

Deuxième Thèse

présentée à

l'Université Scientifique et Médicale de Grenoble

pour obtenir le grade de

Docteur ès-Sciences Physiques

par

Bernard BARBARA

PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES DES SUBSTANCES AMORPHES

soutenu le 1er juin 1972 devant la commission d'Examen

MM. L. NÉEL

Président

C. BÉCLE

R. LEMAIRE

R. PAUTHENET

M. SOUTIF

Examineurs

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

La structure de la matière est intermédiaire entre l'état d'ordre total des cristaux idéaux et de désordre complet des gaz parfaits. Le désordre est principalement dû à l'agitation thermique des atomes dont l'amplitude de vibration croît avec la température. Au-dessus de la température de fusion l'ordre à grande distance disparaît, il est remplacé par un ordre à courte distance. Alors que l'ordre d'un cristal est limité par les fluctuations thermiques, le désordre d'un liquide est limité par la dimension finie des atomes ou molécules. Au-dessus de la température d'ébullition, la densité est faible, le volume propre de chaque atome ou molécule devient négligeable : le désordre est total.

Les états solides, liquides ou gazeux sont en équilibre thermodynamique. A l'aide de certains artifices, il est possible de préparer des états intermédiaires hors d'équilibre qui correspondent aux structures amorphes. En effet, si un liquide est porté brutalement à une température inférieure à sa température de solidification, les atomes ou molécules qui le constituent peuvent se figer dans les positions qu'ils avaient juste avant la trempe. Tout comme un liquide, une substance amorphe présente un ordre à courte distance caractérisé par la fonction de distribution radiale des atomes par rapport à un atome donné, (figure 1).

Les substances amorphes magnétiques ont fait l'objet d'études théoriques et expérimentales. Le ferromagnétisme de ces substances a été prévu par Gubanov⁽¹⁾ (1960), puis Handrich⁽²⁾ (1969). Le premier modèle est fondé sur la décomposition d'un ensemble de moments magnétiques en couples parallèles et anti-parallèles. La stabilité du système dépend du compromis entre l'énergie d'agitation thermique et l'énergie d'échange ; celle-ci est fonction de la nature du couple et de la distance entre les

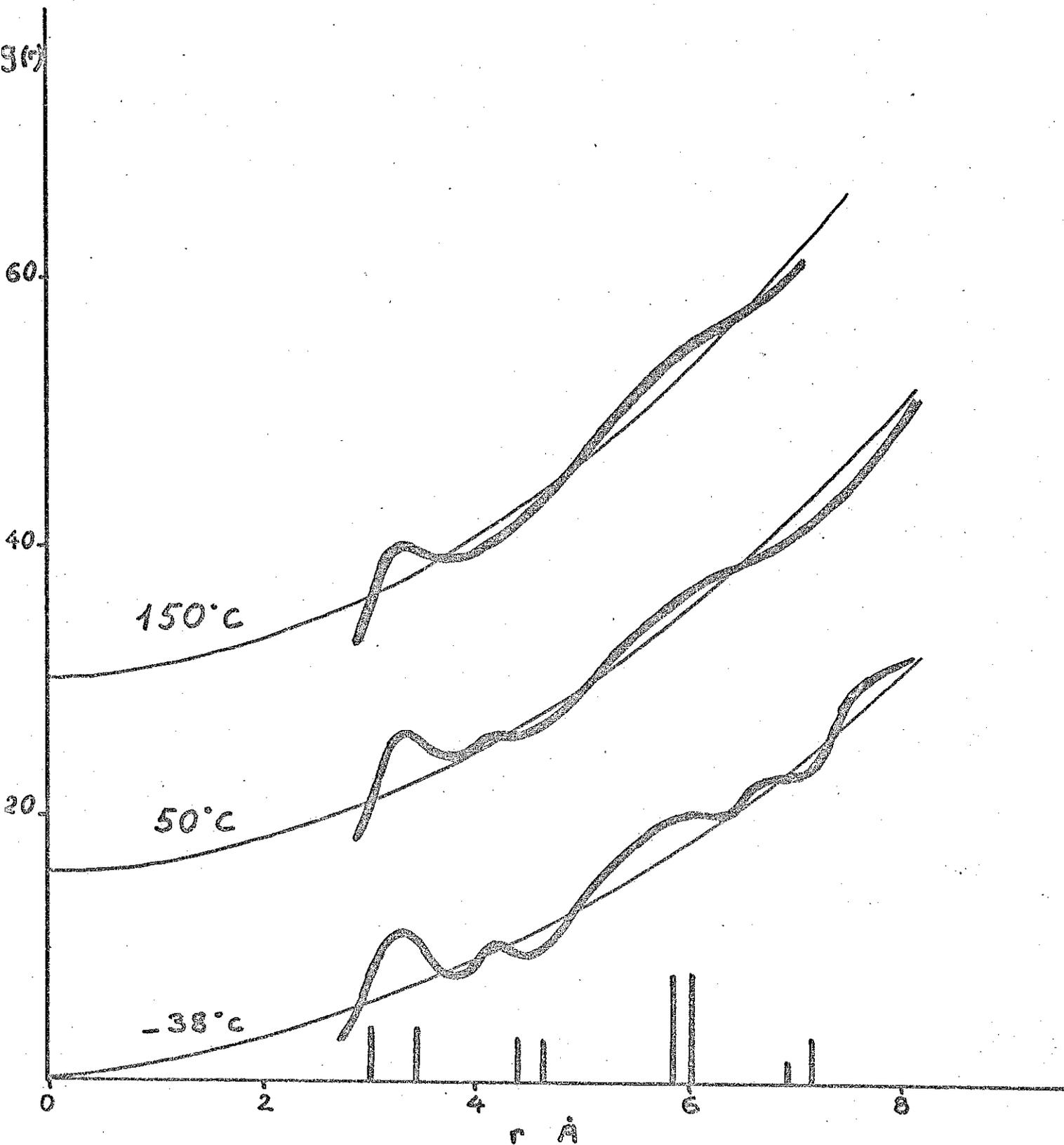


Figure 1 : Distribution radiale des atomes de mercure à l'état solide et à l'état liquide. Les courbes en trait fin représentent une distribution uniforme.

deux atomes le constituant. Dans le second modèle, proposé par Handrich, les fluctuations structurales de la substance amorphe conduisent à des fluctuations des intégrales d'échange, et donc à un abaissement systématique du caractère ferromagnétique par rapport à celui de l'état cristallisé. Deux études récentes traitent de l'antiferromagnétisme des substances amorphes (Hasegawa⁽³⁾ et Simpson⁽⁴⁾). La première est une adaptation du modèle ferromagnétique de Handrich. La seconde repose sur le calcul de la fonction de distribution du champ moléculaire agissant sur chaque moment magnétique.

Depuis 1965, un certain nombre de mesures magnétiques ont été effectuées. Mais les résultats expérimentaux les plus significatifs sont très récents. Le ferromagnétisme et l'antiferromagnétisme des substances amorphes ont été mis en évidence. Les modèles théoriques précédemment avancés sont qualitativement vérifiés. Cependant, l'étude approfondie du magnétisme des substances amorphes est souvent rendue difficile par le manque d'informations sur les données structurales.

C H A P I T R E I

PREPARATION ET STRUCTURE DES SUBSTANCES AMORPHES

Afin d'empêcher la croissance des cristaux, la préparation d'une substance amorphe nécessite l'utilisation de techniques particulières ; chacune d'elles conduit à une substance de structure intime différente. Récemment Roy⁽⁵⁾ a proposé une classification des substances amorphes suivant leur mode de préparation.

1 - PREPARATION

Les substances amorphes peuvent être élaborées à partir de solides cristallisés, de liquides ou de gaz.

Un matériau cristallisé peut se désordonner s'il est soumis à un bombardement de neutrons, de particules alpha ou de noyaux plus lourds. L'effet de contraintes lors d'un broyage peut conduire au même résultat. Une troisième méthode consiste en l'hydratation, la carbonisation ou l'oxydation de certains matériaux. C'est ainsi que l'oxyde Fe_3O_4 peut être préparé à l'état amorphe.

Lorsque la substance mère est liquide deux méthodes sont possibles. L'évaporation d'un liquide au voisinage de la température ambiante donne parfois un liquide de composition différente et un solide amorphe ou gel. Ce dernier est constitué de particules de l'ordre de 10 Å. Comme nous l'avons mentionné dans l'introduction, un liquide énergiquement trempé peut se solidifier à l'état amorphe ; surtout si le diagramme d'état présente un changement de phase congruent. Cohen et Turnbull⁽⁶⁾ ont montré que l'efficacité de la trempe est d'autant plus grande que la

température de l'eutectique est plus basse devant la température de fusion ; d'où l'adjonction de carbone dans les alliages avec le fer. Les résultats de cette méthode, très courante, sont améliorés par l'utilisation de la technique de trempe brutale du "piston et de l'enclume"⁽⁷⁾.

L'obtention de matériaux non cristallisés à partir de vapeurs, par déposition sur un substrat refroidi, est de plus en plus utilisée (alliages magnétiques et verres semi-conducteurs)

2 - STRUCTURE DES MATERIAUX AMORPHES

Un solide amorphe idéal se définit par un arrangement totalement aléatoire d'atomes ou de molécules. Cette situation n'est réalisée que pour un gaz parfait. Dès que les forces d'interactions atomiques ne sont plus négligeables, c'est-à-dire lorsque la densité augmente, les atomes ont tendance à former des groupements structuraux dont la nature dépend du type des liaisons mises en jeu. C'est ce désordre incomplet que l'on observe dans les substances amorphes réelles.

Ces substances sont principalement caractérisées expérimentalement par des mesures de diffusion des rayons X ou de neutrons, des observations au microscope électronique et des études de résistivité. Très récemment la théorie de la diffusion des rayons X et des neutrons par une substance amorphe a été clairement présentée par Leadbetter et Wright⁽⁸⁾. Ces auteurs ont en particulier déterminé la structure amorphe de GeO_4 ; elle est formée de tétraèdres orientés au hasard les uns par rapport aux autres.

C H A P I T R E I I

LE FERROMAGNETISME DES SUBSTANCES AMORPHES

1 - MODELE PROPOSE PAR GUBANOV

Les atomes magnétiques sont distribués dans l'espace de manière aléatoire. L'intégrale d'échange $A(r)$ entre deux atomes distants de r est positive. Il en résulte des paires de moments magnétiques parallèles et distants de r ; leur nombre est $p^+(r)$ ou $p^-(r)$ selon que les moments sont parallèles ou antiparallèles à l'axe Oz . Il existe également une probabilité non nulle pour que certains moments magnétiques soient antiparallèles ; soit $p(r)$ le nombre de couples correspondants. L'équilibre du système est atteint lorsque :

$$\frac{p(r)}{2\sqrt{p^+(r)p^-(r)}} = e^{-\frac{2A(r)}{kT}} \quad (1)$$

Si N est le nombre total d'atomes et $g(r)dr$ le nombre de voisins d'un atome donné à une distance comprise entre r et $r+dr$, le nombre de paires d'atomes distants de r est :

$$\frac{N}{2} g(r)dr$$

Si $x(r)$ est la fraction de couples antiparallèles,

$$p(r) = \frac{N}{2} g(r) \cdot x(r) \quad (2)$$

Les quantités $p^+(r)$ et $p^-(r)$ s'évaluent en fonction de l'aimantation relative y du système :

$$p^+(r) = \frac{N}{2} g(r) \left[\frac{1+y}{2} - \frac{x(r)}{2} \right] \quad (3)$$

$$p^-(r) = \frac{N}{2} g(r) \left[\frac{1-y}{2} - \frac{x(r)}{2} \right] \quad (4)$$

La substitution de (2), (3) et (4) dans (1) donne une équation du second degré en $x(r)$.

L'énergie d'échange emmagasinée par le système de paires de moments antiparallèles s'écrit :

$$E = N \int_0^{\infty} g(r) x(r) A(r) dr.$$

Cette relation permet de calculer l'énergie libre $F(y, T)$ du système. De la condition d'équilibre $dF/dy = 0$ résulte la variation thermique de l'aimantation. La température de Curie θ est définie par :

$$y = 0, \quad \frac{dF}{dy} = \frac{d^2 F}{dy^2} = 0 \quad \text{soit}$$

$$\int_0^{\infty} g(r) \left(1 - e^{-\frac{2A(r)}{k\theta}} \right) = 2$$

Pour $T < \theta$, $y \neq 0$. L'existence du ferromagnétisme ne nécessite pas d'ordre atomique ; c'est une conséquence de la faible portée des interactions d'échange. D'après ce calcul la température de Curie à l'état amorphe peut être soit plus grande soit moins grande que celle à l'état cristallisé suivant que l'intégrale d'échange augmente ou diminue avec la distance.

2 - MODELE PROPOSE PAR HANDRICH

Le calcul est fait dans l'approximation du champ moléculaire. En utilisant une loi de Brillouin la valeur moyenne du

moment S_i parallèle au champ appliqué H est :

$$\bar{S}_i^Z = S B_s \left[\frac{S}{kT} (g \mu_B H + \sum_j J_{ij} \bar{S}_j^Z) \right]$$

Pour $T > T_c$

En développant et en moyennant B_s

$$\langle \bar{S}^Z \rangle = \frac{S(S+1)}{3kT} \left[g \mu_B H + N \langle J_{12} \rangle \langle \bar{S}^Z \rangle \right]$$

avec $\langle \bar{S}^Z \rangle$ = valeur moyenne des N moments

$\langle J_{12} \rangle$ = valeur moyenne de l'intégrale d'échange.

Cette loi de Curie-Weiss est définie par une température de Curie

$$T_c = \frac{S(S+1)}{3k} N \langle J_{12} \rangle = \frac{S(S+1)}{3k} \frac{4\pi N}{V} \int_0^\infty r^2 g(r) J(r) dr$$

où $g(r)$ est la fonction de distribution radiale.

Les écarts à la loi de Curie-Weiss, observés sur des liquides paramagnétiques, peuvent s'interpréter par une dépendance de $g(r)$ avec la température.

Pour $T < T_c$

Le désordre atomique se traduit par des fluctuations des intégrales d'échange. Posons :

$$J_{ij} = \langle J_{12} \rangle + \Delta J_{ij}$$

$$S_{ij} = \langle \bar{S}^Z \rangle + \Delta \bar{S}_i^Z$$

La somme des fluctuations de spin autour de la valeur moyenne $\langle \bar{S}^Z \rangle$ est nulle ; la valeur moyenne de l'aimantation prise après développement en série de la fonction de Brillouin par rapport au terme de fluctuation est :

$$\sigma = B_s(x) + \frac{\Delta^2 x^2}{2} B''(x)$$

$$\text{avec } x = \frac{3S}{S+1} \cdot \frac{\sigma}{T}$$

$$\sigma = \frac{\langle \bar{S}^z \rangle}{S} ; \quad \tau = \frac{T}{T_C} ; \quad \Delta^2 = \frac{\langle \Delta J_{12} \Delta J_{13} \rangle}{\langle J_{12} \rangle^2}$$

$B''(x)$ est négatif, l'aimantation réduite est plus petite que dans l'état ordonné. Pour des fluctuations faibles :

$$\Delta^2 = \frac{\langle (\Delta H_W)^2 \rangle}{\langle H_W \rangle^2} ,$$

où H_W est le champ moléculaire.

L'aimantation σ tend vers zéro lorsque le rapport Δ^2 tend vers l'unité.

Ce modèle, comme celui de Gubanov, montre que le ferromagnétisme ne nécessite pas d'ordre cristallin. Cependant il établit que l'aimantation et la température de Curie sont toujours inférieures à celles de l'état cristallisé.

3 - RESULTATS EXPERIMENTAUX

Les résultats les plus significatifs ont trait aux études magnétiques des systèmes Co-Au⁽⁹⁾, Fe-Pd-Si^(10,14), Fe-C-P^(11,12), Ni⁽¹³⁾.

Co-Au

Des plaquettes de 200 Å d'épaisseur sont obtenues par évaporation. Pour des proportions d'or allant de 25 à 60 % ces alliages ont un comportement ferromagnétique aussi bien dans l'état cristallin que dans l'état amorphe. Dans ce dernier état, des domaines magnétiques ont pu être visualisés par micrographie de Lorentz. A l'intérieur de chaque domaine l'aimantation n'est pas uniforme. La décomposition en domaines semble être favorisée par les nombreux défauts de la structure désordonnée (par exemple amas non magnétiques, contraintes). Lorsque l'alliage amorphe est cristallisé après recuit, l'aimantation spontanée reste inchangée. Le remplissage de la bande 3d du cobalt est, à la précision des mesures près, la même pour les états amorphes et cristallisés.

Notons que l'alliage Co-Au à 27 % atomique de cobalt a fait l'objet de mesures magnétiques à l'état liquide⁽¹⁵⁾. Il semble qu'un comportement ferromagnétique ait été mis en évidence. Cet exemple, isolé, n'est cependant pas une preuve suffisante.

Fe-Pd-Si

Ces alliages sont préparés par trempe du liquide. D'après Tsuei et Pol Duwez⁽¹⁰⁾ l'alliage de composition $\text{Fe}_5\text{Pd}_{75}\text{Si}_{20}$ a un comportement ferromagnétique avec une aimantation rémanente de 10^{-3} u.e.m./cm³ et un champ coercitif de 160 Oe. Cependant, le fer, en faible concentration peut précipiter pour donner des amas magnétiques dans une matrice non magnétique. Le ferromagnétisme serait alors dû à une assemblée de grains fins.

Hasegawa⁽¹⁴⁾ a étudié quatre alliages du système $\text{Fe}_x\text{-Pd}_{80-x}\text{-Si}_{20}$, x variant de 1 à 7. Pour tous ces alliages l'aimantation mesurée dans des champs H inférieurs à 9 kOe est à haute température proportionnelle au champ et tend à se saturer à basse température (figure 2). La variation thermique de l'aimantation mesurée sous 8,4 kOe a un caractère ferromagnétique (figure 3). En-dessous d'une certaine température T_d , fonction de la concentration en fer, les alliages étudiés ne suivent plus la loi de Curie-Weiss observée à haute température (figure 4): un ordre magnétique commence à s'établir aux températures inférieures à T_d . Les températures de Curie ferromagnétiques T_c déduites des courbes d'aimantation par la méthode de Belov et al⁽¹⁶⁾ sont nulles sauf pour $\text{Fe}_7\text{Pd}_{73}\text{Si}_{20}$ où $T_c = 28$ K. Dans l'intervalle de température entre T_c et T_d l'aimantation varie linéairement avec le rapport H/T : ces alliages sont superparamagnétiques entre T_d et T_c . Le nombre de moments des amas croît très rapidement à basse température (figure 5) et devient infini à la température d'ordre. L'alliage amorphe $\text{Fe}_7\text{Pd}_{73}\text{Si}_{20}$ est ferromagnétique en-dessous de 28 K. Les températures de Curie paramagnétiques et ferromagnétiques sont toutes inférieures à celles obtenues à l'état cristallisé, comme le prévoit la théorie de Handrich⁽²⁾.

Fe₁Pd₇₉Si₂₀

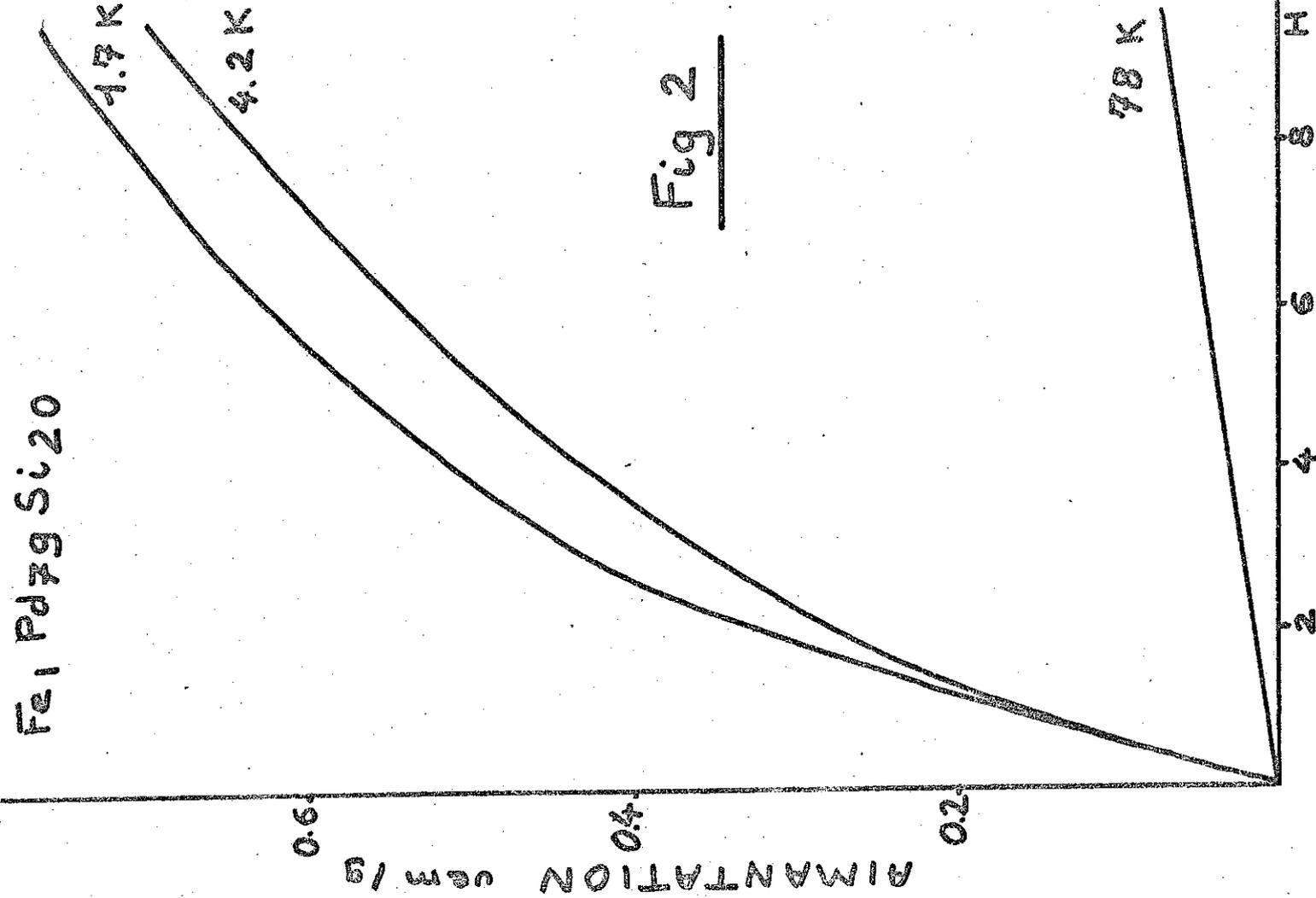
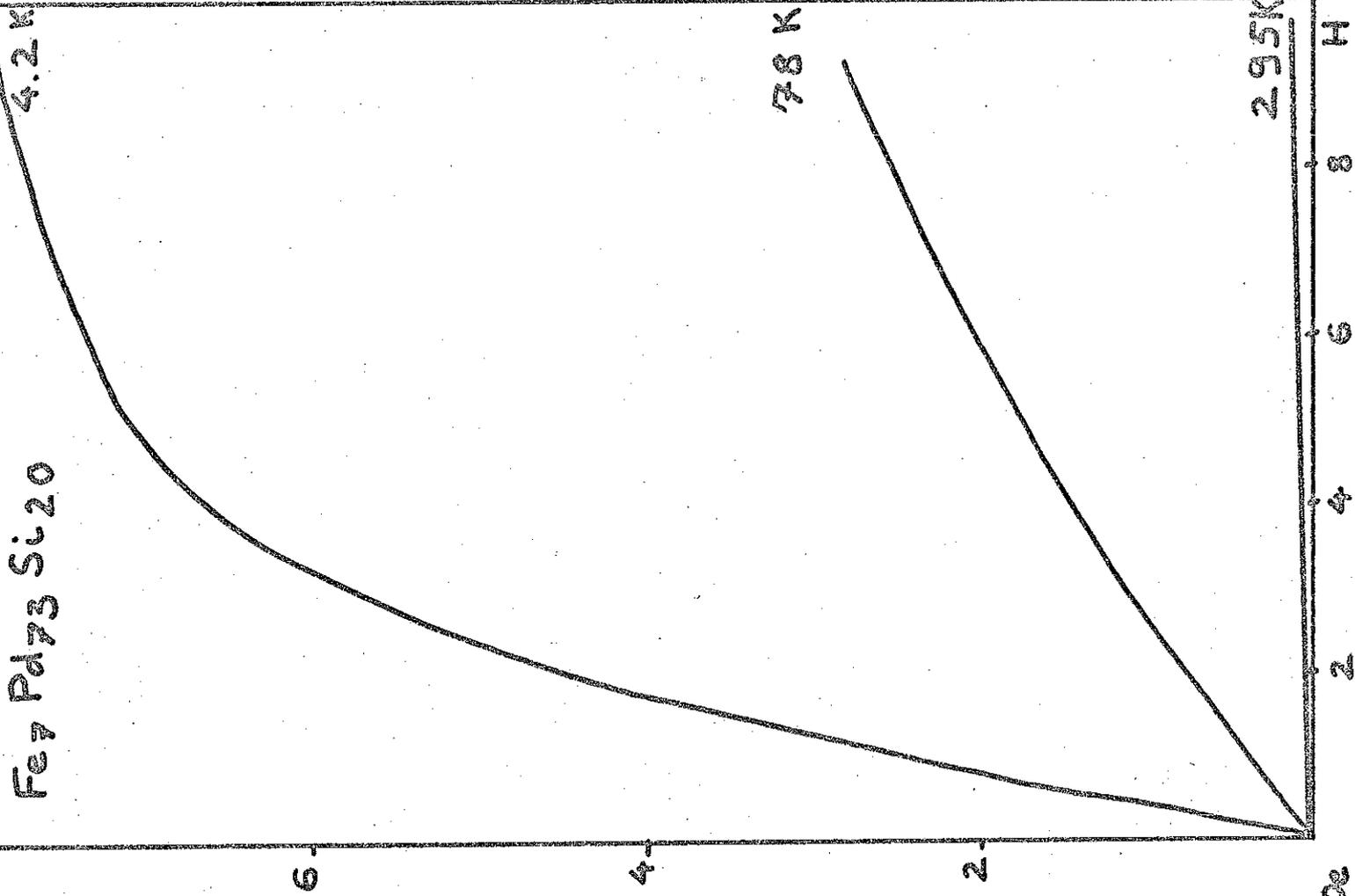


Fig 2

Fe₇Pd₇₃Si₂₀

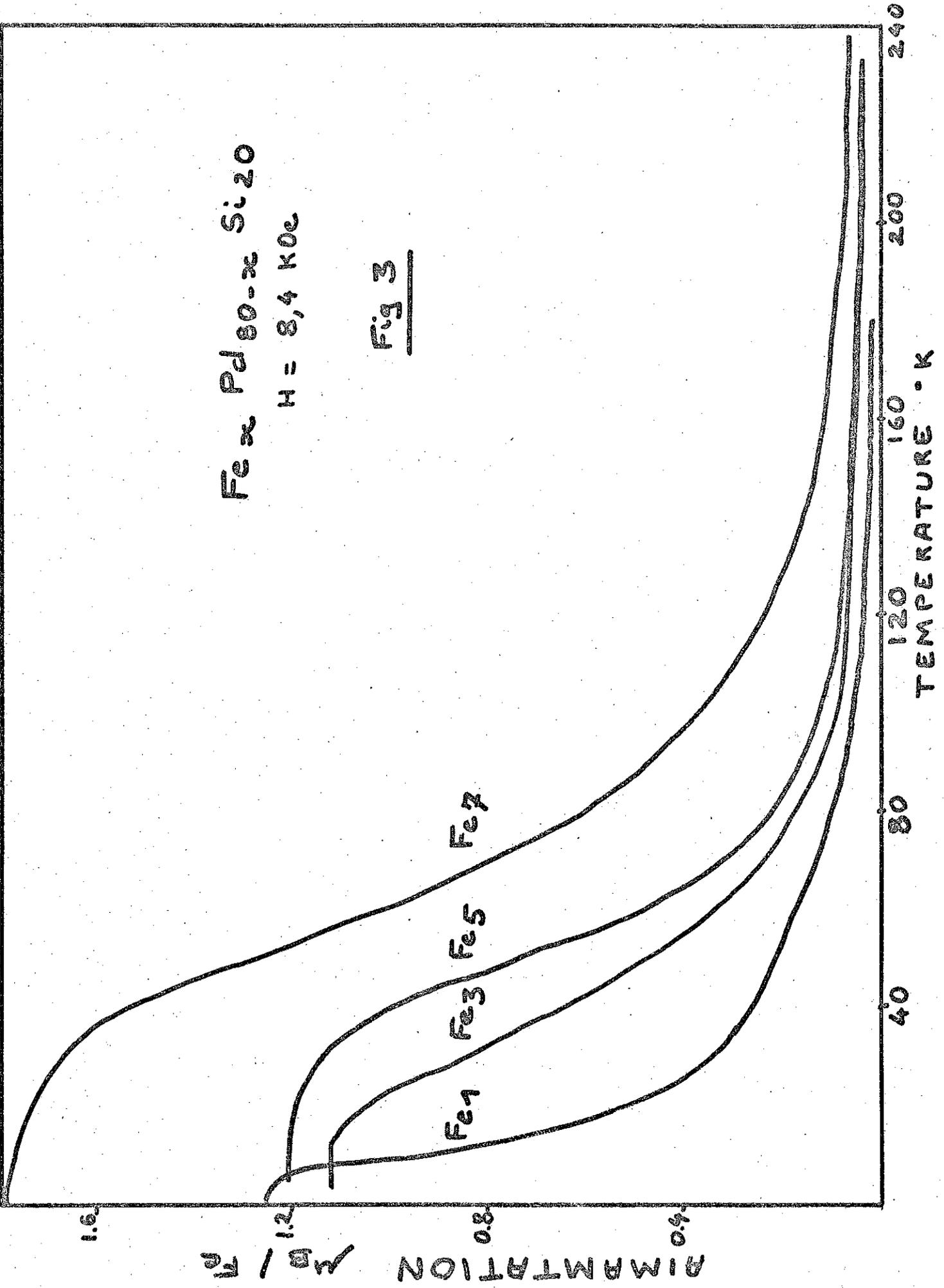


2.95K

$Fe_x Pd_{80-x} Si_{20}$

$H = 8,4 \text{ KOe}$

Fig 3

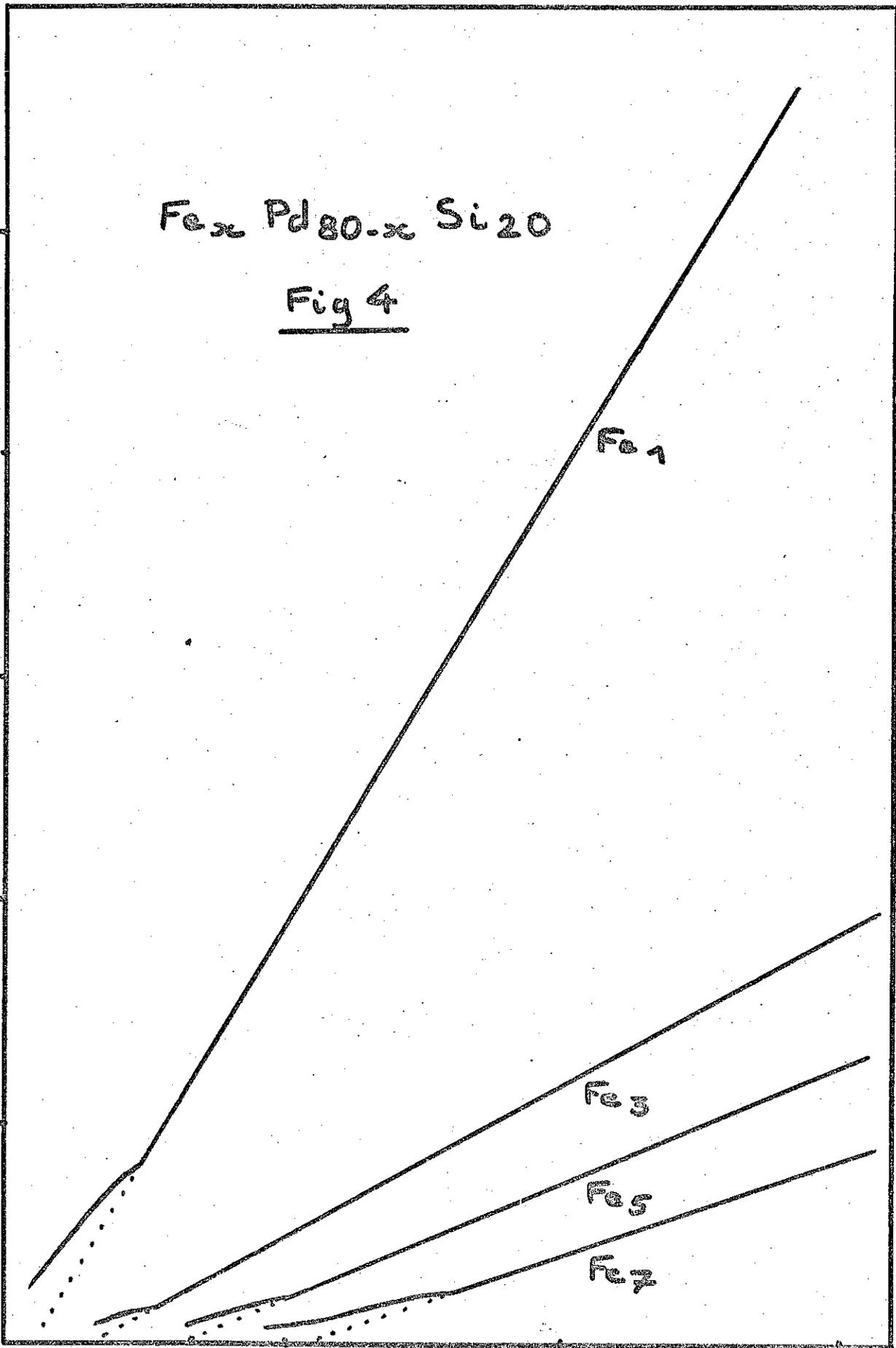


$Fe_x Pd_{80-x} Si_{20}$

Fig 4

χ/T (10^5 g/vem)

5
4
3
2
1



100 200 300

TEMPERATURE °K

NOMBRE D'ATOMES Fe PAR AMAS

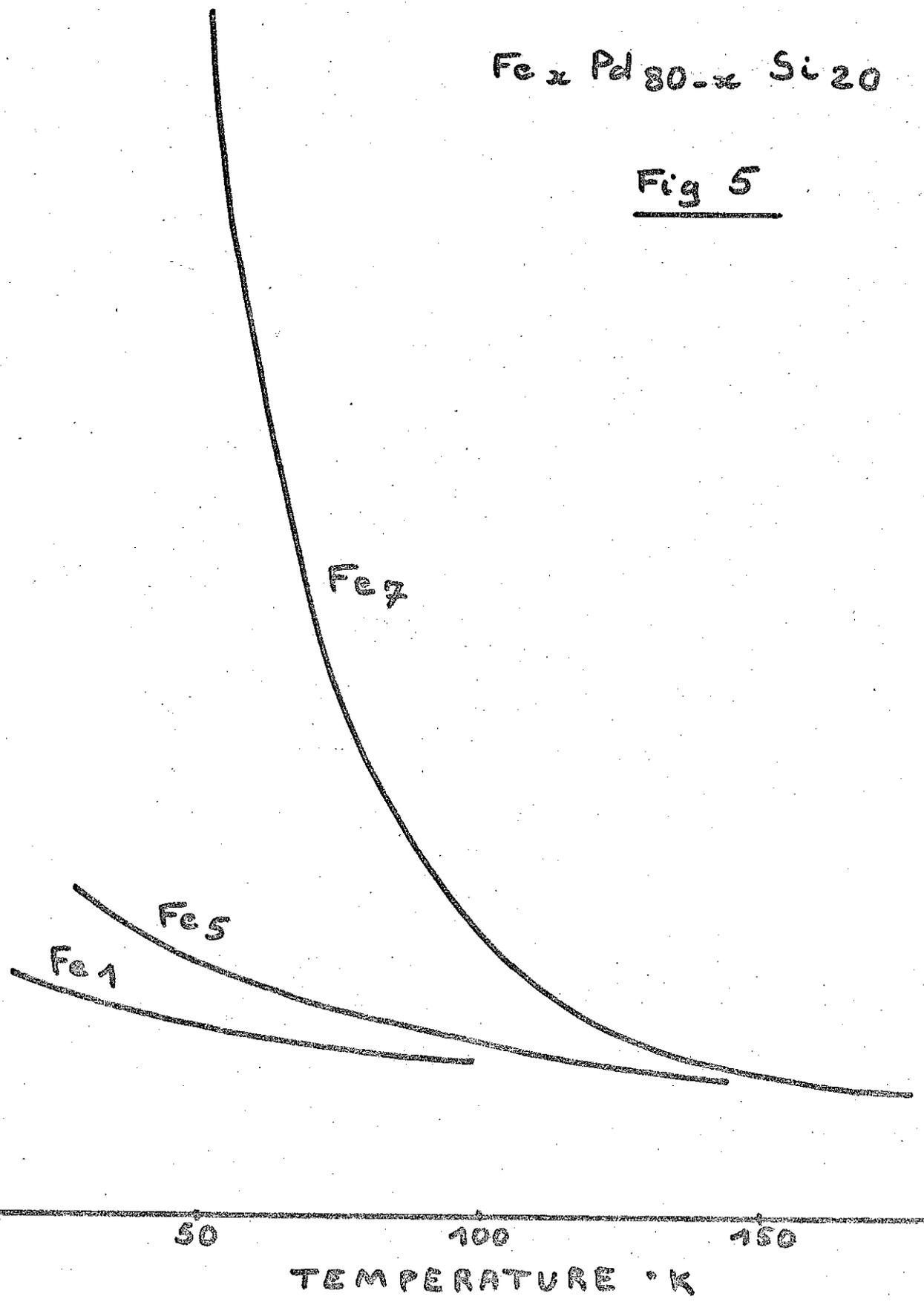
10

5

0

$Fe_x Pd_{80-x} Si_{20}$

Fig 5



TEMPERATURE °K

L'invariance du moment effectif avec la concentration en fer suggère que chaque atome de fer est entouré par des atomes de palladium et de silicium seulement. Le moment magnétique de chacune de ces cellules ($4,8 \mu_B$ par atome de fer), implique, comme dans l'état ordonné⁽¹⁷⁾, une polarisation des atomes de palladium par le fer. Il apparaît donc que la modification de la structure de bande des éléments 3d en raison du désordre atomique perturbe peu la valeur du moment.

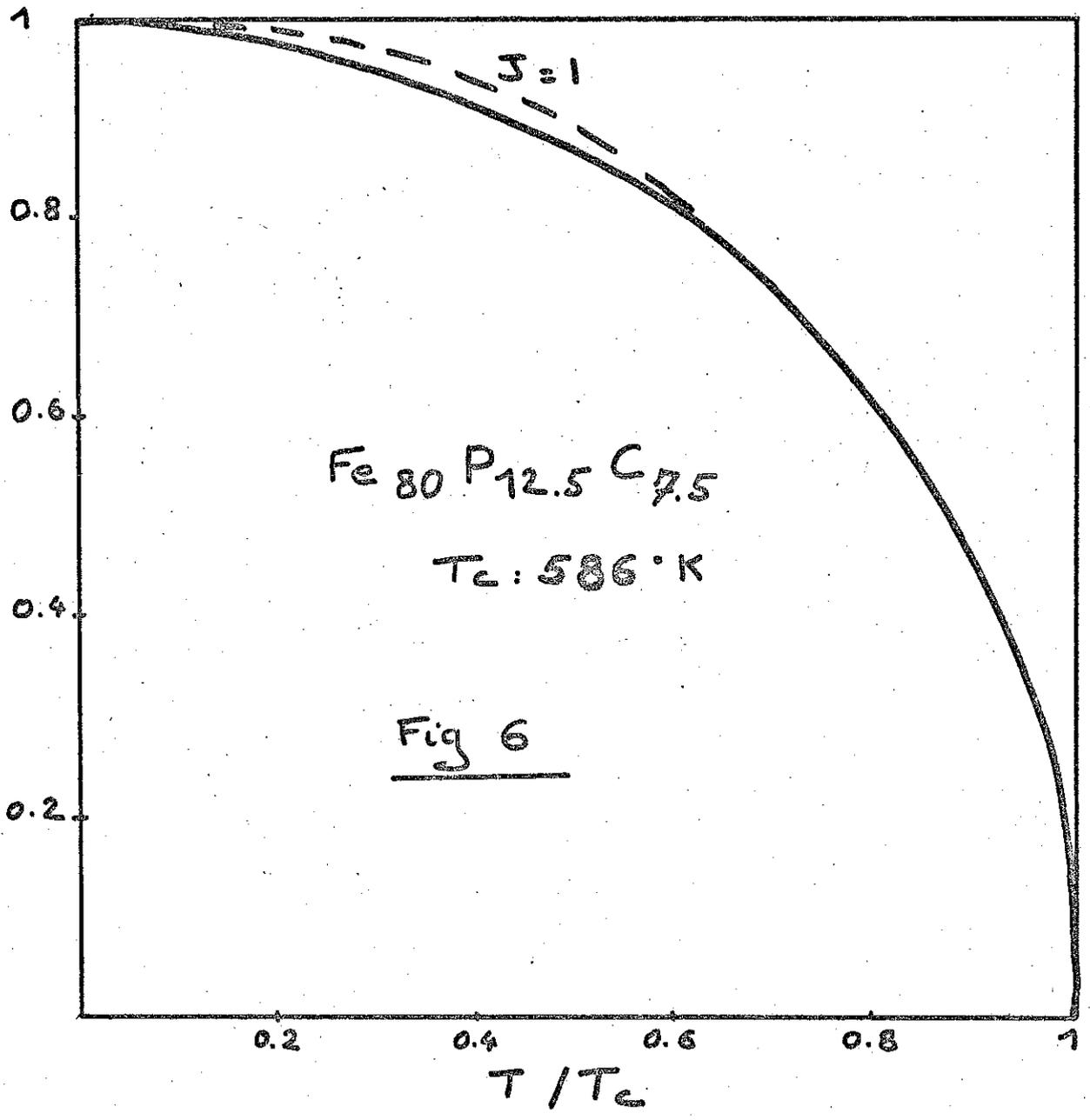
Fe-C-P

Ces alliages amorphes sont obtenus sous forme de plaquettes de 50μ d'épaisseur par une trempe rapide de l'état liquide en utilisant la technique du "piston et de l'enclume". La phase Fe-C-P, ferromagnétique⁽¹¹⁾, est caractérisée par un champ coercitif de 3 Oe et une température de Curie ferromagnétique de 586 K. L'alliage amorphe $Fe_{80}C_{7,5}P_{12,5}$ a fait l'objet d'une étude magnétostatique et de mesures d'effet Mössbauer⁽¹²⁾. Une analyse par rayons X montre que chaque atome de fer a environ sept premiers voisins situés à $2,6 \text{ \AA}$ en moyenne. Lorsque la température croît, l'aimantation spontanée ($2,1 \mu_B/Fe$ à 0 K) et le champ hyperfin décroissent suivant une loi de Brillouin, et s'annulent à 586 K (figure 6). Les spectres d'absorption à 299, 565 et 597 K sont reportés sur la figure 7. A 597 K, une interaction quadripolaire est responsable du découplage observé. Au-dessous de la température de Curie les raies sont beaucoup plus larges que celles du composé cristallin après un recuit de 24 heures à 1 000 K (figure 7) ; dans ce dernier cas les raies les plus importantes sont caractérisées par un champ hyperfin égal à celui du fer pur (330 kOe). Avant le recuit, l'élargissement des raies s'interprète par un étalement du champ hyperfin en raison du désordre atomique.

Ni

Un film de nickel ($3\ 000 \text{ \AA}$ d'épaisseur) a été préparé par condensation de vapeurs sur un substrat porté à la température de l'azote liquide. La variation de l'aimantation avec le champ appliqué et la température (figure 8) montre que le nickel

CHAMP HYPERFIN $H(T)/H(0)$ ou $M(T)/M(0)$



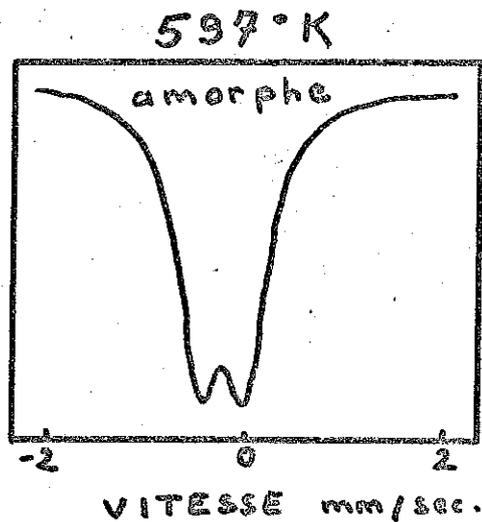
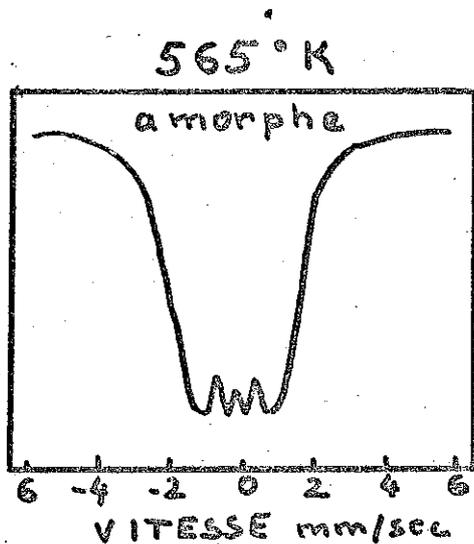
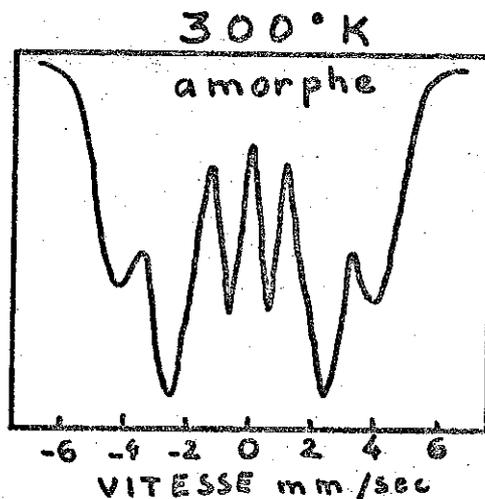
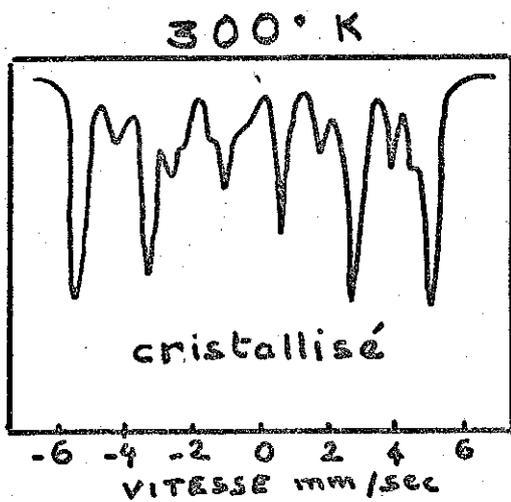


Fig 7 spectres Mössbauer

Fe 80 P 12.5 C 7.5

AIMANTATION unité arbitraire —

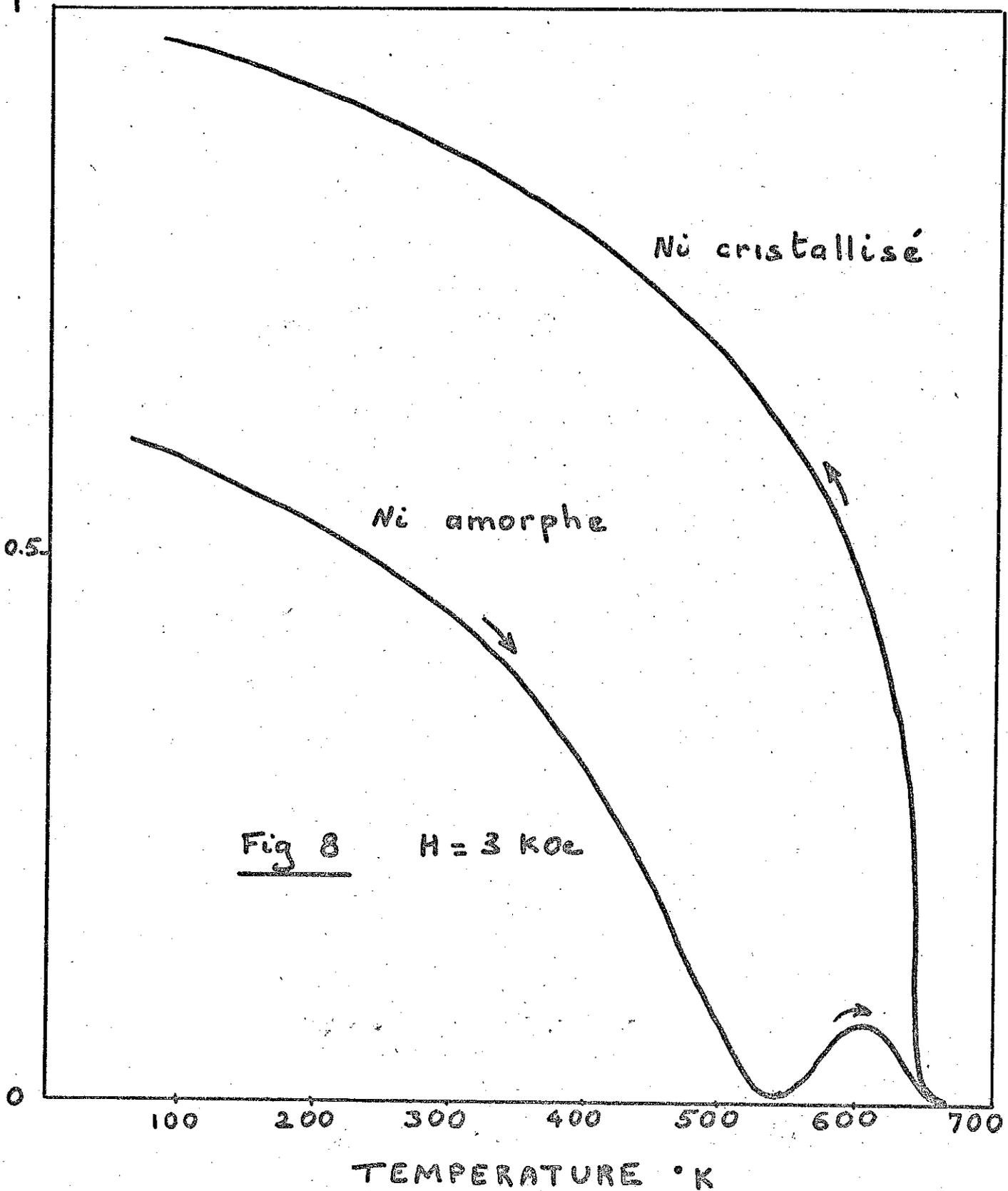


Fig 8 H = 3 kOe

amorphe a un comportement ferromagnétique. La cristallisation de l'échantillon s'effectue à une température inférieure à la température de Curie du nickel cristallisé, et est responsable du pic observé à 600 K. Le rapport des températures de Curie ferromagnétiques et celui des aimantations spontanées entre les états amorphe et cristallisé sont respectivement de 0,85 et 0,60.

Les résultats expérimentaux obtenus jusqu'à présent montrent clairement l'existence du ferromagnétisme dans les substances amorphes. Le ferromagnétisme est cependant toujours moins marqué que dans la substance cristallisée correspondante ; ces résultats sont en accord avec le modèle théorique de Handrich (chapitre II-2).

C H A P I T R E I I I

L'ANTIFERROMAGNETISME DES SUBSTANCES AMORPHES

Dans cette synthèse nous ne reproduirons que l'étude de Simpson, plus complète que le calcul de Hasegawa⁽³⁾ qui suit de près celui de Handrich⁽²⁾ relatif au ferromagnétisme.

1 - MODELE DE SIMPSON

Le champ moléculaire agissant sur le moment p_i s'écrit :

$$H_i^m = \sum_j \gamma_{ij} p_j \quad (1)$$

avec γ_{ij} = coefficient de champ moléculaire entre les moments p_i et p_j .

Dans un cristal antiferromagnétique le champ moléculaire identique pour tous les atomes d'un même sous-réseau change de signe d'un sous-réseau à l'autre (figure 9-a). Dès que l'ordre atomique n'est plus parfait la distribution des champs moléculaires s'étale (figure 9-b). Dans une substance amorphe réelle, où ne subsiste qu'un ordre à courte distance les champs moléculaires sont très étalés (figure 9-c). Dans une substance amorphe idéale la distribution serait symétrique (figure 9-d) ; les γ_{ij} prendraient toute valeur, positive ou négative.

Pour simplifier, on ne considère que des moments parallèles ou antiparallèles au champ. La loi de Brillouin $B_{1/2}$ se réduit alors à :

$$p_i = p_0 \operatorname{th} \frac{p_0}{kT} (H + H_i^m) \quad (2)$$

où H = champ appliqué,

p_0 = moment à 0 K.

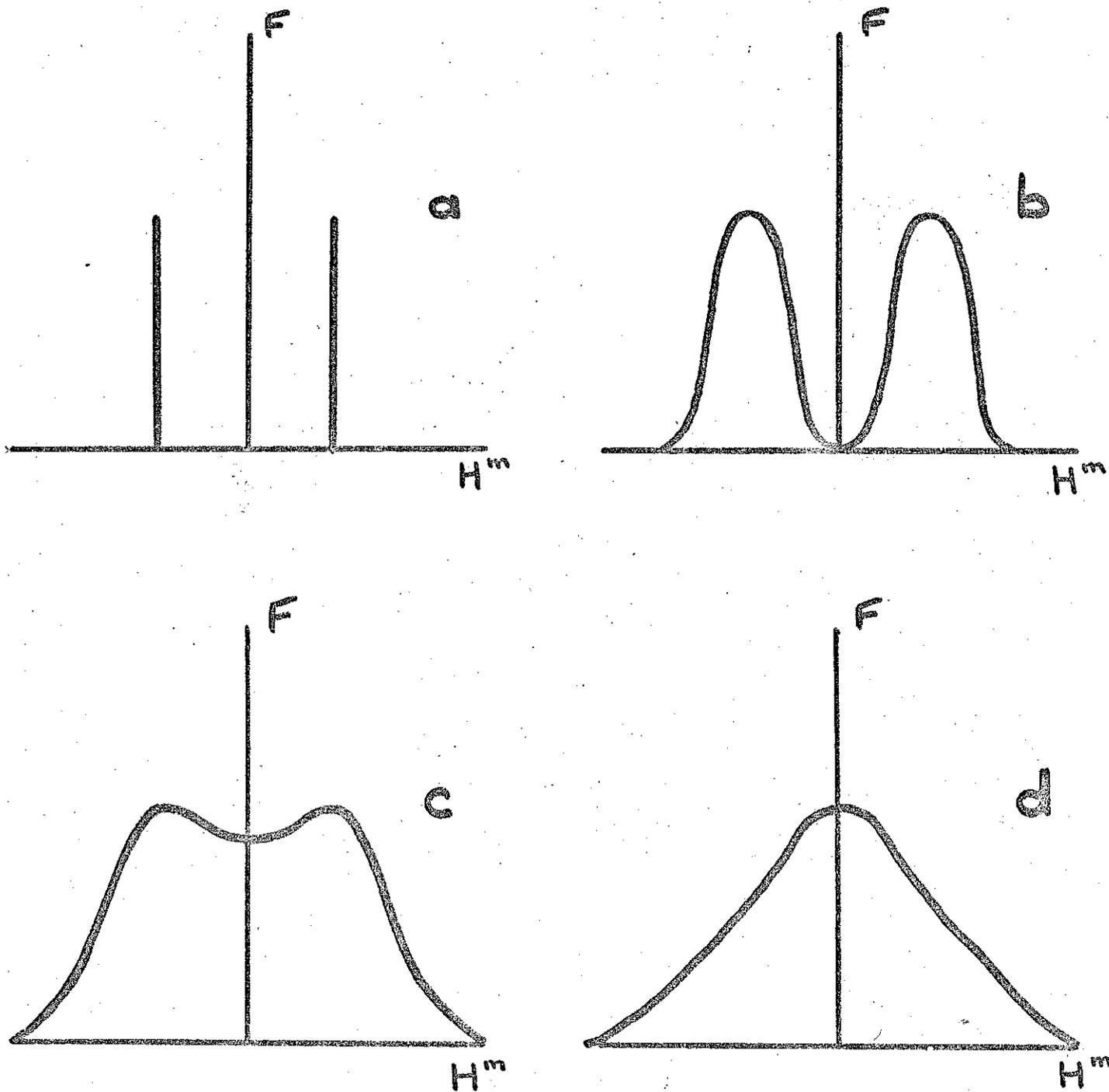


Figure 9 : Distribution du champ moléculaire H^m dans un antiferromagnétique.

- a) cristallisé ; b) à cristallisation imparfaite ;
 c) amorphe ; d) parfaitement désordonné.

Fonction de distribution du champ moléculaire H_i^m

Le nombre de proches voisins varie d'un atome à l'autre. Les fluctuations de champ moléculaire sont essentiellement dues à celles du nombre de voisins (on suppose que les γ_{ij} s'écartent peu de leur valeur moyenne $\bar{\gamma}$). L'équation (1) s'écrit :

$$H_i^m = \bar{\gamma} \sum_j p_j.$$

A très basse température le module de chaque moment devient indépendant du champ moléculaire ($p_i = \pm p_0$), d'où :

$$H_i^m = \bar{\gamma} \sum_{j=1}^Z \pm p_0$$

H_i^m est proportionnel à la somme de Z quantités identiques ayant une même probabilité d'être positives ou négatives. Le champ moléculaire est donc distribué suivant une loi binomiale qui tend vers une loi normale dès que Z vaut 4 ou 5. On supposera ce résultat valable même lorsque la température n'est plus très basse.

Variation thermique du champ moléculaire - Température de Néel

H_i^m a une valeur moyenne nulle ; sa moyenne quadratique s'écrit :

$$\sigma = \sqrt{\sum_{j=1}^Z (\gamma_{ij} p_j)^2} = \sqrt{Z (\gamma_{ij} p_j)^2} = \alpha |\bar{\gamma}| \sqrt{Z (p_j)^2}$$

$\alpha \geq 1$ résulte de la largeur de la fonction de distribution de γ_{ij} . En utilisant l'équation (2) :

$$\frac{\sigma}{\sigma_0} = \sqrt{\frac{1}{\text{th}^2 a}} \quad (3)$$

avec $\sigma_0 = \alpha |\bar{\gamma}| p_0 \sqrt{Z}$

$$a = \frac{p_0}{kT} H_i^m$$

L'écart moyen quadratique σ_a de la fonction a est proportionnel à celui σ de la fonction H_i^m , d'où :

$$\frac{\sigma}{\sigma_0} = \frac{kT}{p_0 \sigma_0} \sigma_a \quad (4)$$

Les équations (3) et (4) se résolvent graphiquement (figures 10 et 11). Lorsque la droite d'équation (4) est tangente à l'origine de la fonction d'équation (3), la température de Néel est atteinte. Comme a est alors petit $kT_N / \sigma_0 p_0 = 1$, soit :

$$kT_N = \alpha |\bar{\gamma}| \sqrt{Z} p_0^2 \quad (5)$$

La température de Néel d'un antiferromagnétique amorphe a une valeur bien définie. Elle est inférieure à celle de la forme cristalline correspondante.

Variation thermique de la susceptibilité

Le champ est appliqué perpendiculairement à la direction des moments. Le moment p_j s'écarte de sa position d'équilibre d'un angle ϕ_j , une composante magnétique M_j est induite parallèlement au champ. Le champ total agissant sur p_i est :

$$H_i = H + \sum_j \gamma_{ij} M_j$$

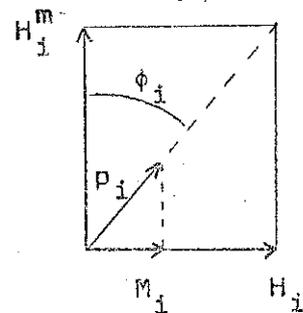
pour ϕ_i petit

$$M_i = p_i \frac{H_i}{H_i^m} = \frac{H_i p_0}{H_i^m} \text{th} \left(\frac{p_0}{kT} H_i^m \right)$$

D'où
$$\chi_i = \beta_i (1 + \sum_j \gamma_{ij} \chi_j) \quad (6)$$

avec
$$\chi_i = M_i / H_i$$

$$\beta_i = \frac{p_0}{H_i^m} \text{th} \frac{p_0 H_i^m}{kT}$$



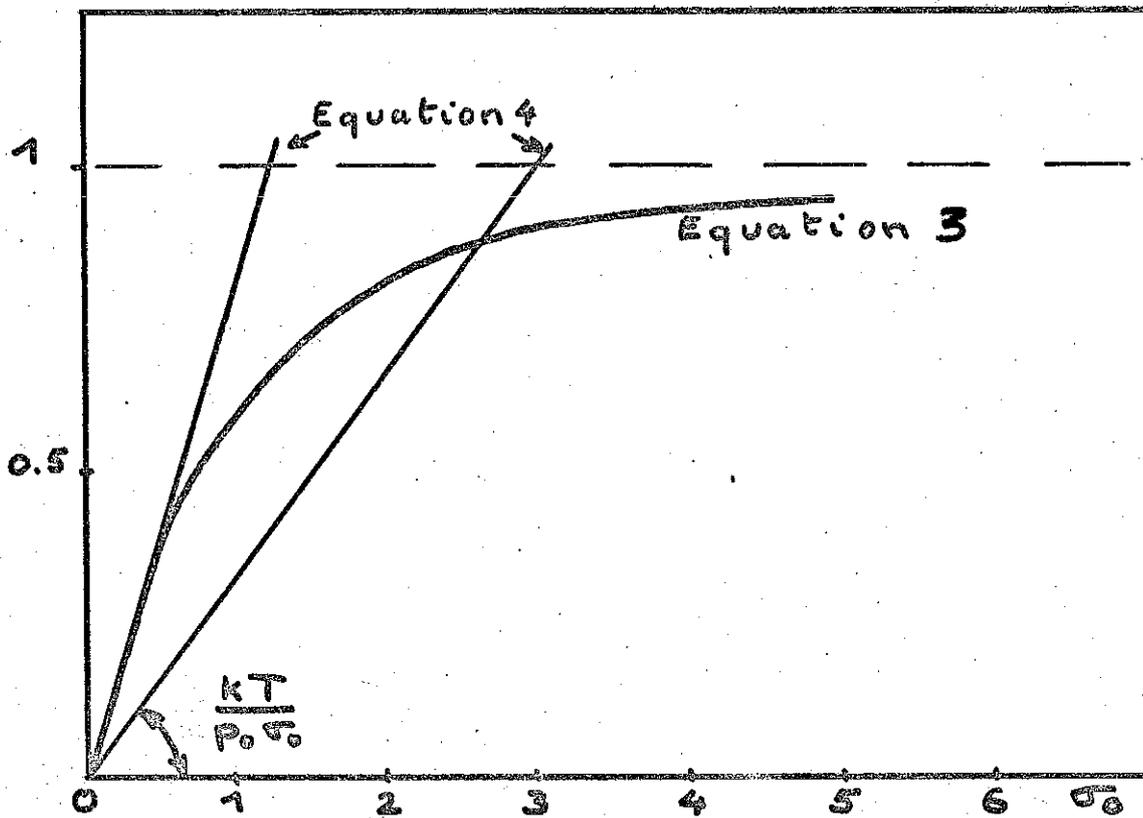


Fig 10 Résolution des équations 3 et 4

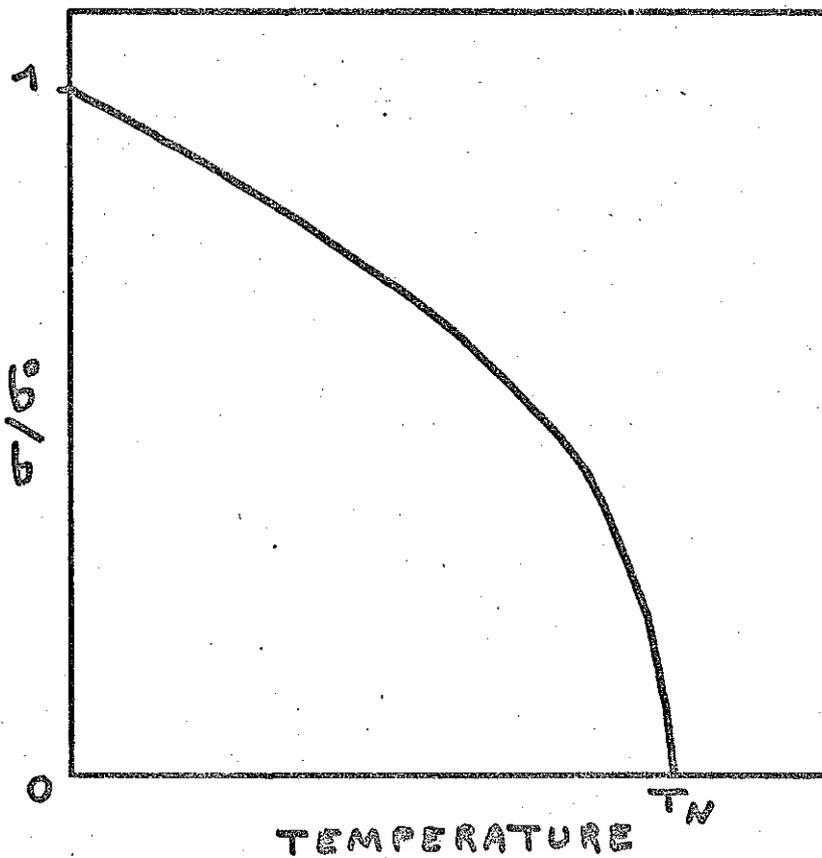


Fig 11 Variation de l'écart quadratique moyen σ du champ moléculaire avec la température.

La susceptibilité perpendiculaire moyenne sera :

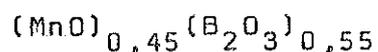
$$\bar{\chi}_{\perp} = \bar{\beta} (1 - Z |\bar{\gamma}| \chi_{\perp}) \quad (7)$$

Un calcul analogue conduit à la susceptibilité parallèle définie par $\chi_{\parallel} = dp_{\parallel}/dH$

$$\chi_{\parallel} = \bar{\beta}' (1 - Z |\bar{\gamma}'| \chi_{\parallel}) \quad (8)$$

Les résultats numériques (figure 12) montrent qu'à toute température $\chi_{\perp} > \chi_{\parallel}$. Dans un antiferromagnétique amorphe la position stable des moments est perpendiculaire au champ appliqué. L'hypothèse de faible extension de la distribution de γ se traduit ici par une valeur de la température de Curie paramagnétique peu différente de celle de l'état ordonné.

2 - RESULTATS EXPERIMENTAUX



La susceptibilité magnétique de ce borate de manganèse a été mesurée par Schinkel et Rathenau⁽¹⁸⁾ entre 4,2 et 300 K (figure 13). Les température de Néel et de Curie sont respectivement de 34 et 84 K.

Y-Fe-O et Gd-Fe-O

Les oxydes amorphes⁽¹⁹⁾ YFeO_3 , $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ et $\text{Gd}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ont été préparés sous forme de lames minces de 300 Å d'épaisseur par oxydation anodique ; les traces de métal non oxydé ont été soigneusement éliminées. Les variations des inverses des susceptibilités de ces trois alliages (figure 15) sont obtenues à partir des courbes d'aimantation (figure 14). Les inverses des susceptibilités de YFeO_3 et $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ continuent de décroître en-dessous de la température de Néel. Contrairement à la variation théorique de l'inverse de la susceptibilité d'un antiferromagnétique amorphe (figure 12) cette décroissance est monotone, on n'observe pas de température de Néel. Simpson et Lucas⁽¹⁹⁾ attribuent ce fait à l'existence d'ions paramagnétiques au niveau desquels le champ moléculaire est quasiment nul.

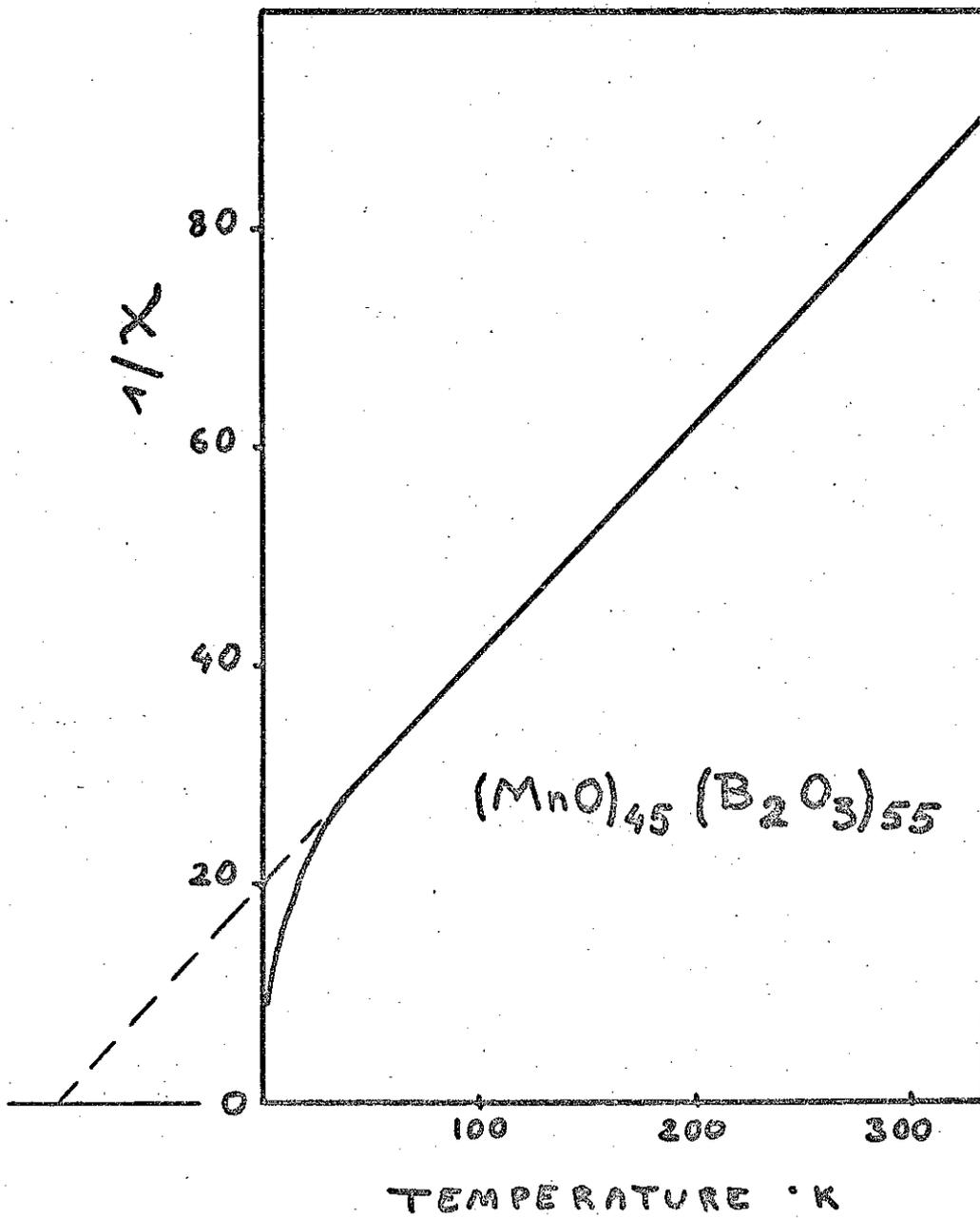


Fig 13

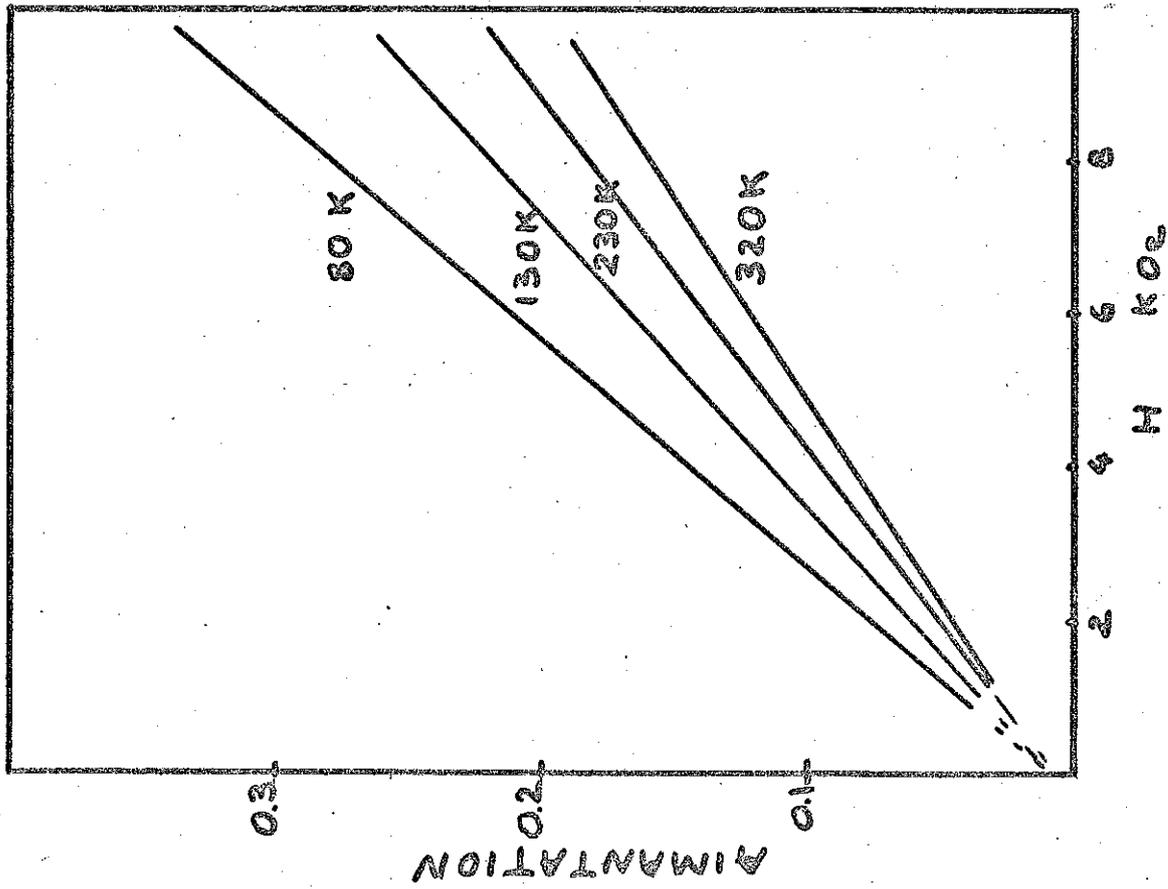


Fig 14 couche mince amorphe
alliage Y Fe oxydé

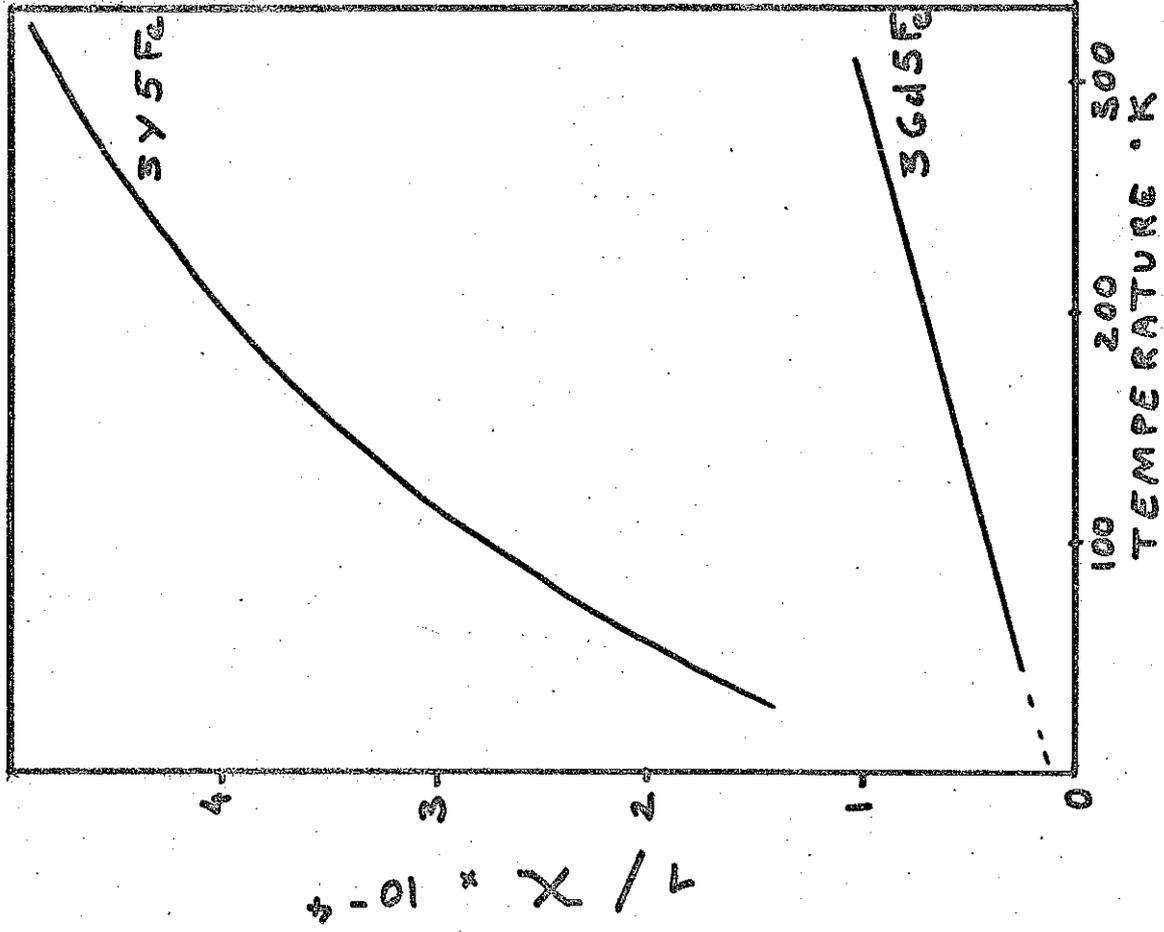
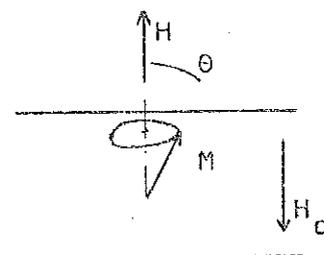


Fig 15 couches minces amorphes
alliages 3Y5Fe et 36d5Fe oxydés

C H A P I T R E I V

PROCESSUS D'AIMANTATION DANS LES SUBSTANCES AMORPHES

Dans une substance amorphe, l'anisotropie est nulle ; les parois de Bloch entre domaines sont de dimensions infinies.



Considérons⁽²⁰⁾ un matériau amorphe soumis à un champ magnétique H. L'aimantation, uniforme, résulte du parallélisme de tous les moments. Le champ interne étant nul à l'équilibre, tous les moments s'écartent d'un angle θ de la direction du champ tel que

$$N M \cos \theta - H = 0$$

N étant le coefficient de champ démagnétisant.

La composante de l'aimantation parallèle au champ est :

$$M_{//} = \frac{H}{N}$$

La loi d'aimantation est celle de l'état cristallisé.

Considérons l'effet d'un champ magnétique élevé sur une substance antiferromagnétique amorphe. En raison de son isotropie cette substance ne présente pas de transition méta-

magnétique du premier ordre mais une rotation continue et réversible des moments magnétiques. En utilisant le modèle de Simpson un calcul simple montre que la saturation est atteinte dès que le champ appliqué est égal à la moyenne quadratique du champ d'échange.

C O N C L U S I O N

L'étude du magnétisme des substances amorphes, encore à ses débuts, montre que l'ordre atomique a seulement pour effet de renforcer l'ordre magnétique qui existerait sans lui.

L'approfondissement de ce sujet devrait apporter des informations intéressantes sur la déformation de la bande 3d à la suite d'une transition d'un état amorphe à un état cristallisé. Avec les éléments de terres rares, la couche 4f interne n'est que faiblement affectée par le désordre atomique ; mais si le matériau est conducteur le désordre doit profondément modifier les interactions indirectes du type Ruderman-Kittel.

La structure d'une substance amorphe étant la représentation à un instant donné de celle d'un liquide, la détermination par diffraction neutronique des corrélations atomiques et magnétiques peuvent être d'un grand intérêt pour la compréhension de l'état liquide, et plus généralement, pour celle de la matière à l'état condensé.

REFERENCES

- 1 - A.I. GUBANOV
Fiz. Tverd. Tela 2, (1960) J 02.
- 2 - K. HANDRICK
Phys. Stat. Sol., 32, (1969), K55.
- 3 - R. HASEGAWA
Report on Research Conducted under Contract for the U.S.
Atomic Energy Commission. California Institute of Technology
(1970).
- 4 - A.W. SIMPSON
Phys. Stat. Sol., 40, (1970), 207.
- 5 - R. ROY
J. non Cryst. Sol., 3, (1970), 33.
- 6 - M.H. COHEN et D. TURNBUL
Nature, 189, (1961), 131.
- 7 - P. PIETROKOWSKY
The Rev. Scient. Inst., 34, (1963), 445.
- 8 - A.J. LEADBETTER et A.C. WRIGHT
J. non Cryst. Sol., 7, (1972), 23.
- 9 - S. MADER et A.S. NOWICK
Appl. Phys. Lett., 7, (1965), 57.
- 10 - C.C. TSUEI et Pol DUWEZ
J. Appl. Phys., 37, (1965), 435.
- 11 - Pol DUWEZ et S.C.H. LIN
J. Appl. Phys., 38, (1967), 4096.

- 12 - C.C. TSUEI, G. LONGWORTH et S.C.H. LIN
Phys. Rev., 170, (1968), 603.
- 13 - K. TAMURA et E. ENDO
Phys. Lett., 29A, (1969), 52.
- 14 - R. HASEGAWA
J. Appl. Phys., 41, (1970), 4096.
- 15 - G. BUSCH et H.J. GUENTHERODT
Phys. Lett., 27A, (1968), 110.
- 16 - K.P. BELOV et A.N. GORIAGA
Fiz. Metal. i Metalloved, 2, (1956), 3.
- 17 - J.W. CABLE, E.O. WOLLAN et W.C. KOEHLER
J. Appl. Phys., 34, (1963), 1189.
- 18 - C.J. SCHINKEL et G.W. RATHENAU
Physics of non-crystalline Solids, North-Holland Publ. Co,
(1965).
- 19 - A.W. SIMPSON et J.M. LUCAS
J. Appl. Phys., 42, (1971), 2181.
- 20 - P.G. de GENNES et P.A. PINCUS
Sol. Stat. Com., 7, (1969), 339.

TABLE DES MATIERES

	Pages
<u>INTRODUCTION</u>	1
<u>CHAPITRE I : PREPARATION ET STRUCTURE DES SUBSTANCES AMORPHES</u>	3
1 - Préparation	3
2 - Structure des matériaux amorphes	4
<u>CHAPITRE II : LE FERROMAGNETISME DES SUBSTANCES AMORPHES</u>	5
1 - Modèle proposé par Gubanov	5
2 - Modèle proposé par Handrich	6
3 - Résultats expérimentaux	8
<u>CHAPITRE III : L'ANTIFERROMAGNETISME DES SUBSTANCES AMORPHES</u>	12
1 - Modèle de Simpson	12
2 - Résultats expérimentaux	15
<u>CHAPITRE IV : PROCESSUS D'AIMANTATION DANS LES SUBSTANCES AMORPHES</u>	16
<u>CONCLUSION</u>	18
<u>REFERENCES</u>	19