo_2 , YCo_3 et CeCo_3 a été observée. Dans l'alliage TmCo_2 , aucune amorphisation ou modification structurale n'ont été mises en évidence après irradiation. Dans CeCo_2 , aucune amorphisation n'a été mise en évidence, tandis que la stabilisation d'une phase cristalline métastable a été observée. Cette phase n'a pu être identifiée.

La variation de la fraction amorphisée avec la fluence est similaire pour YCo_2 , YCo_3 et CeCo_3 . Les fractions amorphisées saturent à des valeurs dont l'ordre de grandeur pour les trois composés est 15%, donc bien avant l'amorphisation totale des échantillons. Pour expliquer ce comportement, un modèle phénoménologique associant amorphisation et recristallisation a été proposé. Ce modèle a permis d'estimer les diamètres des traces entre 2 et 3 nm.

Plusieurs tentatives d'observation directe de traces dans YCo_2 par microscopie électronique ont été effectuées sans succès par C. Jaouen de l'Université de Poitiers et M. Aindow de l'Université de Birmingham. Des expériences de diffusion neutronique aux petits angles ont été effectuées sans succès à Saclay, en collaboration avec C. Fermon. D'autres expériences de diffusion neutronique sont actuellement en préparation.

La différence de comportement sous irradiation observée dans les divers composés a été interprétée par des simulations numériques basées sur le modèle de la pointe thermique. Un bon accord qualitatif avec l'expérience a été obtenu.

Les propriétés magnétiques du système YCo_2 irradié ont été étudiées en détail. L'ensemble des résultats est cohérent avec la formation par irradiation de nanocolonnes magnétiques allongées. Une direction de facile aimantation perpendiculaire au plan de la couche a été observée. L'anisotropie est de forme uniquement. La variation du champ anisotropie a été qualitativement décrite par un modèle qui tient compte des interactions dipolaires entre les nanoparticules.

Des valeurs inhabituellement élevées du rapport H_C/H_A ont été observées et interprétées à l'aide d'un mécanisme original de retournement de l'aimantation cohérent avec les dimensions latérales réduites des nanocolonnes.

L'étude des propriétés magnétiques du système CeCo_3 n'a pu être complètement exploitée. Nous avons mis en évidence l'existence d'un comportement homogène dans le système formé de deux phases magnétiques couplées par des interactions d'échange inter-particules : la matrice cristalline résiduelle et les nanoparticules amorphes induites par irradiation. C'est l'effet dit de "spring-magnet".

Dans le cadre d'une collaboration avec N. Dempsey, J.M.D. Coey et I.A. Campbell, des échantillons massifs de SmCo_5 et $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ ont été irradiés avec du ^{208}Pb de 5 GeV d'énergie. La caractérisation des effets de l'irradiation dans ces systèmes est encore à un stade préliminaire. Néanmoins une augmentation remarquable du champ coercitif avec la fluence a été observée dans $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ et interprété comme dû au piégeage des parois de Bloch par les défauts structuraux induits par irradiation.

