



HAL
open science

Anisotropie Magnétique et Hystérésis du Cobalt à l'Échelle du Plan Atomique: Théorie et Expérience

Patrick Bruno

► **To cite this version:**

Patrick Bruno. Anisotropie Magnétique et Hystérésis du Cobalt à l'Échelle du Plan Atomique: Théorie et Expérience. Matière Condensée [cond-mat]. Université Paris Sud - Paris XI, 1989. Français. NNT : . tel-00002846

HAL Id: tel-00002846

<https://theses.hal.science/tel-00002846>

Submitted on 19 May 2003

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITE DE PARIS-SUD
CENTRE D'ORSAY

THESE

présentée
pour obtenir

Le titre de DOCTEUR EN SCIENCE
spécialité: Physique des Solides

par Patrick BRUNO

Sujet: ANISOTROPIE MAGNETIQUE ET HYSTERESIS DU COBALT
A L'ECHELLE DU PLAN ATOMIQUE: THEORIE ET EXPERIENCE

soutenu le 22 Juin 1989 devant la Commission d'Examen:

M. J. Friedel,	Président
M. G. Bayreuther,	Rapporteur
M. F. Gautier,	Rapporteur
M. J.B. Theeten,	Examineur
M. J.P. Renard,	Examineur

à mes parents,

à mes maîtres en physique.

REMERCIEMENTS

Je remercie Madame S. Laval, Directrice de l'Institut d'Electronique Fondamentale, de m'avoir accueilli dans son laboratoire pour y effectuer cette thèse.

Je suis très reconnaissant à Monsieur le Professeur J. Friedel de l'honneur qu'il me fait en acceptant la présidence du jury de cette thèse; l'intérêt qu'il a témoigné pour mon travail a été pour moi une grande source d'encouragement.

Je ne saurais exprimer assez ma reconnaissance à P. Beauvillain et C. Chappert, qui m'ont guidé quotidiennement dans ce travail, à l'aboutissement duquel leur compétence scientifique, leur sollicitude, et leur bonne humeur ont très largement contribué. Les lectures critiques qu'ils ont faites de mon manuscrit m'ont été d'un grand secours lors de sa rédaction. A tous les deux, de tout coeur, un grand merci!

J.P. Renard a assumé la direction scientifique de ce travail, et m'a accueilli au sein du groupe "Magnétisme" qu'il dirige avec enthousiasme et dynamisme; je le remercie vivement de sa grande disponibilité, de ses encouragements chaleureux, et de passionnantes leçons de physique.

Je tiens à remercier les membres du jury de cette thèse: Monsieur J.B. Theeten, ainsi que Messieurs F. Gautier et G. Bayreuther, qui ont accepté d'en être les rapporteurs.

Ce travail n'aurait pu se faire sans l'active collaboration du groupe "Couches Minces" de l'Institut d'Optique Théorique et Appliquée, qui a entièrement assuré l'élaboration et la caractérisation structurale des échantillons. J'exprime ma profonde gratitude en particulier à J.P. Chauvineau et C. Marlière, avec qui j'ai eu d'enrichissantes discussions, et à D. Renard, dont j'ai pu apprécier la gentillesse, la disponibilité, et qui a déployé ses talents de pédagogue à m'expliquer les différentes techniques de caractérisation.

J'ai réalisé une partie importante des études expérimentales à l'Université de Regensburg (R.F.A.), dans le laboratoire de G. Bayreuther et G. Lugert; je tiens à leur témoigner ma plus sincère reconnaissance pour l'accueil chaleureux et amical qu'ils m'ont réservé, pour leur esprit de coopération, et pour de nombreux et fructueux échanges de points de vue.

Mes débuts en physique théorique ont été épaulés par J. Seiden, qui m'a prodigué conseils et encouragements, et avec qui j'ai eu des discussions

passionnantes et passionnées sur les grands problèmes de la physique; je l'en remercie de tout coeur et lui témoigne mon amitié.

J'exprime enfin ma reconnaissance à tous ceux qui m'ont aidé à progresser dans ce travail: P. Veillet, à qui je dois notamment de précieux conseils en informatique, K. LeDang, qui a réalisé les mesures de résonance magnétique nucléaire, H. Hurdequint, du Laboratoire de Physique des Solides, pour sa collaboration lors des expériences de résonance ferromagnétique, E. Vélou, F. Trigui et C. Dupas, avec qui j'ai eu d'intéressantes discussions à propos de leurs mesures de magnétorésistance, M.C. Desjonquères, D. Spanjaard et G. Tréglia, pour de fructueuses discussions sur la théorie de l'anisotropie magnétocristalline, R. Mégy, pour son dévouement, son esprit de camaraderie, et ses talents de photographe, B. Lécuyer et B. Lesquer, dont l'aide efficace dans la réalisation des figures m'a permis d'achever (presque) à temps ce manuscrit, J. Ferré, qui m'a communiqué les résultats de ses mesures d'effet Faraday, G. Ouradou et M. Huissier, du service du froid de l'I.E.F., pour leur diligence et leur efficacité, ainsi que tous ceux en compagnie de qui j'ai eu plaisir à travailler durant ces trois années.

SOMMAIRE

<i>Avant-Propos</i>	13
<i>Chapitre 1: Le magnétisme des films ultraminces: un panorama</i>	16
1-1. Caractéristiques structurales et propriétés magnétiques: quelques considérations d'ordre général	16
1-2. Quelques rappels sur les propriétés magnétiques fondamentales des métaux de transition à l'état massif	18
1-2.1. Interaction d'échange et aimantation spontanée	18
1-2.2. Aimantation à basse température. Ondes de spins	20
1.2.3. Anisotropie magnétocristalline	21
1-3. Propriétés magnétiques "techniques": domaines, parois, hystérésis	25
1-4. Propriétés magnétiques des films métalliques ultraminces	25
1-4.1. Moment magnétique des films ultraminces, à $T=0$ K	27
1-4.2. Anisotropie magnétique des films ultraminces	31
1-4.2.1. Interactions dipolaires. Champ démagnétisant	31
1-4.2.2. Anisotropie magnétocristalline des films ultraminces	33
1-4.3. Variation thermique de l'aimantation spontanée	37
1-4.4. Propriétés magnétiques "techniques" des films ultraminces	40
 PREMIERE PARTIE: ETUDES EXPERIMENTALES	 43
<i>Chapitre 2: Préparation et caractérisation structurale des échantillons</i>	44
2-1. Préparation des échantillons	45
2-2. Caractérisation structurale	46
2-2.1. Structure du substrat d'or	47
2-2.2. Structure des films Au/Co/Au	48
2-2.2.1. Microscopie et diffraction électronique en	

transmission	50
2-2-2.2. Diffraction d'électrons de haute énergie par réflexion sous incidence rasante	54
2-2.3. Structure des films Au/Cu/Co/Cu/Au	58
<i>Chapitre 3: Etudes par résonance magnétique nucléaire et ré-</i> <i>sonance ferromagnétique</i>	<i>62</i>
3-1. Etude comparée par résonance magnétique nucléaire des films Au/Co/Au et Au/Cu/Co/Cu/Au	62
3-2. Etude par résonance ferromagnétique des films Au/Cu/Co/Cu/Au	65
3-2.1. Principe de la mesure	65
3-2.2. Resultats expérimentaux	69
3-2-3. Anisotropie comparée des films Au/Cu/Co/Cu/Au et Au/Co/Au	71
3-2.4. Etude des largeurs de raies	76
<i>Chapitre 4: Magnétométrie à basse température des films de</i> <i>cobalt sur or</i>	<i>80</i>
4-1. Magnétométrie à SQUID en champ faible, et en champ fort; les différents types de mesures	80
4-2. Cycles d'hystérésis	83
4-3. Courbes de désaimantation	89
4-4. Interprétation de la forte variation du champ coer- citif et du <i>champ de désaimantation</i> aux très faibles épaisseurs	92
4-4.1. Propagation de parois dans un milieu inhomogène	95
4-4.2. Rôle de la rugosité	101
<i>Chapitre 5: Evolution thermique de l'aimantation et du cycle</i> <i>d'hystérésis des films de cobalt sur or</i>	<i>104</i>
5.1. Variation thermique de l'aimantation spontanée et de l'aimantation rémanente	104
5-2. Etude de la dépendance temporelle de l'aimantation	109
5-2.1. Un nouveau type de magnétomètre: le piézomagné- tomètre ou magnétomètre à gradient alternatif	110
5-2.2. Mise en évidence et étude du traînage magnéti- que	112

5-2.3. Analyse et discussion des mesures de trainage magnétique	115
5-2.4. Discussion de la dépendance temporelle des cycles d'hystérésis	123
5-3. Discussion générale du comportement magnétique des films de cobalt sur or	127
SECONDE PARTIE: ETUDES THEORIQUES	131
<i>Chapitre 6: Théorie de Néel de l'anisotropie magnétocristalline de surface</i>	<i>132</i>
6-1. Présentation de la théorie de Néel	133
6-2. Généralisation de la théorie de Néel aux systèmes hexagonaux	134
<i>Chapitre 7: Couplage spin-orbite et anisotropies magnétiques dans les films ultraminces</i>	<i>138</i>
7-1. Le couplage spin-orbite	140
7-2. Théorie perturbative de l'anisotropie magnétocristalline et du moment orbital	144
7-3. Calcul de la structure de bandes	147
7-3.1. La méthode des liaisons fortes de Slater-Koster	147
7-3.2. Interaction Coulombienne interélectronique et approximation de Hartree-Fock	148
7-3.3. Choix des paramètres et résultats	150
7-4. Anisotropie magnétocristalline dans des films monoatomiques de métaux de transition	154
7-4.1. Importance du champ cristallin	158
7-4.2. Influence du remplissage de la bande de valence	160
7-5. Moment orbital dans des films monoatomiques de métaux de transition	162
7-5.1. Arguments qualitatifs en faveur d'une anisotropie du moment magnétique	162
7-5.2. Résultats des calculs de moment orbital	163
7-5.3. L'anisotropie du moment magnétique peut-elle être observée expérimentalement?	165

<i>Chapitre 8: Anisotropie induite par les déformations inter-</i>	
<i>faciales</i>	166
8-1. Un modèle phénoménologique simple des déformations	
interfaciales	166
8-2. Anisotropie due aux déformations interfaciales: un	
mécanisme d'anisotropie de surface alternatif à celui de	
Néel	172
8-3. Comparaison avec les résultats expérimentaux	173
 <i>Chapitre 9: Effets de la rugosité sur l'anisotropie magnéti-</i>	
<i>que des films ultraminces</i>	176
9-1. Modélisation de la rugosité	176
9-2. Effet de la rugosité sur l'anisotropie dipolaire de	
forme	178
9-3. Effet de la rugosité sur l'anisotropie magnétocris-	
talline de surface	183
9-4. Comparaison avec des résultats expérimentaux	184
 <i>Conclusion</i>	187
 APPENDICES	191
 <i>Appendice 1: Déplacements d'une paroi dans un matériau</i>	
inhomogène et théorie du trainage magnétique	192
<i>Appendice 2: Théorie de Néel du couplage magnétocristallin</i>	200
<i>Appendice 3: Anisotropie magnétocristalline et moment magné-</i>	
tique orbital en théorie des bandes	206
<i>Appendice 4: Effet de la rugosité sur l'anisotropie dipolai-</i>	
re de forme	214
 <i>Références</i>	217

*"Se li tuoi diti non sono a tal nodo
sufficienti, non è meraviglia;
tanto, per non tentare, è fatto sodo!"*

Dante Alighieri, 1300
La Divina Commedia, Paradiso, Canto XXVIII

ANISOTROPIE MAGNETIQUE ET HYSTERESIS DU COBALT
A L'ECHELLE DU PLAN ATOMIQUE: THEORIE ET EXPERIENCE

AVANT-PROPOS

Par bien des aspects, la Physique des Solides s'apparente à un "jeu de construction" extraordinaire: après avoir passé de nombreuses années à en élucider les règles (et bien que tout soit loin d'être compris), les physiciens et les chimistes s'attachent de plus en plus à élaborer des matériaux artificiels possédant des propriétés nouvelles, parfois même révolutionnaires! Un exemple éclatant de cette tendance est donné par la synthèse récente d'oxydes supraconducteurs à haute température critique.

Parmi les matériaux artificiels nouveaux, les films magnétiques ultraminces, dont l'étude a pris un essor considérable au cours de la dernière décennie, présentent l'aspect fascinant de pouvoir être préparés *plan atomique après plan atomique*, et ce, grâce au développement des techniques d'élaboration et de caractérisation en ultravide.

Lorsque l'épaisseur des films est réduite à quelques plans atomiques, les propriétés magnétiques des matériaux peuvent être considérablement modifiées. En particulier, des effets de surface (ou d'interface) ont été prédits théoriquement: modification du moment magnétique, et surtout, apparition d'une anisotropie magnétique extrêmement grande, pouvant être très supérieure à celle des matériaux massifs correspondants.

Cette anisotropie très importante est susceptible d'être utilisée pour des applications technologiques dans le domaine de l'enregistrement magnétique: en superposant des films magnétiques ultraminces, séparés par un matériau non magnétique, on peut espérer réaliser un matériau artificiel possédant à la fois une aimantation notable, et les propriétés d'anisotropie des films ultraminces.

L'étude expérimentale des propriétés magnétiques des films ultraminces est très délicate, à cause précisément de leur épaisseur extrêmement réduite: pour en donner une idée, disons que $0,2 \text{ cm}^3$ d'or, étalé en couche monoatomique, suffirait à redorer le dôme des Invalides! Dans un échantillon de taille usuelle (1cm x 1cm), la masse de métal magnétique est de seulement quelques fractions de microgramme; l'étude quantitative du magnétisme à l'échelle du plan atomique nécessite l'utilisation d'appareils extrêmement sensibles, tels les magnétomètres à SQUID.

Cette thèse présente l'étude expérimentale et théorique des propriétés magnétiques de films ultraminces de cobalt.

Je présente dans le chapitre 1 les résultats théoriques et expérimentaux déjà obtenus dans ce domaine. La suite de ce mémoire est divisée en deux parties; la première est consacrée aux études expérimentales (chapitres 2 à 5), la seconde aux études théoriques (chapitres 6 à 9).

Le chapitre 2 décrit la préparation et la caractérisation structurale des échantillons, réalisées par le groupe "Couches Mincees" de l'Institut d'Optique Théorique et Appliquée (Orsay). Deux types d'échantillons ont été préparés: des films Au/Co/Au, dont l'étude a été commencée par C. Chappert lors de sa thèse (1985), ainsi que des films Au/Cu/Co/Cu/Au.

Le chapitre 3 présente l'étude par résonance magnétique nucléaire et par résonance ferromagnétique des films Au/Cu/Co/Cu/Au; notamment, l'anisotropie magnétique de l'interface Cu/Co est comparée à celle de l'interface Au/Co.

Les chapitres 4 et 5 sont consacrés à l'étude par magnétométrie des films Au/Co/Au. Nous y mettons en évidence deux phénomènes nouveaux: à basse température, le champ coercitif augmente considérablement aux très faibles épaisseurs; à température ambiante, il existe un traînage important de l'aimantation. L'interprétation de ces phénomènes met l'accent sur le rôle prépondérant joué par la rugosité interfaciale.

Dans le chapitre 6, je présente la théorie de Néel de l'anisotropie magnétique des films ultraminces, puis j'en propose une extension au cas d'un système cristallin hexagonal (comme celui du cobalt).

Le chapitre 7 étudie, dans le cadre de la théorie des bandes, les effets du couplage spin-orbite dans les films ultraminces: l'anisotropie magnétocristalline, et, pour la première fois, le déblocage du moment orbital. Ces calculs prédisent un effet jamais encore observé: une anisotropie particulièrement importante du moment magnétique.

L'anisotropie magnétique induite par les déformations dues au désaccord paramétrique important à l'interface entre l'or et le cobalt est étudiée au chapitre 8.

Enfin, je présente dans le chapitre 9 une étude de l'influence de la rugosité interfaciale sur l'anisotropie magnétique des films ultraminces.

Afin de ne pas alourdir la lecture du texte, j'ai rassemblé à la fin de ce mémoire les calculs les plus pénibles. J'ai utilisé le système d'unités électromagnétiques c.g.s., qui est le plus répandu dans le domaine du magnétisme.

CHAPITRE 1

LE MAGNETISME DES FILMS METALLIQUES
ULTRAMINCES: UN PANORAMA

L'objet de ce chapitre est d'introduire les concepts essentiels à l'étude du magnétisme des films ultraminces de métaux de transition, de présenter les questions spécifiques soulevées par ces matériaux nouveaux, et de discuter (de façon non exhaustive) les résultats importants déjà obtenus dans ce domaine.

1-1. Caractéristiques structurales et propriétés magnétiques: quelques considérations d'ordre général

Les caractéristiques structurales des matériaux ferromagnétiques influent considérablement sur leurs propriétés magnétiques. Il est utile d'établir une classification des propriétés magnétiques en fonction de l'échelle des caractéristiques structurales auxquelles elles sont sensibles. Cette classification servira de fil directeur à la discussion ci-dessous.

Distinguons trois échelles de grandeurs (les limites proposées ne sont qu'indicatives):

- (i) à l'échelle *microscopique* (de 1 Å à 100 Å), l'aimantation varie peu en général, et peut être considérée comme uniforme;
- (ii) à l'échelle *mésoscopique* (de 100 Å à 100 μm), l'aimantation est uniforme en grandeur, mais pas en direction (présence de domaines et parois);
- (iii) à l'échelle *macroscopique* (de 100 μm à quelques cm), on peut de nouveau considérer l'aimantation comme uniforme, en effectuant une moyenne sur de nombreux domaines.

Cette classification se justifie également par le fait que les approches théoriques mises en oeuvre pour l'étude des propriétés magnétiques correspondantes sont fondamentalement très différentes.

Propriétés magnétiques influencées par les caractéristiques structurales à l'échelle microscopique

Ce sont celles que l'on qualifie parfois de fondamentales, ou d'intrinsèques: l'aimantation spontanée, la température de Curie, les constantes d'anisotropie et de magnétostriction, la relation de dispersion des ondes de spin, etc...

L'étude théorique de ces propriétés est basée sur la théorie quantique des solides, à divers degrés de sophistication; les interactions qui entrent en jeu à cette échelle sont essentiellement l'interaction d'échange (due en dernière analyse à l'interaction Coulombienne), et le couplage spin-orbite. La caractéristique de ces interactions est d'être à courte portée effective (quelques distances interatomiques); c'est la raison pour laquelle les propriétés associées sont sensibles essentiellement à la structure cristalline locale.

Propriétés dépendant de la structure macroscopique

Bien que beaucoup plus faible que l'interaction d'échange, l'interaction magnétique dipolaire, du fait de sa longue portée, devient prépondérante à l'échelle macroscopique; elle est responsable des phénomènes d'anisotropie de forme, de champ démagnétisant, etc..., lesquels dépendent des caractéristiques géométriques globales de l'échantillon considéré, indépendamment de la microstructure sous-jacente.

L'étude théorique de ces problèmes fait généralement appel à l'électrodynamique macroscopique de Maxwell.

Propriétés magnétiques sensibles à la structure à l'échelle mésoscopique

Les propriétés magnétiques dites "techniques" (coercivité, rémanence, susceptibilité initiale, etc...) sont très sensibles à la structure de l'échantillon à l'échelle mésoscopique (taille des cristaux, distribution des défauts, des tensions internes, etc...). Ces propriétés peuvent, pour un matériau donné, varier par plusieurs ordres de grandeur, en fonction du traitement thermique et mécanique (recuit, trempe, écrouissage, etc...) subi par l'échantillon. Elles sont associées à la décomposition en domaines, et à l'interaction des parois avec les défauts et inhomogénéités lors de leurs déplacements.

A l'échelle mésoscopique, les interactions d'échange, dipolaire, et spin-orbite (anisotropie magnétocristalline) jouent toutes un rôle important, aucune d'entre elles n'étant réellement négligeable devant les autres; ce fait, combiné au caractère désordonné de la structure mésoscopique, rend les études théoriques extrêmement complexes. Pour cette raison, ces études font largement appel à des modèles phénoménologiques.

1-2. Quelques rappels sur les propriétés fondamentales des métaux de transition à l'état massif

1-2.1. Interaction d'échange et aimantation spontanée

Afin d'expliquer la propriété de certains métaux de transition (le fer, le cobalt et le nickel) de présenter une aimantation spontanée en l'absence de champ magnétique, en dessous d'une température critique appelée température de Curie (T_c), Weiss (1907a) a fait l'hypothèse de l'existence d'une interaction favorisant l'alignement des moments magnétiques des différents atomes, à laquelle il a donné le nom de *champ moléculaire*. L'hypothèse du *champ moléculaire* a ainsi permis à Weiss de retrouver l'ensemble des propriétés essentielles des ferromagnétiques (aimantation spontanée, transition de phase vers un état paramagnétique).

La nature de l'interaction responsable du ferromagnétisme a été révélée par Heisenberg (1928), qui a montré qu'il s'agit d'une interaction d'essence purement quantique (elle provient du principe d'indiscernabilité de Pauli), et de nature Coulombienne (ce qui explique son ordre de grandeur très supérieur à celui des interactions magnétiques dipolaires). Ces travaux ont donné naissance au célèbre modèle de Heisenberg, dans lequel le Hamiltonien d'interaction s'écrit:

$$\mathcal{H} = - J \sum_{i \neq j} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \quad (1-1)$$

où la somme est restreinte aux sites i et j premiers voisins, \vec{S}_i et \vec{S}_j sont les spins des sites i et j , et J est l'*intégrale d'échange* (l'interaction responsable de l'alignement des spins est généralement appelée *interaction d'échange*).

Dans les métaux de la première série de transition, le moment magnétique est porté par les électrons 3d. Ces électrons, de caractère itinérant, forment une bande relativement étroite (3 à 5 eV) partiellement remplie, et se recouvrant avec la bande des électrons 4sp, beaucoup plus large. Le modèle de Heisenberg considère au contraire les électrons comme localisés sur un site atomique, et de ce fait, s'applique mal aux métaux de transition.

La théorie du magnétisme itinérant est fort complexe; une revue des multiples aspects du problème est présentée par Herring (1966), et plus récemment, par Gautier (1982) et Moriya (1985). On peut néanmoins en donner une idée à l'aide d'un modèle simple (Hubbard, 1963), dans lequel le hamiltonien s'écrit

$$\mathcal{H} = \sum_{i,j} \sum_{\sigma} t_{i,j} c_{i,\sigma}^{\dagger} c_{j,\sigma} + U_{eff} \sum_i \hat{n}_{i,\uparrow} \hat{n}_{i,\downarrow}, \quad (1-2)$$

où i et j indexent le site atomique, σ le spin, c^{\dagger} et c sont respectivement des opérateurs de création et d'annihilation, \hat{n} un opérateur nombre d'électrons, $t_{i,j}$ une intégrale de "saut", et U_{eff} une intégrale d'interaction Coulombienne intraatomique effective. Dans l'expression (1-2), le premier terme du second membre correspond au hamiltonien d'électrons sans interaction Coulombienne mutuelle (il comprend l'énergie cinétique et l'énergie potentielle d'interaction avec les ions); ce terme conduit à la délocalisation des électrons 3d, et à la création d'une bande de quelques eV de large. Le second terme décrit l'interaction Coulombienne interélectronique; seul le terme intraatomique (le plus important) a été conservé; le principe de Pauli interdisant à deux électrons de même spins d'occuper la même orbitale, seuls les électrons de spins opposés interagissent dans le hamiltonien de Hubbard (1-2); il apparaît immédiatement que ce dernier terme favorise la polarisation de spin de la bande 3d (c'est-à-dire le ferromagnétisme), puisqu'il conduit à une énergie plus élevée lorsque les électrons sont également répartis entre les deux états de spin. L'apparition (ou non) du ferromagnétisme résulte de la compétition entre:

- (i) le gain d'énergie d'interaction associé à la polarisation de la bande 3d;
- (ii) l'accroissement d'énergie cinétique dû au transfert d'électrons de la bande 3d_↓ vers la bande 3d_↑;

Ceci est exprimé par le critère de Stoner qui stipule qu'il y a apparition du ferromagnétisme si

$$N(E_F) U_{eff} > 1, \quad (1-3)$$

où $N(E_F)$ est la densité d'états par spin au niveau de Fermi, dans l'état paramagnétique.

Les méthodes modernes de calcul *ab initio* de la structure électronique des métaux (Andersen, 1975), basées sur la théorie de la fonctionnelle de la densité locale de spin (Hohenberg et Kohn, 1964; Kohn et Sham, 1965; von Barth et Hedin, 1972) permettent de prédire avec succès nombre de propriétés essentielles de l'état fondamental des métaux ferromagnétiques, telles que les paramètres cristallins, le module de compressibilité, le moment magnétique, etc... (Moruzzi et col., 1978, 1986, 1986; Markus et Moruzzi, 1985).

1-2.2. Aimantation à basse température. Ondes de spins

La notion d'*onde de spins* a été introduite par Bloch (1930), qui a montré que les excitations de basse énergie du hamiltonien de Heisenberg sont des états dans lesquels le renversement d'un spin est délocalisé sur tout le réseau; l'onde de spin est caractérisée par son vecteur d'onde \vec{k} et son énergie $E(\vec{k}) = \hbar\omega(\vec{k})$. La relation de dispersion des ondes de spins est $E(\vec{k}) \sim k^2$, de sorte que la densité d'états des ondes de spins est, à trois dimensions, $N(E) \sim \sqrt{E}$. Les ondes de spins (appelées aussi *magnons*) étant des bosons, la probabilité d'occupation d'un état excité est donnée par la distribution de Bose-Einstein. La variation d'aimantation $\Delta M(T) = M(0) - M(T)$ due à l'excitation thermique des ondes de spins est alors donnée par

$$- \Delta M(T) \sim \int_0^{+\infty} N(E) \frac{1}{\exp\left(\frac{E}{k_B T}\right) - 1} dE \sim (k_B T)^{3/2} \int_0^{+\infty} \frac{\sqrt{x}}{\exp(x) - 1} dx \sim T^{3/2}. \quad (1-4)$$

La variation en $T^{3/2}$ de l'aimantation à basse température, connue sous le nom de loi de Bloch, est bien vérifiée expérimentalement. Divers auteurs ont publiés des articles de revue sur les ondes de spins (van Kranendonk et van Vleck, 1958; Walker, 1963; Phillips et Rosenberg, 1966; Keffer, 1966; Akhiezer et col., 1968).

La validité pour les ferromagnétiques itinérants du concept d'onde de spins (introduit originalement par Bloch dans le cas des ferromagnétiques à

spins localisés) a tout d'abord été mise en doute. Sur la base d'une théorie macroscopique des ondes de spins, Herring et Kittel (1951) ont montré que l'existence d'états excités de basse énergie ($E \sim k^2$) résulte de considérations de symétrie, indépendamment du modèle microscopique sous-jacent. L'existence des ondes de spins dans les ferromagnétiques itinérants a par la suite été établie directement, tant expérimentalement par diffusion de neutrons (Lowde, 1956), que théoriquement (Izuyama et col., 1963); par ailleurs, on peut démontrer (Cyrot, 1970; Capellmann, 1979; Mathon, 1983) l'existence d'un hamiltonien de Heisenberg effectif pour les ferromagnétiques itinérants.

1-2.3. Anisotropie magnétocristalline

On observe expérimentalement qu'il est "plus difficile" d'aimanter un échantillon monocristallin dans certaines directions cristallographiques que dans d'autres; ceci est illustré par la figure 1-1. Cette *anisotropie magnétocristalline* traduit l'existence d'un terme d'énergie libre dépendant de l'orientation de l'aimantation par rapport aux axes cristallins.

On peut écrire l'énergie d'anisotropie sous la forme d'un développement en puissances des cosinus directeurs de l'aimantation par rapport au réseau cristallin, ou bien, de façon équivalente sous la forme d'un développement en harmoniques sphériques; l'expérience montre que le développement est rapidement convergent, et qu'un nombre restreint de termes suffit à décrire l'énergie d'anisotropie. L'expression de l'énergie d'anisotropie doit être compatible avec la symétrie du réseau cristallin; par ailleurs, la symétrie par renversement du temps impose à l'énergie d'être invariante par transformation de \vec{M} en $-\vec{M}$, de sorte que seuls les termes d'ordre pair sont autorisés; Birss (1964) présente une discussion très complète des considérations de symétrie.

Pour les cristaux cubiques (Fe, Ni), le premier terme non nul est d'ordre 4, et l'énergie d'anisotropie s'écrit:

$$E_a = K_1 (\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_3^2 \alpha_1^2) + K_2 \alpha_1^2 \alpha_2^2 \alpha_3^2, \quad (1-5)$$

où $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$ sont les cosinus directeurs de l'aimantation par rapport aux axes cubiques, et K_1 et K_2 sont les constantes d'anisotropie du matériau.

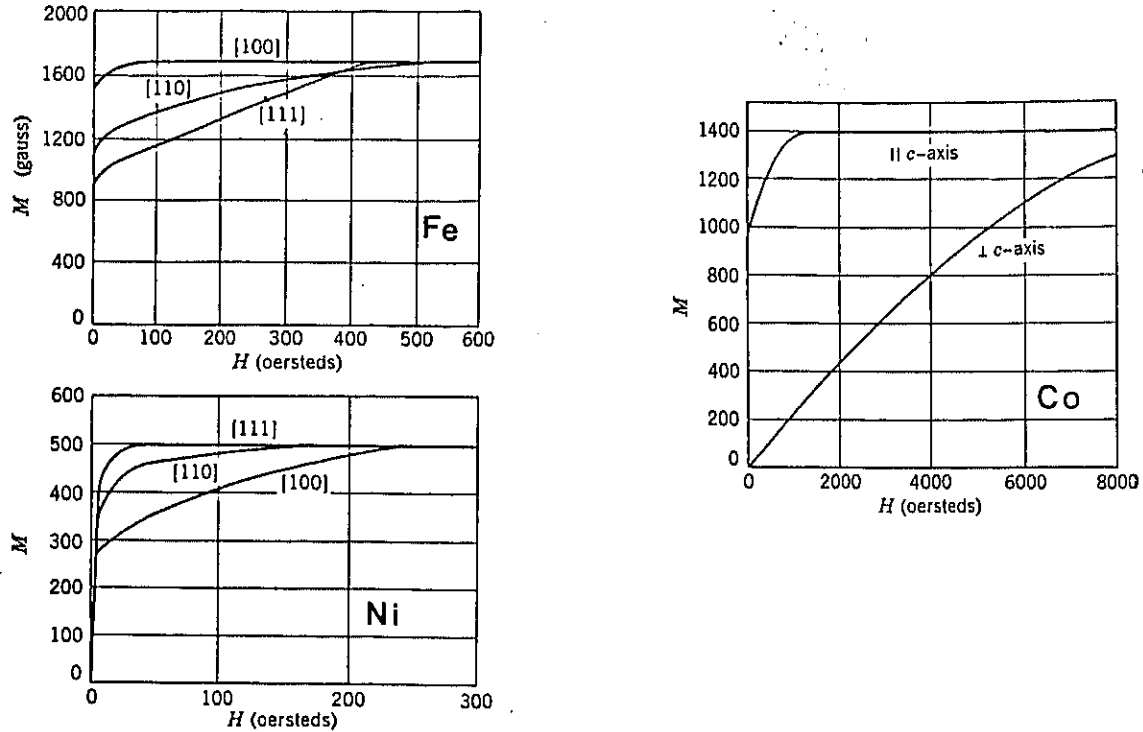


Figure 1-1: Courbes d'aimantation du fer, du cobalt et du nickel massifs dans différentes directions cristallographiques (d'après Morrish, 1965)

Tableau 1-1

	Fe	Co	Ni
K_1 (erg.cm ⁻³)	$4,81 \times 10^5$	$4,12 \times 10^6$	$- 5,48 \times 10^4$
K_2 (erg.cm ⁻³)	$1,2 \times 10^3$	$1,43 \times 10^6$	$- 2,47 \times 10^4$

Pour les cristaux hexagonaux (Co), le premier terme non nul du développement est d'ordre 2, et l'expression de l'énergie d'anisotropie est:

$$E_a = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta + K_3' \sin^6 \theta + K_3 \sin^6 \theta \cos(6\varphi) , \quad (1-6)$$

où θ et φ sont les angles sphériques usuels, l'axe polaire étant choisi parallèle à l'axe c du cristal.

Le tableau 1-1 rassemble les valeurs à température ambiante des constan-

tes d'anisotropie du fer (cc), du cobalt (hc), et du nickel (cfc) (Wohlfarth, 1980).

Notion de champ d'anisotropie:

On appelle *direction de facile aimantation* une direction correspondant à un minimum local de l'énergie libre; on peut repérer la direction de l'aimantation par de nouvelles coordonnées sphériques, θ' et φ' , l'axe polaire étant choisi suivant la direction de facile aimantation considérée. Pour de petites valeurs de θ' , exprimons l'énergie d'anisotropie par un développement en puissances de θ' , en nous limitant à l'ordre le plus bas, c'est-à-dire à l'ordre 2; si la direction de facile aimantation est un axe de symétrie cristalline d'ordre supérieur à 2, l'énergie d'anisotropie est, à l'ordre 2, indépendante de l'angle φ' , et s'écrit:

$$E_a \approx K' \theta'^2 ; \tag{1-7}$$

à un terme constant près, cette expression est de la même forme que l'énergie Zeeman due à un champ magnétique appliqué dans la direction de facile aimantation considérée:

$$E_z = - HM \cos \theta' \approx - HM \left(1 - \frac{\theta'^2}{2} \right) \tag{1-8}$$

Ceci montre que, aux petits angles, le couple dû à l'anisotropie magnéto-cristalline est analogue à celui exercé par un champ magnétique effectif H_a , appelé *champ d'anisotropie*, et valant

$$H_a = \frac{K'}{2M} . \tag{1-9}$$

Il est important de noter que la notion de champ d'anisotropie n'a de sens qu'au voisinage d'une direction de facile aimantation correspondant à un axe de symétrie d'ordre supérieur à 2; en effet, pour un axe de symétrie d'ordre 2, le couple de rappel subi par l'aimantation dépend de la direction dans laquelle celle-ci s'éloigne de l'axe considéré. On peut donc parler de champ d'anisotropie, lorsque la direction de facile aimantation est une direction [100] ou [111] d'un réseau cubique, ou l'axe c d'un réseau hexagonal, mais pas lorsqu'il s'agit d'une direction [110] d'un réseau cubique, ou

bien située dans le plan basal d'un réseau hexagonal.

Le grand avantage de la notion de champ d'anisotropie est d'exprimer l'anisotropie magnétocristalline en unité de champ magnétique, ce qui nous paraît généralement plus concret.

Origine physique de l'anisotropie magnétocristalline:

Le hamiltonien de Heisenberg (1-1), comme celui de Hubbard (1-2), est invariant par rotation de la direction de quantification des spins (c'est-à-dire de la direction de l'aimantation), et ne peut donc pas expliquer l'existence de l'anisotropie magnétocristalline. Pour ce faire, il faut introduire une interaction capable de coupler les spins au réseau cristallin. Le premier mécanisme auquel on peut songer est l'interaction magnétique dipolaire entre les spins; cependant l'anisotropie correspondant à ce mécanisme est environ 1000 fois trop faible pour expliquer les observations expérimentales.

Depuis les travaux de Bloch et Gentile (1931), et de van Vleck (1937), l'origine physique de l'anisotropie magnétocristalline est attribuée au couplage spin-orbite. La première étude théorique de l'anisotropie magnétocristalline des ferromagnétiques itinérants dans le cadre de la théorie des bandes est due à Brooks (1940), qui a utilisé la méthode semi-empirique des liaisons fortes; il a été suivi dans la même voie par d'autres auteurs (Fletcher, 1954; Mori, 1969; Kondorskii et Staube, 1973; Kondorskii, 1974; Mori et col., 1974a,b).

Ce n'est que très récemment que les puissantes méthodes de calcul *ab initio* de la structure électronique des métaux ont été appliquées au calcul de l'anisotropie magnétocristalline des métaux de transition massifs (Fritsche et col., 1987; Daalderop et col., 1988). L'introduction du couplage spin-orbite dans un calcul *ab initio* nécessite en effet l'utilisation de la théorie relativiste de Dirac, beaucoup moins maniable. Jusqu'à maintenant, les valeurs d'anisotropie magnétocristalline résultant de ces calculs sont en désaccord avec les résultats expérimentaux; ceci est probablement dû au fait que, dans les matériaux cubiques, l'énergie d'anisotropie est de l'ordre de quelques μeV , alors que l'énergie totale est de plusieurs eV, ce qui rend les calculs extrêmement délicats et les résultats incertains.

1-3. Propriétés magnétiques "techniques": domaines, parois, hystérésis

En champ nul, l'aimantation moyenne d'un corps macroscopique est souvent très inférieure à l'aimantation spontanée prévue par la théorie. Pour expliquer cette observation, Weiss (1907b) a émis l'hypothèse que les matériaux ferromagnétiques ont la possibilité de se décomposer en petits *domaines* ayant des directions d'aimantation différentes, de sorte que le moment magnétique résultant peut être très faible ou nul; cette interprétation a été confirmée expérimentalement lorsque Bitter (1931) a observé directement les domaines de Weiss. La raison physique en a été révélée par Landau et Lifschitz (1935), qui ont montré que l'énergie magnétostatique se trouve fortement diminuée par la décomposition en domaines. La structure de la paroi séparant deux domaines de directions d'aimantation différentes a été précisée par Bloch (1932), qui a montré que le changement de direction de l'aimantation se produit graduellement, et que l'épaisseur de la paroi résulte d'une compétition entre l'énergie d'échange (favorisant les parois larges) et l'énergie d'anisotropie (favorisant les parois étroites). Les dimensions typiques des domaines sont très variables ($\approx 10 \mu\text{m}$ à 1 mm); les épaisseurs de parois sont de l'ordre de quelques centaines d'angströms.

Les propriétés liées au cycle d'hystérésis, telles que le champ coercitif, la susceptibilité initiale, l'aimantation rémanente, dépendent des mécanismes d'aimantation, des mouvements de parois, etc... Ces propriétés jouent un rôle essentiel dans les applications technologiques (matériaux "doux" ou "durs"), d'où leur qualification de "techniques". L'étude théorique en a été développée par l'Ecole Allemande (Becker, Döring, Kersten), puis par Néel et ses collaborateurs. Une revue récente de ces problèmes est donnée par Kléman (1982).

1-4. Propriétés magnétiques des films métalliques ultraminces

Le magnétisme des films métalliques ultraminces soulève un certain nombre de questions fondamentales. En effet, la réduction de l'une des dimensions à quelques plans atomiques et l'abaissement de la symétrie du système peuvent en modifier considérablement les propriétés magnétiques intrinsèques et "techniques".

Concernant les propriétés magnétiques intrinsèques, on peut soulever les problèmes suivants:

- (i) les propriétés magnétiques de l'état fondamental ($T=0$ K) des films ultraminces différent-elles de celles de l'état massif? En particulier:
 - (a) les métaux de transition qui sont ferromagnétiques à l'état massif (Fe, Co, Ni) le sont-ils encore en couche ultramince? A l'inverse, des métaux qui ne sont pas ferromagnétiques à l'état massif peuvent-ils le devenir aux très faibles épaisseurs?
 - (b) le moment magnétique par atome et l'intégrale d'échange différent-t-ils de ceux du matériau massif correspondant?
 - (c) quelle est l'anisotropie magnétocristalline d'un film ultramince?

Il se pose également la question de savoir quelle est l'influence du substrat sur ces propriétés, ainsi que leur variation en fonction de l'épaisseur du film et des caractéristiques cristallographiques (orientation de la surface, paramètres cristallins).

- (ii) quelle est la variation de l'aimantation à basse température, dans le domaine des ondes de spins?
- (iii) quels sont la température de transition et les exposants critiques? Je ne fais que mentionner le problème du comportement critique, qui ne sera plus évoqué par la suite; en effet, dans le cas du cobalt, la température de Curie est trop élevée pour que l'on puisse atteindre le point de transition sans détruire les films eux-mêmes.

Pour les propriétés "techniques", nous pouvons nous demander si les concepts élaborés pour les matériaux massifs (domaines, parois) peuvent être étendus au cas de films de quelques plans atomiques d'épaisseur. Quels sont alors les mécanismes de renversement de l'aimantation? Quelle est l'influence de la structure mésoscopique sur le champ coercitif, la forme du cycle d'hystérésis, la valeur de l'aimantation rémanente? Les défauts spécifiques des films ultraminces, tels que la rugosité interfaciale, jouent-ils un rôle particulier?

Autant de questions de la plus haute importance, dans l'optique d'applications technologiques potentielles des films magnétiques ultraminces.

1-4.1. Moment magnétique des films ultraminces, à $T=0$ K

Les tableaux 1-2 à 1-4 rassemblent les valeurs du moment magnétique de spin (en $\mu_B \cdot \text{atome}^{-1}$) calculées théoriquement pour des surfaces libres, ou des couches monoatomiques libres, de fer, cobalt et nickel, respectivement. Le nickel a été largement étudié au début des années 80, alors que les calculs récents se rapportent essentiellement au cas du fer; de façon très surprenante, le cobalt a été plutôt délaissé (en particulier, il n'existe qu'un seul calcul *ab initio* le concernant).

On constate qu'il y a une augmentation monotone du moment magnétique par atome, lorsque le nombre de premiers voisins diminue (j'ai indiqué également, dans certains cas, le nombre de seconds voisins entre parenthèses). Cette tendance apparaît aussi bien dans les calculs en liaisons fortes (semi-empiriques) que les études *ab initio*. Elle provient du rétrécissement de la bande 3d lorsque la coordination diminue (ce qui renforce la densité d'états au niveau de Fermi), accompagné d'une déshybridation entre les électrons 3d et 4sp. Signalons également que la déviation du moment atomique par rapport à sa valeur à l'état massif est pratiquement confinée à la couche atomique située à la surface; ceci est dû à l'écrantage par les électrons de la perturbation causée par la surface. Mathon (1988) présente une revue et une discussion détaillées de ces aspects théoriques.

Remarquons enfin que toutes les études théoriques citées ci-dessus ne prennent en compte que la contribution de spin du moment magnétique, laissant de côté la contribution orbitale; en effet, dans les métaux de transition, cette dernière est presque entièrement bloquée par le champ cristallin, et sa contribution est nettement plus faible que celle du spin. Le problème du moment orbital dans les films ultraminces sera abordé au chapitre 7.

La vérification expérimentale de ces prédictions théoriques est fort problématique; plusieurs voies ont été explorées:

- (i) par mesure directe du moment magnétique; le problème qui se pose alors est de mesurer *in vacuo*, à basse température (afin de s'affranchir des effets d'ondes de spins) le moment magnétique absolu d'un film ultramine, avec une sensibilité suffisante. Utilisant un magnétomètre à torsion (TOM) fonctionnant en ultravide, Gradmann et Bergholz (1984) ont observé à température ambiante à la surface de films de Ni (111)

Tableau 1-2

fer	nombre de voisins	$M (\mu_B)$	référence
atome	0	4	(règle de Hund)
monocouche cc (001)	0 (4)	3,42 3,4 3,2	Noffke et Fritsche (1981), <i>ab initio</i> Richter et col. (1985), <i>ab initio</i> Fu et col. (1985), <i>ab initio</i>
monocouche cfc (001)	4	2,85	Bruno, liaisons fortes (chap. 7)
surface cc (001)	4 (4)	2,9 2,98 2,9	Richter et col. (1985), <i>ab initio</i> Weinert et col. (1985), <i>ab initio</i> Victora (1986), liaisons fortes
monocouche cfc (111)	6	2,75	Bruno, liaisons fortes (chap. 7)
surface cc (110)	6 (2)	2,55	Victora (1986), liaisons fortes
surface cfc (001)	8	2,83	Onellion et col. (1986), <i>ab initio</i>
cc massif	8	2,2	Wohlfarth (1980)

Tableau 1-3

cobalt	nombre de voisins	$M (\mu_B)$	référence
atome	0	3	(règle de Hund)
monocouche cfc (001)	4	1,85	Bruno, liaisons fortes (chap. 7)
monocouche cfc (111)	6	1,90 1,75	Noffke et Fritsche (1981), <i>ab initio</i> Bruno, liaisons fortes (chap. 7)
surface cfc (111)	9	1,65	Victora et Falicov (1983), liaisons fortes
hc massif	12	1,56	Wohlfarth (1980)

Tableau 1-4

nickel	nombre de voisins	$M (\mu_B)$	référence
atome libre		2	(règle de Hund)
monocouche cfc (110)	2 (2)	0,93	Freeman (1983), <i>ab initio</i>
surface cfc (110)	3 (2)	0,75	Freeman (1983), <i>ab initio</i>
monocouche cfc (001)	4	0,90 0,95 0,86 0,8	Noffke et Fritsche (1981), <i>ab initio</i> Jepsen et col. (1982), <i>ab initio</i> Freeman (1983), <i>ab initio</i> Bruno, liaisons fortes (chap. 7)
monocouche cfc (111)	6	0,7	Bruno, liaisons fortes (chap.7)
surface cfc (001)	8	0,74 0,65 0,73 0,68	Tersoff et Falicov (1982), liaisons fortes Jepsen et col. (1982), <i>ab initio</i> Freeman (1983), <i>ab initio</i> Wimmer et col. (1984), <i>ab initio</i>
surface cfc (111)	9	0,65 0,63	Tersoff et Falicov (1982), liaisons fortes Fu et Freeman (1988), <i>ab initio</i>
cfc massif	12	0,56	Wohlfarth (1980)

une diminution d'aimantation équivalant à 2,5 "couches mortes". Il n'est pourtant pas possible de discriminer dans cette expérience la variation d'aimantation de l'état fondamental, de celle due à l'excitation thermique des ondes de spins.

(ii) la diffraction d'électrons lents à spin polarisé (SPLEED) (Feder, 1986; Alvarado et col., 1986), la photoémission avec analyse de la polarisation de spin (Klébanoff et col., 1986), l'effet Kerr magnétooptique (MOKE) (Bader et col., 1986) sont sensibles à l'aimantation de la surface; si ces techniques permettent indiscutablement de détecter le magnétisme d'une surface, l'analyse quantitative des résultats, en termes de moment atomique par atome, est indirecte: elle repose généralement sur la comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux obtenus à partir d'un modèle théorique. Bien que prometteur, ce type d'études n'a pas encore atteint sa pleine maturité.

(iii) dans le cas du fer, la spectroscopie Mössbauer permet l'étude du champ hyperfin; une particularité extrêmement intéressante de cette

technique est qu'elle constitue une sonde locale. Je ne discuterai pas les résultats obtenus par cette méthode, en renvoyant aux articles de revue publiés par Bayreuther (1983, 1988).

Expérimentalement, il est beaucoup plus commode d'étudier quantitativement le magnétisme de films ultraminces en contact avec un métal non magnétique; les mesures peuvent alors être réalisées en dehors de l'enceinte de préparation.

Le cas du nickel a fait l'objet de nombreuses études, tant théoriques qu'expérimentales, et illustre particulièrement bien le rôle prépondérant joué par le métal non magnétique avec lequel il est mis en contact. Par un calcul en liaisons fortes, Tersoff et Falicov (1982) trouvent une diminution d'environ 30% de l'aimantation du nickel, pour des interfaces Cu(001)/Ni(001) et Cu(111)/Ni(111). Ces résultats sont en accord qualitatif avec les calculs *ab initio* de Wang et col. (1982) pour l'interface Cu(001)/Ni(001) et de Fu et Freeman (1988) pour l'interface Cu(111)/Ni(111). La diminution du moment du nickel est attribuée à l'hybridation entre les électrons 4sp du cuivre et 3d du nickel. Bergter et col. (1985) ont mis en évidence expérimentalement la diminution d'aimantation à l'interface Cu(111)/Ni(111), en mesurant *in vacuo* la variation d'aimantation lors du dépôt d'une couche de cuivre sur la surface de nickel (fig. 1-2). L'effet du substrat est encore plus important à l'interface Au(111)/Ni(111), conduisant à la suppression du ferromagnétisme de films Au/Ni/Au pour des épaisseurs de Ni inférieures à 5 Å (Chappert, 1985; Beauvillain et col., 1986). Une discussion plus détaillée du cas du nickel est donnée dans un article de revue par Renard et Beauvillain (1987).

Le fer γ (cfc) est un autre cas très intéressant, montrant clairement l'influence des paramètres structuraux sur les propriétés magnétiques. A l'état massif, le fer est de structure cc à température ambiante et ferromagnétique; la phase cfc peut être stabilisée à température ambiante, sous forme de précipité au sein d'une matrice de cuivre, et est alors antiferromagnétique (Johanson et col., 1970; Gonser et col., 1963). La phase cfc peut également être obtenue à température ambiante, sous une forme métastable, par croissance épitaxiale sur un substrat de cuivre (001) ou (111). Les propriétés magnétiques des films métastables de fer γ ont fait l'objet de controverse: certains auteurs observent que le fer est paramagnétique

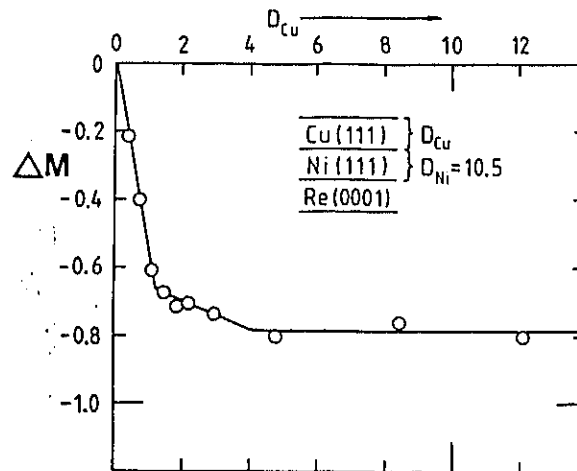


Figure 1-2: Variation du moment magnétique d'un film de nickel lors du dépôt d'une couche de cuivre de couverture (d'après Bergter et col., 1985). L'unité de moment magnétique correspond à 1 plan atomique de nickel.

(Becker et col., 1983), d'autres antiferromagnétique (Halbauer, 1983), d'autres encore ferromagnétique (Kümmerle et Gradmann, 1977; Pescia et col., 1987; Dutcher et col., 1988; Stampanoni et col., 1988; Liu et col., 1988).

Cette dispersion des résultats est due au fait que l'état magnétique de plus basse énergie du fer γ dépend fortement du paramètre cristallin: Moruzzi et col. (1989) ont montré, par des calculs *ab initio* d'énergie totale pour diverses valeurs du paramètre cristallin et diverses configurations magnétiques, que le fer γ (massif) passe de l'état antiferromagnétique à l'état ferromagnétique sous l'effet d'une légère dilatation du réseau. L'observation du ferromagnétisme dans les films ultraminces de fer γ sur cuivre provient donc peut être de l'étirement du réseau imposé par le substrat de cuivre, la dispersion des résultats pouvant être attribuée à de faibles variations des paramètres cristallins, en fonction des conditions de préparation (température du substrat, vitesse de croissance, etc...).

1-4.2. Anisotropie magnétique des films ultraminces

1-4.2.1. Interactions dipolaires. Champ démagnétisant

L'énergie d'interaction dipolaire entre deux moments magnétiques \vec{m}_i et \vec{m}_j

s'écrit

$$E_{ij} = \frac{\vec{m}_i \cdot \vec{m}_j}{r_{ij}^3} - \frac{3 (\vec{m}_i \cdot \vec{r}_{ij}) (\vec{m}_j \cdot \vec{r}_{ij})}{r_{ij}^5} . \quad (1-10)$$

Cette interaction est anisotrope, car elle dépend de la direction des spins relativement à la direction ij . La prise en compte de l'anisotropie d'origine dipolaire se fait généralement dans l'approximation du milieu continu; l'énergie dipolaire est alors l'énergie d'interaction entre l'aimantation et le champ dipolaire dû à la divergence de l'aimantation. Dans le cas d'un film infini aimanté uniformément, le champ dipolaire est créé par de pseudo-charges magnétiques situées sur les surfaces du film, avec des densités valant respectivement $+M_s \cos \theta$ et $-M_s \cos \theta$, où M_s est l'aimantation et θ l'angle entre la direction de l'aimantation et la normale au film. Dans le cas où l'aimantation est uniforme, l'énergie dipolaire prend la forme d'une anisotropie effective, proportionnelle au volume V du film:

$$E_{dip} = V 2 \pi M_s^2 \cos^2 \theta . \quad (1-11)$$

Le champ créé par les pseudo-charges magnétiques est opposé à la composante normale de l'aimantation, et vaut $4\pi M_s$ lorsque celle-ci est perpendiculaire au plan; ce champ, appelé champ démagnétisant, s'oppose à l'aimantation, et l'oblige à se coucher parallèlement au plan. Cet effet est très important, puisque pour le cobalt, par exemple, le champ démagnétisant vaut 17,7 kOe.

Il faut bien garder présent à l'esprit que ce n'est que lorsque l'aimantation est uniforme que l'interaction dipolaire prend la forme simple d'une densité locale d'énergie d'anisotropie, et d'un champ effectif uniforme. Dans le cas général où l'aimantation est non uniforme, l'énergie dipolaire est non locale, et prend une forme beaucoup plus compliquée.

La validité de l'approximation continue, que l'on peut légitimement mettre en doute *a priori* dans le cas de films ultraminces, a été étudiée par Draaisma et de Jonge (1988), qui ont calculé directement l'énergie dipolaire sous la forme (1-10). Il ressort de leurs calculs que l'effet de la structure discontinue de la matière est très faible pour des structures relativement compactes telles que celles adoptées par les métaux de transition, et que l'approximation continue est alors excellente.

1-4.2.2. Anisotropie magnétocristalline des films ultraminces

Nous avons souligné, au paragraphe 1-2.3., le rôle déterminant de la symétrie pour l'anisotropie magnétocristalline. Considérons un cristal cubique: sa haute symétrie interdit les termes d'anisotropie d'ordre inférieur à 4; par contre, si nous prenons une couche mince (001) de ce cristal cubique, la symétrie est brisée, puisque la direction perpendiculaire au film n'est plus équivalente aux autres axes cubiques; un terme d'anisotropie d'ordre 2 est alors permis. Par ailleurs ce terme d'ordre 2 doit tendre vers zéro pour une épaisseur tendant vers l'infini, de façon à retrouver la situation du cristal massif.

Néel (1953, 1954) a été le premier à s'intéresser à l'anisotropie magnétocristalline résultant de cette rupture de symétrie. Il a considéré l'anisotropie d'atomes situés à la surface d'un cristal massif, à l'aide d'un modèle phénoménologique simple (qui sera exposé en détail au chapitre 6), et a montré que l'environnement dissymétrique de ces atomes leur confère une anisotropie différente de celle d'atomes situés à l'intérieur du cristal:

"Il doit exister dans les corps ferromagnétiques, une énergie d'anisotropie superficielle, dépendant de l'orientation de l'aimantation spontanée par rapport à la surface et ne présentant d'ailleurs aucun rapport avec le phénomène classique de champ démagnétisant de forme. Cette énergie de surface, de l'ordre de 0,1 à 1 erg/cm², est susceptible de jouer un rôle important dans les propriétés des substances ferromagnétiques dispersées en éléments de dimensions inférieures à 100 Å" (Néel, 1954).

L'anisotropie correspondante est confinée à la (ou aux) première(s) couche(s) atomique(s), de sorte qu'elle est décrite non pas par une densité volumique, mais par une densité surfacique. L'énergie d'anisotropie d'atomes de surface peut être 100 à 1000 fois plus importante que celle des atomes de volume! Il s'agit donc d'un effet de surface quantitativement très important, et susceptible de conséquences spectaculaires.

Dans le cas d'une surface de haute symétrie ((001) ou (111)), l'anisotropie de surface est uniaxiale, et la densité surfacique correspondante peut s'écrire

$$\frac{E_s}{S} = K_s \sin^2 \theta, \quad (1-12)$$

où θ est l'angle entre l'aimantation et la normale au plan, et K_s est une constante d'anisotropie de surface. Conventionnellement, on attribue une constante d'anisotropie à chacune des deux surfaces (ou interfaces) du film, de sorte que l'énergie d'anisotropie totale prend la forme

$$E_a = \left[V \left(K_v - 2\pi M_s^2 \right) + S \left(K_{s1} + K_{s2} \right) \right] \sin^2 \theta . \quad (1-13)$$

Dans l'équation (1-13), K_{s1} et K_{s2} sont les constantes d'anisotropie respectives des deux interfaces, K_v la constante d'anisotropie de volume (qui peut être non nulle, par exemple pour un cristal hc), et $-V 2\pi M_s^2 \sin^2 \theta$ est (à un terme constant près) l'anisotropie d'origine dipolaire.

Dans une étude expérimentale de l'anisotropie (par mesure de couple, ou par résonance ferromagnétique), la quantité mesurée est généralement une constante volumique effective K_v^{eff} , donnée par

$$K_v^{eff} = K_v - 2\pi M_s^2 + \frac{(K_{s1} + K_{s2})}{e} , \quad (1-14)$$

où e est l'épaisseur du film. L'anisotropie effective varie linéairement en fonction de $1/e$. L'étude pour diverses épaisseurs de K_v^{eff} permet ainsi d'obtenir $K_v - 2\pi M_s^2$ et la valeur moyenne de la constante d'anisotropie de surface $K_s = (K_{s1} + K_{s2})/2$, respectivement en mesurant l'abscisse à l'origine et la pente de la droite représentant K_v^{eff} en fonction de $1/e$ (en faisant l'hypothèse que M_s ne varie pas avec l'épaisseur).

Etant donné que K_v est généralement inférieur à $2\pi M_s^2$, ce dernier terme est dominant aux épaisseurs importantes, de sorte que la direction de facile aimantation est parallèle au plan. En revanche, si le terme de surface K_s est positif, il peut, en dessous d'une épaisseur critique e_c , surpasser l'anisotropie dipolaire, et donner lieu à une direction de facile aimantation perpendiculaire au plan. La valeur de l'épaisseur critique est

$$e_c = \frac{2K_s}{2\pi M_s^2 - K_v} . \quad (1-15)$$

La dépendance linéaire en $1/e$ de l'anisotropie a été observée pour la première fois par Gradmann et Müller (1968), pour des films d'alliage

Tableau 1-5

système	T (K)	K_s (erg.cm ⁻²)	référence
Ni(111)/ultravide	300	-0,48	Gradmann (1986)
Cu(111)/Ni	300	-0,22	Gradmann (1986)
Re(0001)/Ni(111)	300	-0,19	Gradmann (1986)
Ni(111)/O ₂	300	≈ 0	Elmers et Gradmann (1988)
α-Fe(001)/ultravide	293	+1	Purcell et col. (1988)
Ag(001)/α-Fe	293	+0,6	Urquhart et col. (1988)
Au(001)/α-Fe/ultravide	293	≈ 0	Bader et Moog (1987) Dürr et col. (1988)
W(110)/α-Fe/ultravide	293	-0,5	Gradmann et col. (1986)
Ag(111)/α-Fe(110)/Ag	10	≈ 0	Lugert et Bayreuther (1988)
Au(111)/α-Fe(110)/Au	10	≈ +0,4	Lugert et Bayreuther (1989)
Cu(001)/γ-Fe/ultravide	100	+1	Liu et col. (1988)
Cu(001)/γ-Fe/Cu	300	+0,5	Dutcher et col. (1988)
Au(111)/Co/Au	5 291	+0,7 +0,5	Chappert et col. (1986)

Ni₄₈Fe₅₂; ils ont mesuré une constante d'anisotropie de surface $K_s=0,23$ erg.cm⁻², induisant un basculement de l'aimantation hors du plan du film en dessous de 2 couches atomiques. Signalons que certains auteurs (Néel, Gradmann) adoptent une convention différente pour l'anisotropie de surface, qu'ils écrivent $K_s \cos^2 \theta$. Cette notation est absolument équivalente (à un terme constant près) à la forme (1-12), et conduit à adopter la convention de signe opposée pour K_s ; dans tout ce manuscrit, les constantes d'anisotropie seront exprimées avec la convention (1-12): un signe positif pour K_s indique une anisotropie favorisant la direction perpendiculaire.

Bien qu'en principe la détermination de l'anisotropie de surface nécessite l'étude de la variation de l'anisotropie en fonction de $1/e$, on peut en obtenir une évaluation grossière, dans le cas où elle est positive et suffisamment importante pour donner lieu à un basculement hors du plan de l'axe de facile aimantation, par la mesure de l'épaisseur critique. Le tableau 1-5 présente l'ensemble des résultats obtenus par divers auteurs. Dans le cas

d'un film, la valeur indiquée pour K_s correspond à la valeur moyenne sur les deux interfaces.

Comme nous pouvons le constater, K_s varie largement d'un système à l'autre, y compris en signe; toutefois, l'ordre de grandeur observé est toujours compris entre 0,1 et 1 erg.cm⁻², ce qui correspond précisément à l'évaluation de Néel (1953, 1954). Le cas du nickel (111) illustre bien l'influence du substrat, ou de l'adsorption d'un gaz (O₂) sur l'anisotropie. Il est intéressant de remarquer que, pour un métal donné dans une orientation donnée, l'anisotropie peut dépendre également de la nature du substrat (par exemple Ag(111)/Fe(110) et Au(111)/Fe(110)).

Les épaisseurs critiques au-dessous desquelles on obtient un axe de facile aimantation perpendiculaire au plan sont très faibles (généralement 1 ou 2 plans atomiques); la valeur la plus importante (environ 6 plans atomiques) est celle observée par Chappert et col. (1986) sur les films Au/Co/Au qui sont étudiés également dans cette thèse.

Les surfaces de basse symétrie, telles que la face (110) du fer α , présentent une particularité intéressante: outre la composante $K_s \sin^2 \theta$, il peut exister une anisotropie de surface dans le plan du film, de la forme $K'_s \cos(2\varphi) \sin^2 \theta$; une telle anisotropie a été observée pour le fer (110), et donne lieu, pour des épaisseurs inférieures à environ 100 Å, au changement d'axe de facile aimantation *dans le plan*, de [001] à [$\bar{1}10$] (Prinz et col., 1982; Gradmann et col., 1986). Remarquons qu'un tel effet ne peut être observé que pour des films monocristallins; en effet, pour un film polycristallin, l'anisotropie dans le plan est moyennée par la texture; l'observation d'une telle anisotropie constitue ainsi une évidence de la structure monocristalline.

Afin d'aller au-delà du modèle phénoménologique de Néel, divers auteurs ont tenté de calculer l'anisotropie magnétocristalline de films ultraminces de métaux de transition dans le cadre théorique du magnétisme itinérant, soit par des méthodes semi-empiriques de liaisons fortes (Bennett et Cooper, 1971; Takayama et col., 1976), soit plus récemment, par des calculs *ab initio* (Gay et Richter, 1986, 1987; Karas et col., 1988). Ces études seront discutées en détail au chapitre 7. Signalons néanmoins que de sérieux problèmes semblent se poser: par exemple, les calculs similaires de Gay et Richter (1986) et de Karas et col. (1988) prédisent des signes opposés pour l'anisotropie d'un film monoatomique cc (001) de fer!

1-4.3. Variation thermique de l'aimantation spontanée

Dans son article fondateur de la théorie des ondes de spins, Bloch (1930) faisait déjà remarquer qu'un système bidimensionnel décrit par un hamiltonien de Heisenberg ne peut pas présenter d'aimantation spontanée à température non nulle; l'argument de Bloch est le suivant: la relation de dispersion des ondes de spin étant $E \sim k^2$ pour $k \approx 0$, leur densité d'états dans un système bidimensionnel est indépendante de E pour $E \gg 0$. La variation d'aimantation due à l'excitation thermique des ondes de spins est alors donnée par

$$-\Delta M(T) \sim \int_0^{+\infty} \frac{N(E) dE}{\exp\left(\frac{E}{k_B T}\right) - 1} \sim k_B T \int_0^{+\infty} \frac{dx}{\exp(x) - 1} \quad (1-16)$$

L'intégrale (1-16) diverge logarithmiquement à sa borne inférieure, suggérant que l'aimantation doit être nulle à température finie; en toute rigueur, ceci démontre seulement que la théorie linéarisée des ondes de spins, valable seulement si $|\Delta M(T)|$ est nettement inférieur à $M(T=0)$ (Dyson, 1956; Oguchi, 1960), n'est pas applicable. L'argument de Bloch s'est par la suite trouvé confirmé par un théorème fameux dû à Mermin et Wagner (1966), qui ont montré qu'il ne peut pas exister d'ordre magnétique à longue distance, pourvu que soient vérifiées les hypothèses suivantes:

- (i) le système est bidimensionnel (son extension spatiale doit être infinie dans deux directions);
- (ii) l'interaction entre les spins est isotrope;
- (iii) l'interaction est à courte portée (plus précisément, elle doit décroître avec la distance plus rapidement que $1/r^3$);

Ce théorème a suscité une importante activité expérimentale, dans le but d'en vérifier les prédictions. S'il constitue incontestablement un résultat important de la physique théorique, l'intérêt pratique du théorème de Mermin-Wagner est moins certain; on peut en effet se convaincre aisément qu'aucune de ses hypothèses n'est vérifiée dans un système réel:

- (i) un système réel est toujours d'extension finie;
- (ii) compte tenu de sa basse symétrie, un système bidimensionnel présente généralement une certaine anisotropie, si faible soit-elle;
- (iii) dans un systèmes de moments magnétiques, il existe toujours une interaction à longue portée: l'interaction magnétique dipolaire.

L'influence de ces écarts à la situation idéale considérée par Mermin et Wagner a été étudiée par divers auteurs, principalement dans le cadre du modèle des ondes de spins.

L'effet de la taille finie du système a été considéré tout d'abord par Klein et Smith (1951) et Glass et Klein (1958), et surtout par Döring (1961a) qui en a donné une discussion très approfondie et des plus pertinentes: la divergence logarithmique de l'intégrale (1-16) pour un système infini est due à la grande densité de modes au voisinage de $k=0$; pour un système fini, il y a quantification du vecteur d'onde, de sorte que seul le mode $k=0$ est encore divergent. Döring a montré que ce mode décrit les fluctuations superparamagnétiques inhérentes à tout système d'extension finie; par contre, il ne contribue pas à la variation d'aimantation spontanée proprement dite, et peut donc être laissé de côté. On trouve alors que le système peut présenter une aimantation spontanée non nulle à température finie, dépendant logarithmiquement de la dimension latérale du système. L'aimantation garde une valeur notable tant que la température est suffisamment faible pour que la longueur de corrélation des fluctuations d'aimantation soit supérieure à la taille latérale du système; ceci permet de faire le lien avec le théorème de Mermin-Wagner: plus la taille du système est grande, plus le domaine de température présentant une aimantation notable est réduit; à la limite d'un système infini, il tend vers zéro.

Herring et Kittel (1951) ont noté que l'application d'un champ magnétique infinitésimal suffit à stabiliser l'aimantation à température non nulle: en effet, il apparaît une bande interdite de largeur $2S\mu_B H$ au bas du spectre des ondes de spins, supprimant la divergence logarithmique de l'intégrale dans l'équation (1-16). Une anisotropie uniaxiale du type "axe facile", caractérisée par un champ d'anisotropie, a un effet de stabilisation analogue, et donne lieu à une aimantation spontanée non nulle à température finie.

Döring (1961a) a comparé l'influence respective d'un champ d'anisotropie, et de l'extension finie du système, et a conclu que la variation de l'aimantation en fonction de celle-ci disparaît dès que l'on introduit un champ d'anisotropie. Döring (1961b) a calculé, sous la forme d'un développement à l'ordre 2 en puissances de T , la variation thermique de l'aimantation spontanée, en fonction du champ d'anisotropie, et du nombre N de plans atomiques; Corciovei (1963) en a donné une expression analytique. Ces calculs montrent que, pour les très faibles épaisseurs, la rapidité de la décrois-

sance thermique de l'aimantation dépend fortement de l'anisotropie.

L'influence de l'interaction dipolaire, à la fois anisotrope et à longue portée, a été considérée par Navarro et de Jongh (1979), et par Yafet et col. (1986b). Navarro et de Jongh (1979) ont introduit l'interaction dipolaire sous la forme d'un champ magnétique effectif; cette approche est probablement trop naïve: en effet, l'anisotropie induite par les interactions dipolaires est uniaxiale de type "plan facile" et ne peut pas être représentée par un champ magnétique effectif; en particulier, à l'inverse d'un champ magnétique, une telle anisotropie n'ouvre pas de bande d'énergie interdite au bas du spectre des ondes de spins, et ne suffit pas donc à supprimer la divergence logarithmique dans l'équation (1-16). Yafet et col. (1988) ont pris en compte d'une façon plus réaliste l'interaction dipolaire, et ont montré qu'en raison de la longue portée de cette dernière, l'intégrale ne diverge plus, et l'on peut alors avoir une aimantation macroscopique non nulle à température finie.

Les résultats expérimentaux les plus intéressants ont été obtenus pour le fer par spectroscopie Mössbauer (Korecki et Gradmann, 1986; Stern et col., 1988; Lugert et Bayreuther, 1988); cette technique permet en effet d'étudier la variation thermique de l'aimantation séparément pour les différents plans atomiques constituant la couche. Cette méthode est basée sur l'hypothèse que la variation thermique du champ hyperfin local est proportionnelle à celle de l'aimantation locale; la validité de cette hypothèse a été vérifiée par Lugert et Bayreuther (1988). Les résultats expérimentaux sont généralement analysés en terme d'une pseudo loi de Bloch empirique:

$$\frac{M(T)}{M(T=0)} = 1 - B^{eff} T^{3/2}. \quad (1-17)$$

avec un paramètre de Bloch effectif B^{eff} différent de celui du matériau massif B_v . Une telle approche a été récemment justifiée théoriquement (dans le cas de la surface d'un corps ferromagnétique semi-infini) par Mathon et Ahmad (1988) et Ahmad et col. (1988). Pour l'interface Ag(111)/Fe(110), le rapport B_s/B_v (où B_s est le paramètre de Bloch de la surface) est évalué à 2,5 environ (Korecki et Gradmann, 1986; Stern et col., 1988; Lugert et Bayreuther, 1988). Cette valeur est supérieure à celle calculée par Rado (1957) ($B_s/B_v=2$) pour une surface idéale (sans modification de l'aimantation ni de

l'intégrale d'échange), à partir d'un argument théorique très simple.

1-4.4. Propriétés magnétiques "techniques" des films ultraminces

Curieusement, en dépit de l'importante activité expérimentale et théorique suscitée par les films ultraminces, très peu d'études ont été consacrées à leur propriétés magnétiques "techniques" (parois, domaines, hystérésis, coercivité, dynamique de l'aimantation, etc...). Ceci est d'autant plus étonnant que ces propriétés sont de la plus haute importance pour les applications technologiques éventuelles.

L'existence de domaines et parois à l'échelle du plan atomique est une question encore en suspens. Le problème a été relancé récemment par Yafet et Gyorgy (1988), qui ont étudié théoriquement la décomposition en domaines de films de quelques plans atomiques d'épaisseur, et d'axe de facile aimantation perpendiculaire au plan. Leurs calculs montrent que la largeur des domaines augmente très rapidement avec l'anisotropie et devient supérieure à 1 cm dès que $K/2\pi M_s^2 > 1,4$ (où $K=K_v+2K_s/e$); ceci implique que pour des valeurs plus grandes de l'anisotropie, un film de dimensions usuelles doit être monodomaine. Du côté expérimental, des techniques nouvelles ont été récemment développées dans le but (non encore atteint) d'observer des domaines dans des films ultraminces: microscope à force magnétique (Grütter et col., 1988), microscope électronique à balayage avec analyse de polarisation (Unguris et col., 1986; Oepen et Kirschner, 1988), microscopie à effet Kerr magnétooptique, avec augmentation de contraste par traitement numérique des images (Rohrmann, 1989).

Il n'y a pas eu, à ma connaissance, d'étude systématique de la coercivité en fonction de l'épaisseur, ou de la température, ni du comportement dynamique de l'aimantation dans les films ultraminces. Ces problèmes seront abordés aux chapitres 4 et 5, dans le cas du cobalt.

Un des objectifs de la discussion présentée dans ce chapitre est de montrer à quel point la compréhension des propriétés magnétiques des films ultraminces dépend de la connaissance de leurs caractéristiques structurales. Le développement actuel des recherches va dans ce sens: le progrès des techniques d'étude *in situ* permet de caractériser de plus en plus finement les

échantillons, à l'échelle du plan atomique. On peut penser que ce développement permettra, au cours des prochaines années de relier de façon plus précise les propriétés magnétiques des films et surfaces à leurs caractéristiques cristallographiques.

PREMIERE PARTIE:

ETUDES EXPERIMENTALES

CHAPITRE 2

ELABORATION ET CARACTERISATION
STRUCTURALE DES ECHANTILLONS

L'élaboration et la caractérisation structurale des échantillons ont été réalisées le groupe "Films Minces" de l'Institut d'Optique Théorique et Appliquée (Orsay) (notamment par D. Renard, ainsi que C. Marlière et J.P. Chauvineau). Bien qu'elles ne constituent pas le fruit de mon propre travail, j'ai réservé une place relativement importante à ces études, car la connaissance détaillée des caractéristiques cristallographiques des échantillons est de la plus haute importance pour l'interprétation des résultats des mesures magnétiques présentées dans les chapitres suivants.

Je passerai assez rapidement sur les résultats qui ont déjà été présentés par ailleurs (Chappert, 1985; Renard et Nihoul, 1987; Césari et col., 1989), et m'attarderai un peu plus longuement sur certaines expériences récentes.

Mon travail a porté sur deux types d'échantillons:

- (i) des films Au/Co/Au ayant une épaisseur de cobalt comprise entre 1 et quelques dizaines de plans atomiques; l'étude de ce système a été engagée par C. Chappert, lors de sa thèse (1985).
- (ii) des films Au/Cu/Co/Cu/Au; le but de l'étude de ce système est la comparaison des propriétés magnétiques de l'interface Cu/Co à celles de l'interface Au/Co. Le cuivre a été déposé sur le substrat d'or de façon à tirer parti de la bonne qualité cristallographique de ce dernier.

L'or et le cuivre sont tous deux de structure cubique à faces centrées (cfc), alors que le cobalt est, dans les conditions usuelles, de structure hexagonale compacte (hc). Ces deux structures cristallines présentent des similitudes: toutes deux consistent en effet en un empilement de plans compacts (cf. fig. 2-1); dans le cas de la structure cfc, ces plans sont les plans (111), et l'empilement suit une progression ABCABCA..., alors que pour la structure hc, les plans compacts sont les plans (0001), la progression étant ABABABA... Le tableau 2-1 donne les paramètres cristallins de ces métaux, à l'état massif, et à température ambiante (Kittel, 1983).

Comme le montre ce tableau, la distance interatomique dans les plans compacts de cobalt est très proche de celle des plans compacts de cuivre (2% de

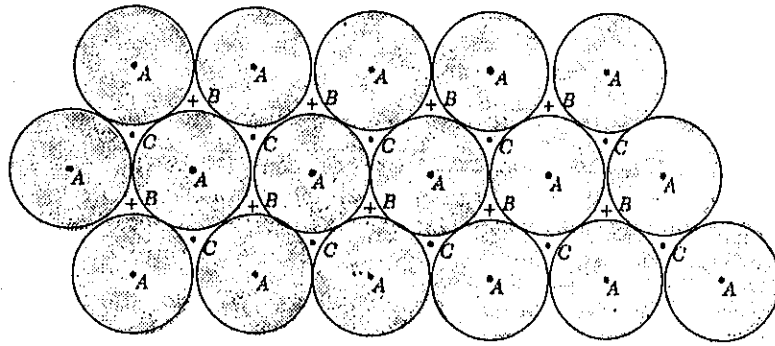


Figure 2-1: Schéma montrant les plans compacts des structures cfc et hc, et la position des sites A, B et C de l'empilement compact.

Tableau 2-1

métal	structure	paramètres cristallins	distance entre voisins dans les plans compacts	distance entre plans compacts
Co	hc	$a = 2,51 \text{ \AA}$ $c = 4,07 \text{ \AA}$	2,51 A	2,04 A
Cu	cfc	$a = 3,61 \text{ \AA}$	2,56 A	2,08 A
Au	cfc	$a = 4,08 \text{ \AA}$	2,88 A	2,36 A

désaccord), mais nettement plus faible que celle des plans compacts d'or (14% de désaccord).

2-1. Préparation des échantillons

Les films ont été préparés par évaporation thermique dans une enceinte à ultravide (pression résiduelle: quelques 10^{-10} torr; pression maximale durant l'évaporation: 10^{-9} torr). Les métaux à évaporer sont placés dans des creusets chauffés par effet Joule, et le taux d'évaporation est contrôlé à l'aide d'une balance à quartz. La nécessité de préparer les échantillons dans des conditions d'ultravide s'explique aisément: la figure 2-2 représente le temps nécessaire à la formation d'une couche monoatomique d'impuretés (azote, oxygène) à la surface de l'échantillon, à température ambiante et en supposant un coefficient de collage égal à 1, en fonction de la pression rès-

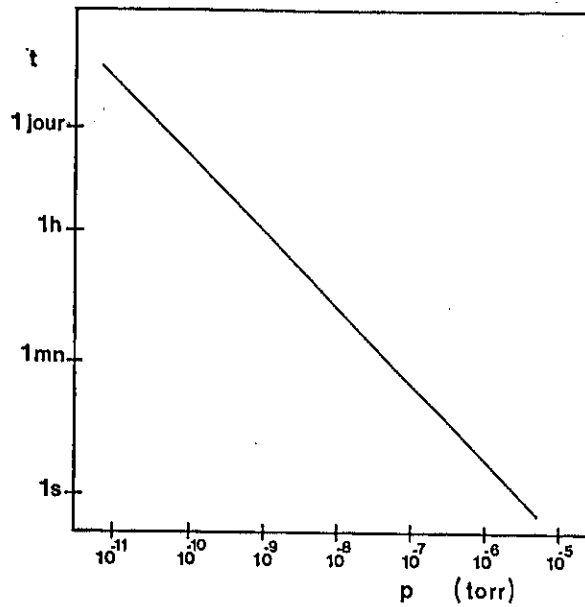


Figure 2-2: Temps nécessaire à la formation d'une couche monoatomique d'impuretés (N_2 , O_2) à la surface de l'échantillon, à température ambiante, et pour un coefficient de collage égal à 1.

gnant dans l'enceinte. Les vitesses de dépôt étant de l'ordre de 1 plan atomique par minute pour le cobalt, il est nécessaire de maintenir une pression très basse pour éviter la pollution de l'échantillon.

Les films Au/Co/Au et Au/Cu/Co/Cu/Au sont évaporés sur un substrat de verre; l'or protège le cobalt et le cuivre de l'oxydation lors de la remise à l'air de l'échantillon. Pour les études de magnétisme, les films sont décollés de leur support de verre à l'aide d'un vernis nitrocellulosique (solvant: acétate d'amyle).

2-2. Caractérisation structurale

Les techniques utilisées pour la caractérisation structurale des films sont:

(i) *in situ*:

- mesures d'épaisseur et contrôle du taux d'évaporation par balance à quartz;
- la croissance du film est suivie en mesurant sa résistivité (Chauvi-

neau et Pariset, 1973; Pariset et Chauvineau, 1976, 1978); cette mesure simple à mettre en oeuvre donne des informations sur le mode de croissance, et permet de contrôler le bon déroulement du dépôt;

- la diffraction par réflexion sous incidence rasante d'électrons de haute énergie (généralement désignée dans la littérature par l'acronyme RHEED) permet l'étude de la structure cristallographique de la surface du film, et du mode de croissance.

(ii) *ex situ*:

- la microscopie électronique en transmission (imagerie et diffraction) permet l'étude de la structure cristallographique, essentiellement parallèlement au plan des films;
- la diffraction de rayons X sous incidence de Bragg renseigne sur la structure cristallographique dans la direction normale au plan;
- la réflectivité de rayons X sous incidence rasante (Nénot et Croce, 1975; Croce et Nénot, 1976; Nénot, 1978) donne des informations sur la rugosité des interfaces, et permet la calibration des mesures d'épaisseurs.

2-2.1. Structure du substrat d'or

Le film d'or utilisé comme substrat (environ 300 Å d'épaisseur) est tout d'abord évaporé, à température ambiante, sur une plaque de verre de très faible rugosité.

Tel quel, ce film d'or est polycristallin, composé de cristaux d'environ 500 Å de diamètre moyen, monocristallin en épaisseur, et d'axe [111] perpendiculaire au film; ceci est révélé par des images en champ clair de microscopie électronique en transmission (Chappert, 1985; Renard et Nihoul, 1987). Les mesures de réflectivité de rayons X sous incidence rasante montrent que l'amplitude de rugosité de ces films d'or est d'environ 6 à 7 Å; par contre ces études ne donnent pas d'information sur l'extension des aspérités parallèlement au plan.

Le substrat d'or est recuit pendant environ une heure à 150°C. Ce traitement améliore considérablement la qualité cristallographique du film d'or. Les grains de petite taille coalescent, le diamètre moyen des grains devenant alors d'environ 2000 Å. La rugosité de la surface diminue jusqu'à 3 Å, ce qui représente l'épaisseur d'une à deux couches atomiques. Enfin, des images de microscopie électronique en champ sombre (Pardo, 1977; Chappert,

1985; Renard et Nihoul, 1987) montrent que la surface de l'or est constituée de terrasses atomiquement planes, de 250 à 300 Å d'extension latérale, séparées par des marches monoatomiques. On obtient ainsi finalement une surface d'or d'orientation (111) (c'est-à-dire constituée de plans compacts) et d'une excellente planéité.

2-2.2. Structure des films Au/Co/Au

La structure du substrat d'or étant bien connue, nous nous intéressons maintenant à celle du film de cobalt proprement dit. L'évaporation du film de cobalt est effectuée également à température ambiante.

Les principales questions qui se posent sont les suivantes:

(i) quel est le mode de croissance du cobalt sur l'or? Les principaux modes de croissance sont:

(a) croissance couche après couche (mécanisme de Frank-van der Merwe);

(b) croissance statistique, chaque atome restant à son point d'impact;

(c) formation de "gouttes" tridimensionnelles;

Le mode de croissance effectivement adopté dépend de facteurs thermodynamiques d'une part (tensions superficielles, problèmes de "mouillage"), et de considérations cinétiques d'autre part (mobilité des atomes à la surface).

(ii) quelle est la rugosité des interfaces, et y a-t-il interdiffusion du cobalt et de l'or?

(iii) la croissance est-elle épitaxiale (y a-t-il cohérence cristallographique entre le cobalt et l'or), et quelle est la structure cristalline adoptée par le cobalt? La symétrie d'ordre 6 de la surface d'or, constituée de plans compacts (111), est en effet *a priori* compatible aussi bien avec la structure hc en orientation (0001) qu'avec la structure cfc (111).

(iv) comment se fait l'accommodation de l'important désaccord de maille ($\approx 14\%$) entre l'or et le cobalt? Ce problème sera discuté en détail au chapitre 8. Signalons néanmoins dès maintenant, que le désaccord peut être accomodé soit par pseudomorphisme (dilatation du cobalt de façon à épouser la maille de l'or), soit par des dislocations localisées à

l'interface, soit encore par une combinaison des deux.

L'étude de la variation de la résistivité du film durant l'évaporation du cobalt montre que la croissance n'est pas du type Frank-van der Merwe, ni du type statistique ou par îlots tridimensionnels (Chappert, 1985). Le mode de croissance est tel que toute la surface d'or est recouverte après un dépôt moyen de 4 à 5 Å de cobalt; la croissance s'effectue vraisemblablement selon un mécanisme pour lequel une couche commence à croître avant que la couche précédente ne soit complète.

L'or et le cobalt sont très peu miscibles (Bozorth, 1951); la diffusion à l'interface or-cobalt est donc thermodynamiquement défavorable. Du point de vue cinétique, la constante de diffusion du cobalt dans l'or vaut:

$$D = D_0 \exp(-E_d/k_B T) , \quad (2-1)$$

où $E_d = 1,8 \text{ eV.atome}^{-1}$ est l'énergie d'activation de diffusion, et $D_0 = 68 \times 10^{-3} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ (Loebich, 1964). Le temps caractéristique pour qu'il y ait diffusion sur une distance d est de l'ordre de d^2/D ; le temps caractéristique de diffusion du cobalt dans l'or sur une distance interatomique est de 340 millions d'années à température ambiante, 9 ans à 400 K, 2 heures à 500 K, et 8 secondes à 600 K. Ces considérations montrent que, en préparant les échantillons à température ambiante, les problèmes de diffusion sont négligeables, aussi bien du point de vue thermodynamique, que du point de vue cinétique.

Effectivement, aucune indication de diffusion n'a été observée, tant par mesures de résistivité, que par les études aux rayons X (Chappert, 1985).

La rugosité des interfaces peut en principe être obtenue à partir des mesures de réflectivité de rayons X; néanmoins, si l'interprétation des courbes de réflectivité est relativement aisée dans le cas de films simples, il devient rapidement délicat d'obtenir des résultats quantitatifs, lorsqu'il faut déterminer un grand nombre de paramètres, comme c'est le cas pour les films Au/Co/Au.

En l'absence d'interdiffusion, nous pouvons raisonnablement admettre que la rugosité de la première interface Au/Co est celle de la surface d'or initiale, soit une rugosité de 3 Å d'amplitude environ, et de 250 à 300 Å de longueur de corrélation. Pour la seconde interface, compte tenu du fait que

le mode de croissance n'est pas "couche par couche", la rugosité est vraisemblablement plus importante.

2-2.2.1. Microscopie et diffraction électronique en transmission

Les études réalisées à l'aide du microscope électronique (figures de diffraction et images, à incidence normale) donnent des informations très précieuses sur la structure cristalline adoptée par le cobalt. La figure 2-3 est un cliché de diffraction d'électrons en transmission d'un film Au/Co/Au (épaisseur de cobalt: 31 Å; épaisseur totale d'or: \approx 300 Å); le faisceau d'électrons a été diaphragmé de façon qu'un seul monocristal participe à la diffraction. La tache *D* est celle du faisceau direct. La tache notée *A* et ses cinq homologues sont dues aux réflexions sur la famille de plans $(2\bar{2}0)$ de l'or et ses homologues. La tache notée *C* et ses cinq homologues sont dues aux réflexions sur les plans de cobalt (ils s'indexent $(2\bar{2}0)$ et $(11\bar{2}0)$, respectivement pour le cobalt cfc et le cobalt hc). Les six satellites de la tache *D* et les cinq satellites de *A* autres que *C* s'interprètent comme étant des taches de double diffraction (par l'or et par le cobalt).

Cette figure de diffraction met clairement en évidence la croissance épitaxiale du cobalt sur l'or, ainsi que de la couche d'or de couverture sur le cobalt. Le film est donc monocristallin dans la direction normale au plan.

La tache notée *a* sur la figure 2-3 (ainsi que ses cinq homologues), est indexée $1/3 (4\bar{2}\bar{2})$; il s'agit d'une tache normalement interdite dans le système cfc massif, qui apparaît ici à cause de l'épaisseur finie du film d'or, d'où l'appellation de "tache de couche". La tache notée *c* (ainsi que ses cinq homologues) est due au cobalt: pour du cobalt cfc, elle est indexée $1/3 (4\bar{2}\bar{2})$ (tache de couche), et pour du cobalt hc, il s'agit d'une tache permise, indexée $(0\bar{1}10)$. Renard et Nihoul (1987) ont calculé l'intensité de la tache *c*, pour les deux structures possibles du cobalt (hc et cfc); la comparaison de ces calculs aux intensités des taches de diffraction observées expérimentalement montre sans ambiguïté possible que la structure du cobalt est hexagonale compacte; à titre de comparaison, la figure 2-4 est un cliché de diffraction d'électrons d'un film contenant du nickel (qui lui est cfc) à la place du cobalt: les taches *c* n'apparaissent pas.

Remarquons qu'à la différence des taches de l'or qui sont bien circulaires, les taches dues aux réflexions sur les plans de cobalt ont une forme allongée; comme nous allons le voir ci-dessous, ceci est dû à une légère dé-

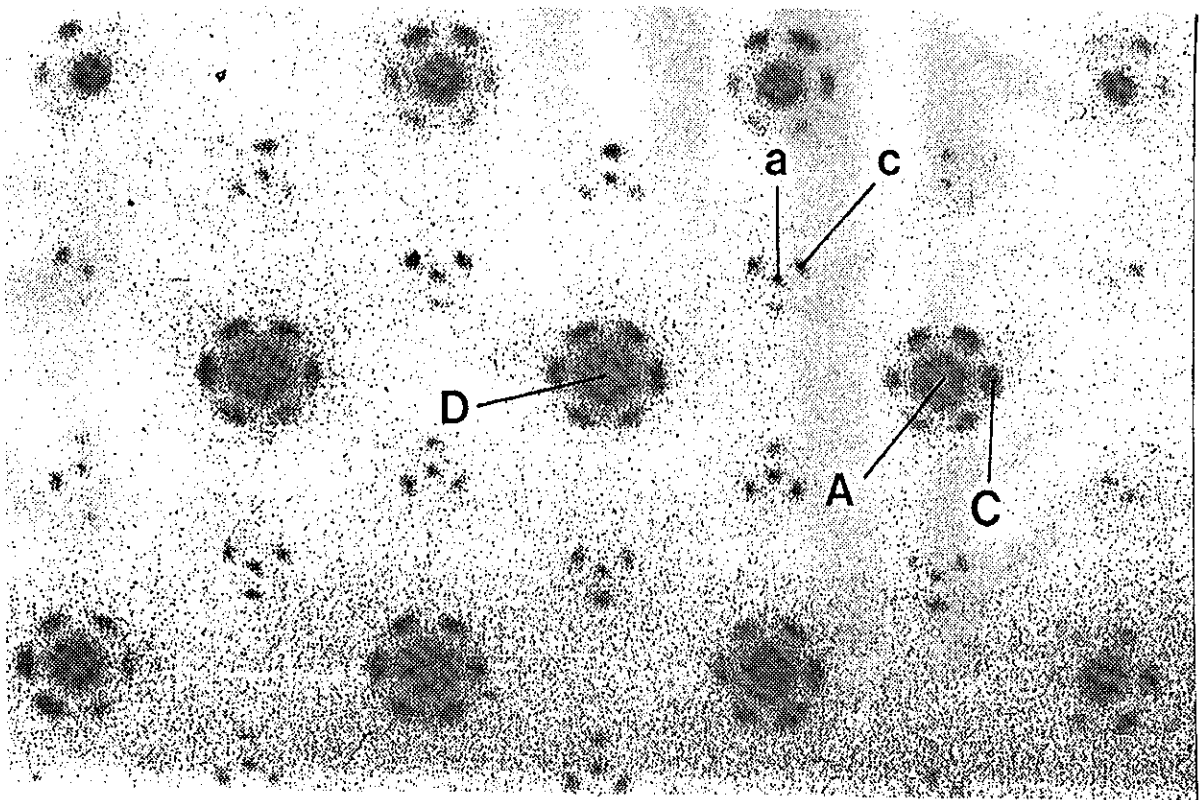


Figure 2-3: Cliché de diffraction électronique en transmission d'un film Au/Co/Au (épaisseur totale d'Au: \approx 300 Å; épaisseur de Co: 31 Å).

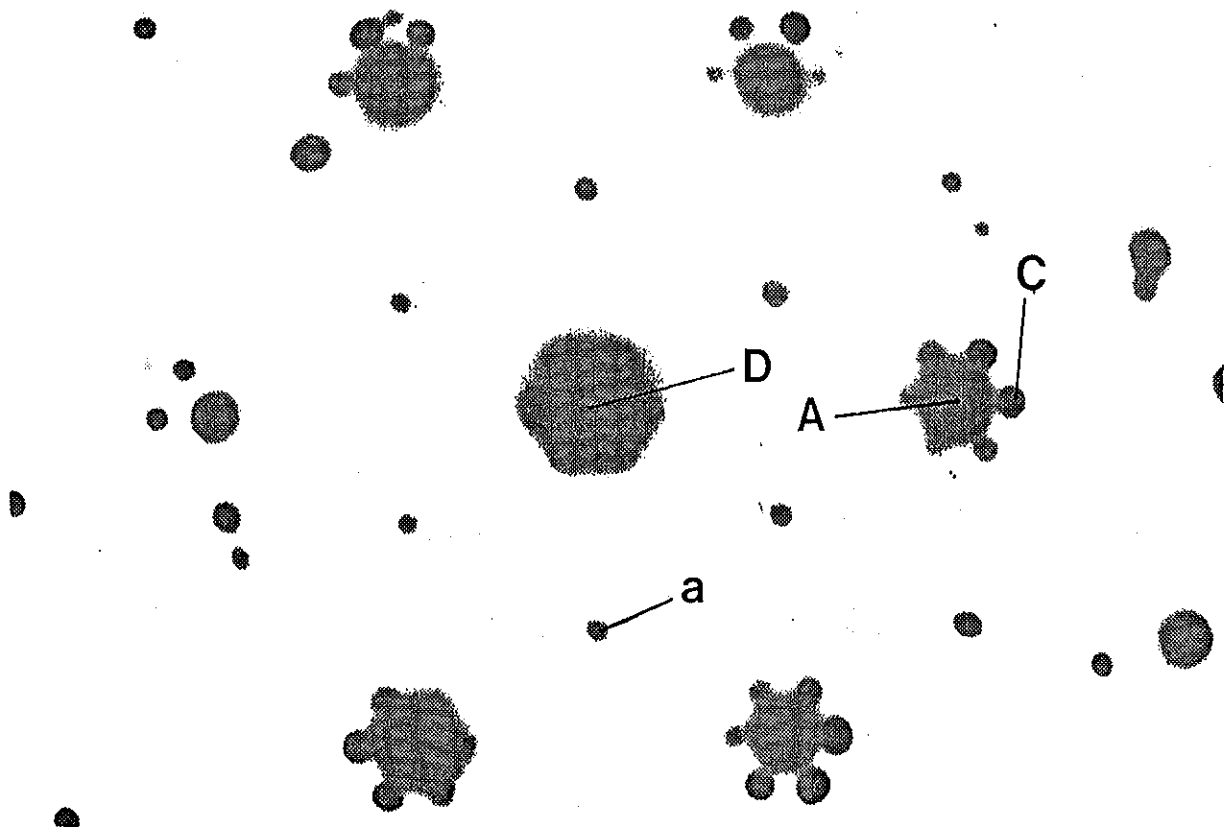


Figure 2-4: *Idem* fig. 2-3, pour un film Au/Ni/Au.

sorientation dans le plan du film des axes cristallins du cobalt ($\approx 3^\circ$ par rapport aux axes de l'or).

La figure 2-5 est une image de microscopie électronique d'un film Au/Co/Au, effectuée en sélectionnant à l'aide d'un diaphragme le faisceau direct D et ses six satellites de double diffraction. Ces taches de double diffraction correspondent à des faisceaux ayant été diffractés par une famille de plans $(\bar{2}\bar{2}0)$ de l'or, et par une famille de plans $(11\bar{2}0)$ du cobalt; ces faisceaux contiennent donc des informations sur la position relative des plans de l'or et du cobalt. L'image ainsi obtenue (fig. 2-5) consiste en des franges de moiré; les franges de moiré sont des modulations d'intensité résultant de la superposition de deux réseaux de pas différents, comme le montre la figure 2-6. Dans le cas où les réseaux sont parallèles, l'interfrange observé est donné par la relation

$$d = \frac{d_{\text{Au}} d_{\text{Co}}}{d_{\text{Au}} - d_{\text{Co}}} \quad (2-2)$$

Dans le cas présent, $d_{\text{Au}} = d_{(220)} = 1,44 \text{ \AA}$ et $d_{\text{Co}} = d_{(1120)} = 1,25 \text{ \AA}$, de sorte que $d \approx 9,5 \text{ \AA}$, ce qui correspond bien à la valeur mesurée sur la figure 2-5 (flèche B).

On observe par endroits une déviation d'environ 20° des franges de moiré (flèche C); cette déviation est due à une rotation dans le plan d'environ 3° d'un des réseaux par rapport à l'autre. En effet, comme l'illustre la figure 2-7, une faible rotation relative des réseaux se traduit dans l'image par une rotation beaucoup plus importante des franges de moiré; le facteur d'amplification correspondant est égal à

$$\frac{\sqrt{d_{\text{Au}} d_{\text{Co}}}}{d_{\text{Au}} - d_{\text{Co}}} \quad (2-3)$$

et vaut environ 7 dans le cas présent.

Nous avons déjà noté cette rotation de 3° dans la figure de diffraction, mais sur les taches du cobalt uniquement. Ceci signifie que c'est le réseau de ce dernier qui est tourné par rapport à celui de l'or.

Enfin, lorsque les axes $[111]$ de l'or, $[0001]$ du cobalt et le faisceau d'électrons sont rigoureusement parallèles, on observe des taches circulai-



Figure 2-5: Image de microscopie électronique en transmission d'un film Au/Co/Au, obtenue en sélectionnant le faisceau direct (noté *D* sur la figure 2-3) et ses 6 satellites de double diffraction.

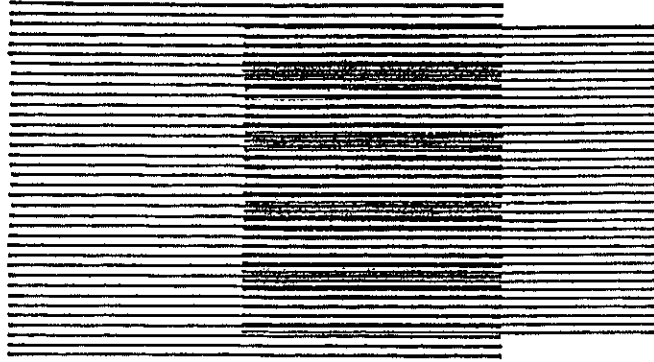


Figure 2-6: Schéma expliquant l'apparition de franges de moiré, en superposant deux réseaux de paramètres légèrement différents.

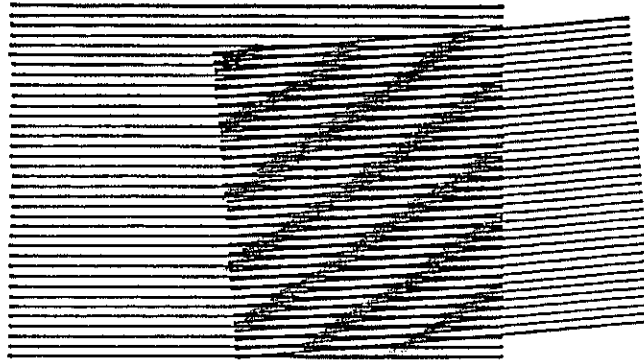


Figure 2-7: Schéma montrant l'amplification de la rotation des franges de moiré lors d'une faible rotation relative des deux réseaux.

res (flèche A sur la fig. 2-5). Une désorientation de 1° de l'axe [0001] du cobalt suffit à changer la forme des taches, ou à faire réapparaître des franges (Césari et col., 1989).

2-2.2.2. Diffraction d'électrons de haute énergie par réflexion sous incidence rasante

La figure 2-8 représente la géométrie d'une expérience de diffraction d'électrons de haute énergie par réflexion sous incidence rasante (RHEED).

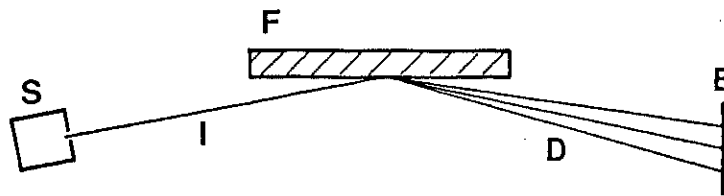


Figure 2-8: Schéma de principe d'une expérience de diffraction par réflexion sous incidence rasante d'électrons de haute énergie (RHEED). S: source d'électrons; I: faisceau incident; F: film à étudier; D: faisceaux diffractés; E: écran fluorescent permettant l'observation de la figure de diffraction.

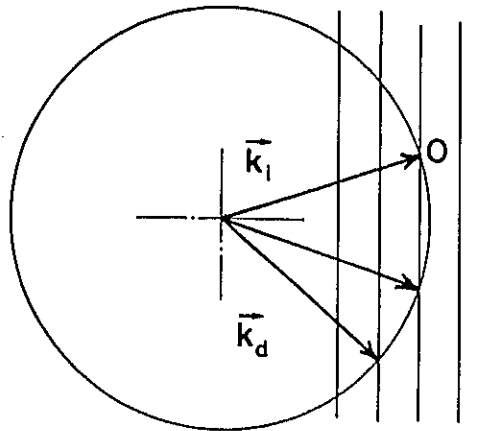


Figure 2-9: Construction d'Ewald.

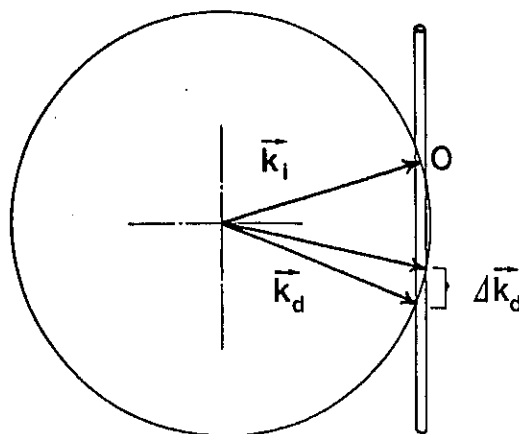


Figure 2-10: Schéma montrant la structure en "bâtonnets" de la figure de diffraction RHEED.

Les électrons sont émis par un canon, avec une énergie de 10 à 30 keV; à de telles énergies la profondeur de pénétration à incidence normale des électrons est de plusieurs centaines d'angströms; néanmoins, l'incidence rasante (1 à 3°) limite la pénétration des électrons à quelques angströms, de sorte que la diffraction est due essentiellement aux toutes premières couches atomiques, et donne ainsi une information sur la structure cristalline de la surface.

Les faisceaux diffractés sont ceux satisfaisant à la condition de Bragg; cette condition de diffraction s'exprime simplement à l'aide de la construction d'Ewald (Kittel, 1983), qui traduit géométriquement la conservation de l'impulsion et de l'énergie. La figure 2-9 représente la construction d'Ewald de l'expérience; l'objet diffractant étant bidimensionnel (surface de l'échantillon), le réseau réciproque est constitué de droites. Les diffractions autorisées sont celles correspondant aux vecteurs du réseau réciproque appartenant à la sphère d'Ewald; on doit donc en principe observer des taches de Bragg, correspondant à l'intersection avec la sphère d'Ewald des droites constituant le réseau réciproque. En fait, la surface étant polycristalline, les droites du réseau réciproque sont élargies en des "tiges" d'épaisseur finie; à cause de la haute énergie et de l'incidence rasante des électrons, la sphère d'Ewald a un très grand rayon de courbure et est tangente aux "tiges" de l'espace réciproque, de sorte que la figure de diffraction observée (cf. fig. 2-10) est constituée de "bâtonnets" (Cohen et col., 1987). L'observation d'une figure de diffraction en "bâtonnets" est généralement considérée comme étant due à une surface de bonne planéité; en effet, s'il y a des îlots quasi tridimensionnels à la surface, le faisceau d'électrons les traverse, et l'on observe alors une figure de diffraction constituée de taches de Bragg, caractéristique d'un système tridimensionnel.

Les figures de diffraction d'une surface d'or non recuite, d'une surface d'or recuite, et de la surface d'un film de cobalt déposé sur l'or sont représentées respectivement sur les figures 2-11 à 2-13. Pour obtenir une figure de diffraction d'un film monocristallin, il faut orienter celui-ci dans des azimuths particuliers, et la figure obtenue dépend de l'azimuth choisi; lorsque l'on a affaire à un film polycristallin, comme dans le cas présent, tous les azimuths sont présents simultanément, et il n'est pas nécessaire d'orienter l'échantillon.

L'amélioration de la qualité de la surface d'or lors du recuit est mise nettement en évidence par l'observation d'une figure de diffraction en "bâtonnets". Les deux azimuths ($[\bar{1}\bar{1}2]$ et $[011]$) observés sur la figure 2-12

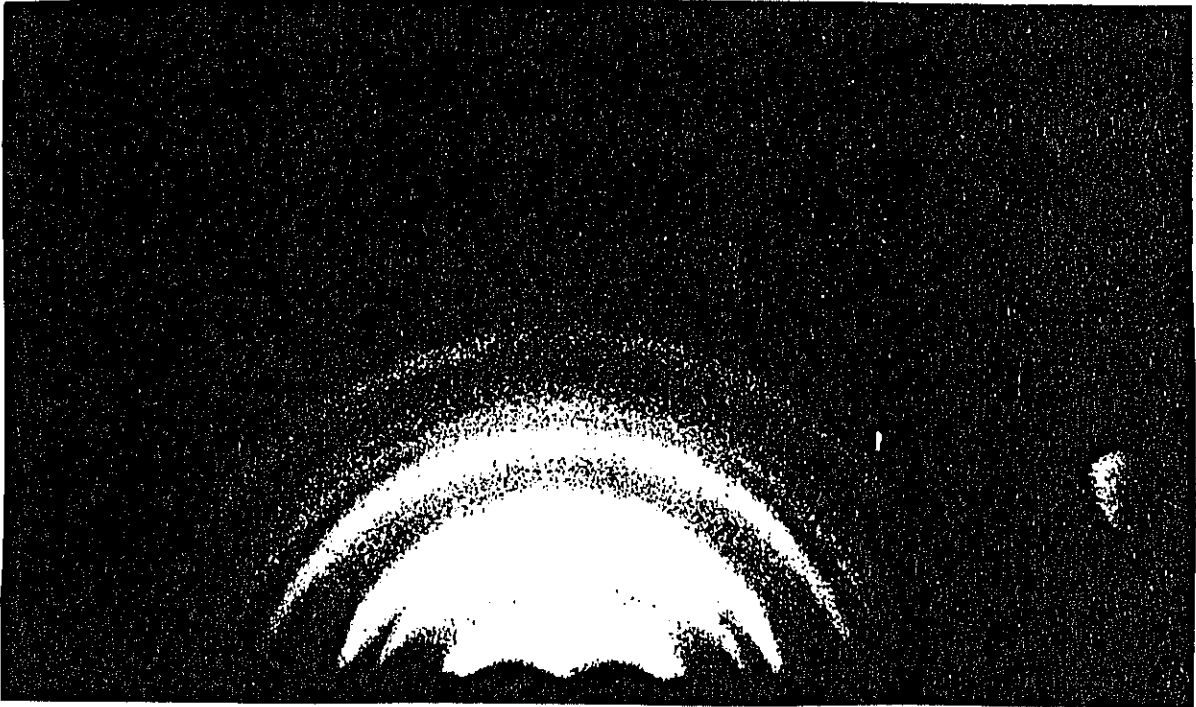
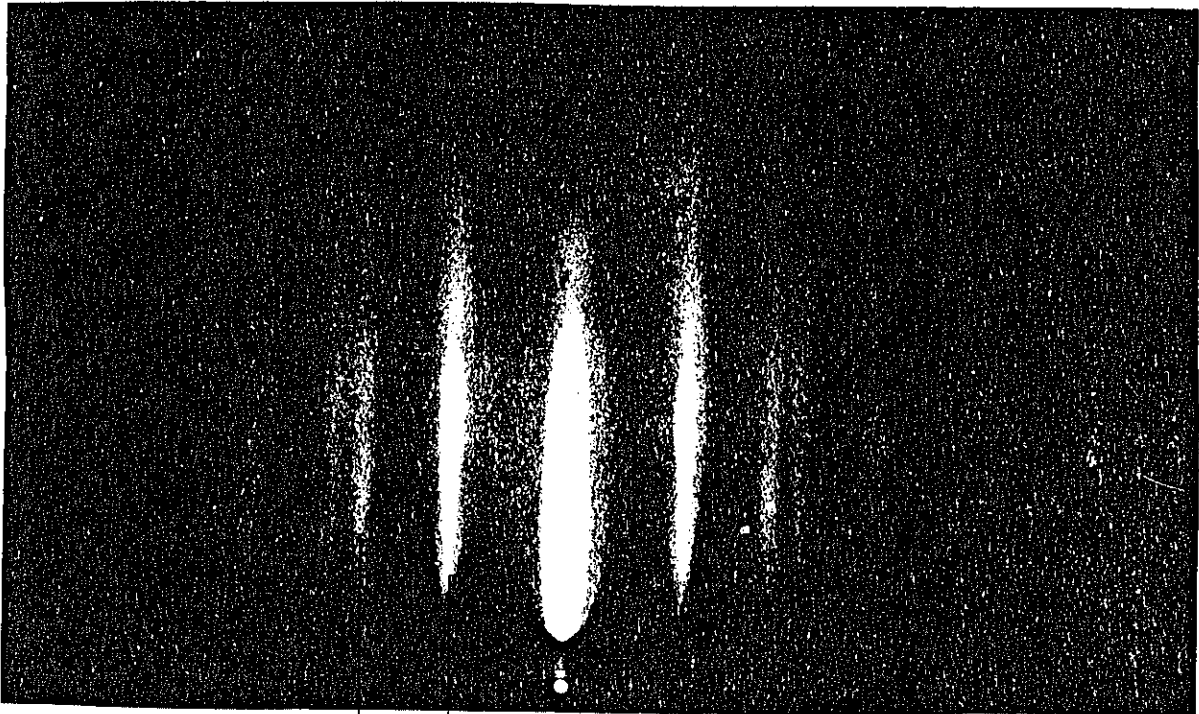


Figure 2-11: Figure de diffraction RHEED d'un film d'Au non recuit.



[011] [112]

Figure 2-12: Figure de diffraction RHEED d'un film d'Au recuit.

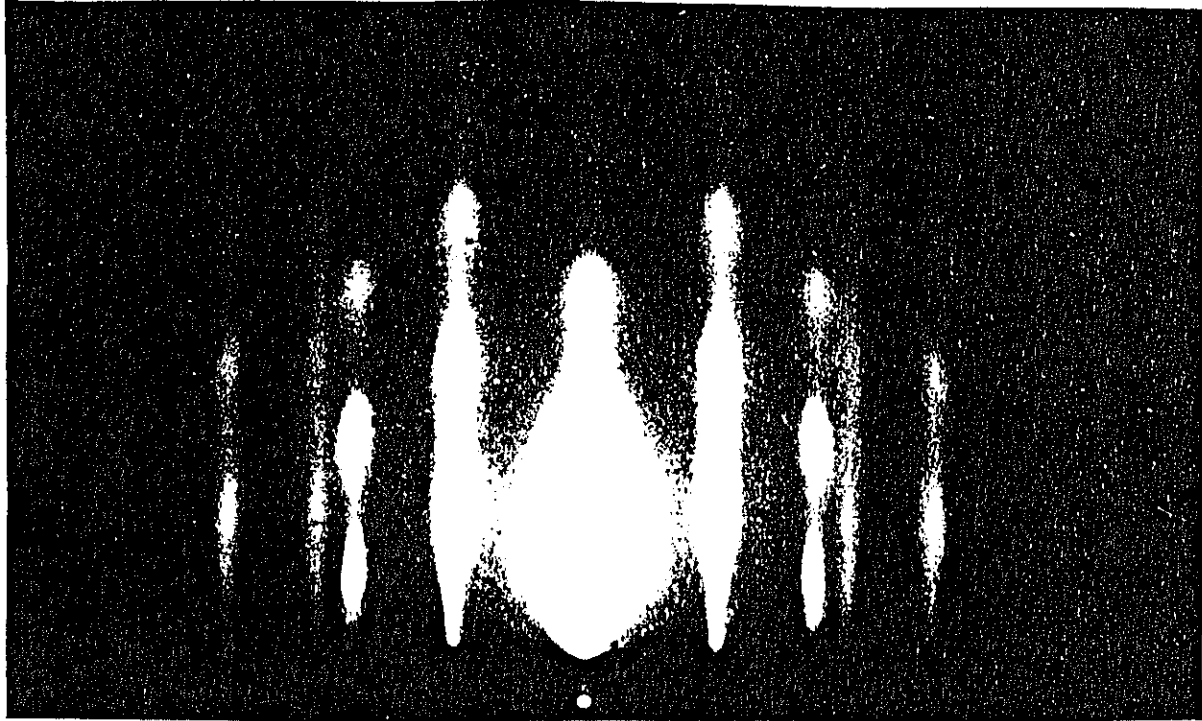


Figure 2-13: Figure de diffraction RHEED d'un film de Co déposé sur Au.

mesurent respectivement les distances d_1 et d_2 indiquées sur la figure 2-14. La position des "bâtonnets" sur la figure de diffraction du film de cobalt permet la mesure de sa maille cristalline (dans le plan). La déformation ϵ du film de cobalt est représentée sur la figure 2-15, en fonction de l'épaisseur de cobalt déposée; $\eta = (d_{Co} - d_{Au}) / d_{Au} \approx -14\%$ est le désaccord de maille entre l'or et le cobalt. Il apparaît que la première couche de cobalt est presque pseudomorphique; la déformation décroît ensuite avec l'épaisseur, le désaccord de maille étant vraisemblablement accommodé par des dislocations interfaciales (cf. discussion au chapitre 8).

2-2.3. Structure des films Au/Cu/Co/Cu/Au

Comparativement à celle des films Au/Co/Au, la structure des films Au/Cu/Co/Cu/Au est assez mal caractérisée; une des raisons en est que la structure plus complexe rend l'interprétation des mesures fort délicates.

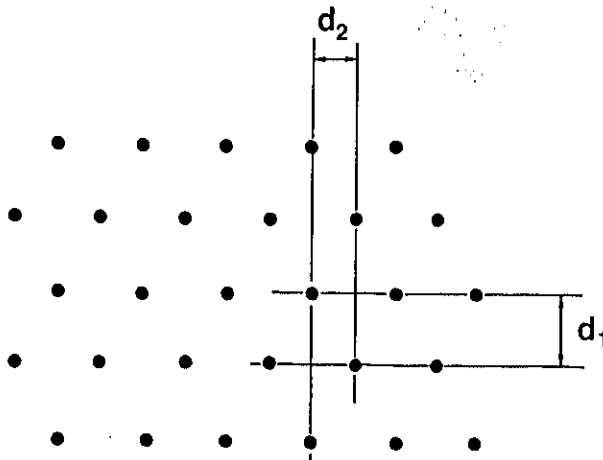


Figure 2-14: Schéma indiquant les distances mesurées par les deux azimuths principaux.

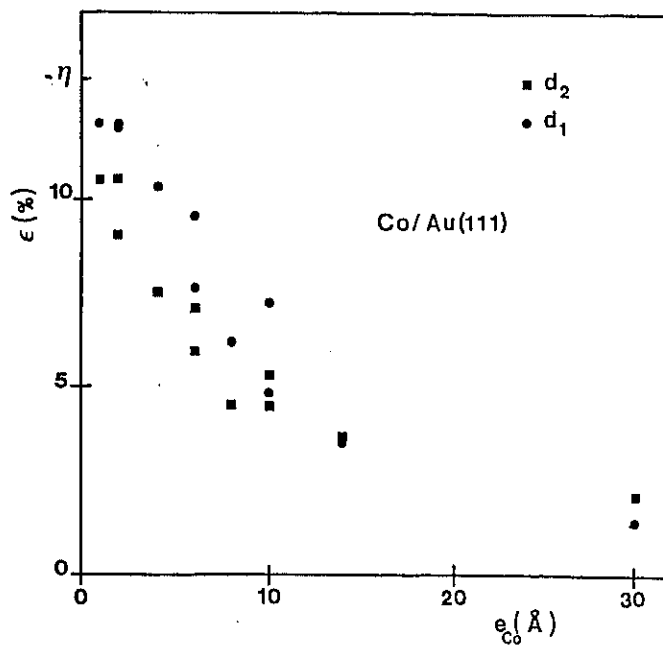


Figure 2-15: Evolution en fonction de l'épaisseur de Co déposée, de la déformation planaire du film de Co; les cercles et les carrés correspondent respectivement aux mesures de d_1 et d_2 .

Par ailleurs, la diffraction d'électrons de haute énergie sous incidence rasante n'était pas disponible lorsque ces films ont été préparés, de sorte que leur caractérisation repose essentiellement sur les études de microscopie.

pie électronique.

Les figures de diffraction électronique en transmission montrent que, comme dans le cas des films Au/Co/Au, l'or est de structure cfc, ainsi que le cuivre; pour ce qui est du cobalt, la structure est formée d'un empilement de plans compacts, sans qu'il soit possible de déterminer clairement s'il s'agit d'une structure hc (0001), cfc (111), ou bien d'un mélange des deux avec fautes d'empilement.

Les courbes de réflectivité de rayons X sous incidence rasante suggèrent que la rugosité des interfaces est plus importante que dans le cas des films Au/Co/Au.

CHAPITRE 3

ETUDES PAR RESONANCE MAGNETIQUE NUCLEAIRE
ET RESONANCE FERROMAGNETIQUE

3-1. Etude comparée par résonance magnétique nucléaire des films Au/Co/Au et Au/Cu/Co/Cu/Au

Les mesures de résonance magnétique nucléaire sur les films de cobalt ultraminces ont été réalisées par K. Le Dang et P. Veillet sur leur spectromètre à écho de spin, construit au laboratoire.

Le cobalt naturel, composé essentiellement de ^{59}Co possédant un spin nucléaire égal à $7/2$, se prête particulièrement bien à une étude du champ hyperfin par résonance magnétique nucléaire. Dans les matériaux ferromagnétiques, il se produit en outre un phénomène d'amplification du champ radiofréquence d'excitation, favorisant l'observation de la résonance nucléaire (Portis et Gossard, 1960). Le hamiltonien d'interaction hyperfine entre le spin nucléaire \vec{I} et le spin électronique \vec{S} d'un atome donné s'écrit (Freeman et Watson, 1965)

$$\mathcal{H}_{hf} = \vec{I} \cdot \bar{\mathcal{A}} \cdot \langle \vec{S} \rangle, \quad (3-1)$$

où $\bar{\mathcal{A}}$ est un tenseur d'ordre deux caractérisant l'interaction hyperfine, et $\langle \vec{S} \rangle$ est la moyenne temporelle du spin électronique. Le champ hyperfin, défini par

$$\vec{H}_{hf} = \frac{-\bar{\mathcal{A}} \cdot \langle \vec{S} \rangle}{g_I \mu_N}, \quad (3-2)$$

est le champ effectif "senti" par les noyaux de ^{59}Co . Sous l'action de ce champ, les spins nucléaires effectuent un mouvement de précession de Larmor, de pulsation

$$\omega = \frac{g_I \mu_N H_{hf}}{\hbar}. \quad (3-3)$$

Dans une expérience de résonance magnétique nucléaire, un champ radiofréquence excite ce mouvement de précession des spins nucléaires, et il y a ab-

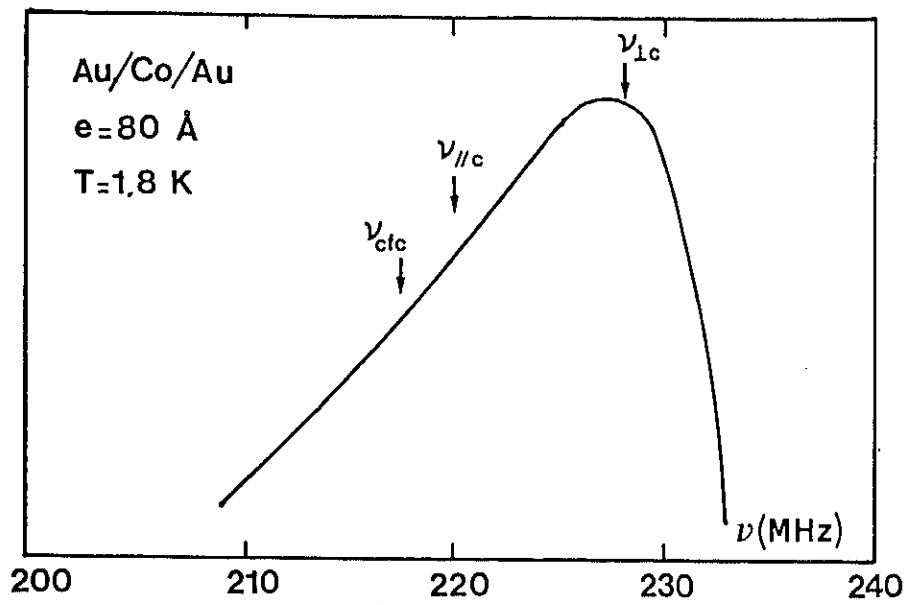


Figure 3-1: Spectre de résonance magnétique nucléaire, à $T=1,8$ K, en champ nul, pour un film Au/Co/Au ayant une épaisseur de Co de 80 Å.

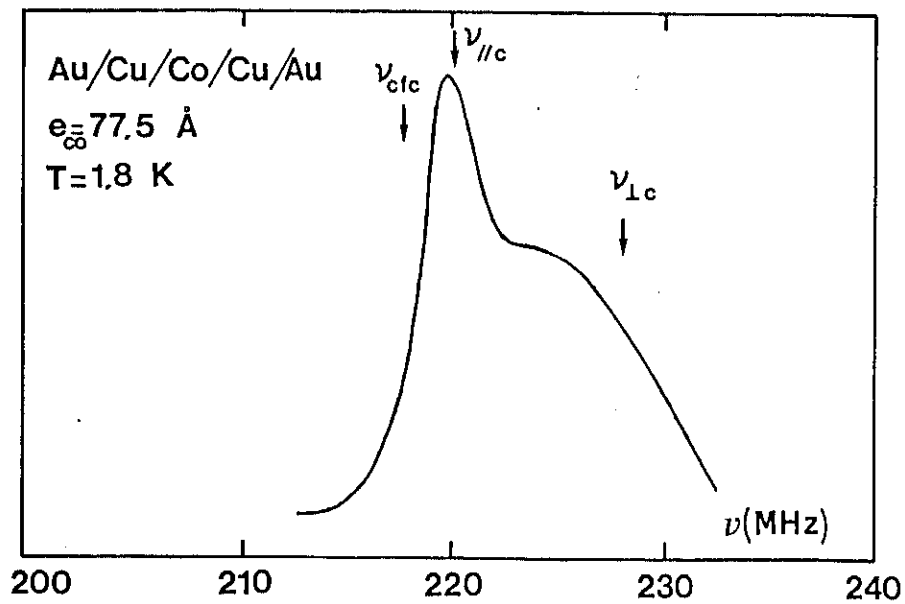


Figure 3-2: *Idem* fig. 3-1, pour un film Au/Cu/Co/Cu/Au ayant une épaisseur de Co de 77,5 Å.

sorption résonnante lorsque sa fréquence coïncide avec la fréquence de Larmor (3-3).

Pour le cobalt cfc, le champ hyperfin est isotrope, et la fréquence de résonance vaut $\nu_{cfc} = 217,5$ MHz (Koi et col., 1962). Pour le cobalt hc, le champ hyperfin est anisotrope, et vaut respectivement $\nu_{\parallel c} = 220$ MHz ou $\nu_{\perp c} = 228$ MHz, selon que l'aimantation est parallèle ou perpendiculaire à l'axe c (Kawakami et col., 1972).

Les figures 3-1 et 3-2 montrent le spectre de résonance magnétique nucléaire à 1,8 K et en champ nul, respectivement pour un film Au/Co/Au de 80 Å, et pour un film Au/Cu/Co/Cu/Au de 77,5 Å. On a indiqué la position des fréquences ν_{cfc} , $\nu_{\parallel c}$ et $\nu_{\perp c}$.

Pour le film Au/Co/Au, le maximum est proche de $\nu_{\perp c}$; lorsque l'on applique un champ perpendiculaire au plan, la fréquence de résonance se déplace progressivement vers $\nu_{\parallel c}$. Ceci s'explique par le fait que en champ nul, à cause du champ démagnétisant, l'aimantation est dans le plan du film, donc perpendiculaire à l'axe c; sous l'effet d'un champ perpendiculaire au plan l'aimantation se rapproche de l'axe c. Le Dang et col. (1986), en étudiant de façon détaillée le déplacement de la raie de résonance sous l'effet d'un champ perpendiculaire, ont mesuré les deux composantes du champ hyperfin: $H_{\parallel c} = -215$ kOe et $H_{\perp c} = -225,8$ kOe. Ces valeurs sont très proches de celles mesurées sur le cobalt hc massif par Kawakami et col. (1972), $H_{\parallel c} = -218,7$ kOe et $H_{\perp c} = -226,8$ kOe, indiquant clairement que, au moins pour des films relativement épais, la structure est très proche de celle du cobalt hc massif, en accord avec les études par microscopie électronique de D. Renard (cf. chapitre 2).

Pour le film Au/Cu/Co/Cu/Au, la raie de résonance est déplacée vers les basses fréquences, et présente en outre une structure montrant l'existence d'une distribution inhomogène de champs hyperfins. Le maximum le plus important est proche de ν_{cfc} , indiquant une prédominance probable de la structure cfc. La croissance du cobalt cfc sur cuivre (111) a déjà été signalée par plusieurs auteurs (Gradmann et Müller, 1970; Gonzales et col., 1981). L'élargissement inhomogène confirme la présence d'une structure partiellement désordonnée, ainsi que l'avaient montré les expériences de caractérisation structurale (chapitre 2); ceci peut être dû soit à un mélange de grains cfc et de grains hc, soit à des fautes d'empilement.

Il serait *a priori* très intéressant d'étudier par résonance magnétique nucléaire le champ hyperfin de films ultraminces de cobalt afin de mettre en évidence d'éventuels effets d'interface; malheureusement ceci n'est pas possible, à cause des largeurs de raies trop importantes. La résonance magnéti-

que nucléaire s'est néanmoins avérée très utile pour confirmer les résultats des études purement cristallographiques.

3-2. Etude par résonance ferromagnétique des films Au/Cu/Co/Cu/Au

La résonance ferromagnétique est une technique très puissante pour l'étude de l'anisotropie magnétique des matériaux ferromagnétiques. Elle a été utilisée par Chappert (1985; Chappert et col., 1986) sur les films Au/Co/Au. Je présente ici une étude par résonance ferromagnétique de l'anisotropie magnétique des films Au/Cu/Co/Cu/Au; la motivation de cette étude est de comparer l'anisotropie due à l'interface Cu/Co à celle due à l'interface Au/Co. Ces expériences ont été réalisées en collaboration avec H. Hurdequint, au Laboratoire de Physique des Solides (Orsay), sur un spectromètre Varian opérant à 9,2 GHz.

3-2.1. Principe de la mesure

La géométrie de l'expérience est représentée sur la figure 3-3. Les directions respectives du champ statique et de l'aimantation sont repérées par les angles (θ_H, φ_H) et (θ, φ) . Le champ hyperfréquence est perpendiculaire au champ statique et parallèle au plan du film.

L'énergie par unité de volume s'écrit

$$E = -\vec{M} \cdot \vec{H} + (-2\pi M^2 + K_1) \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta. \quad (3-4)$$

Les deux premiers termes du membre de droite dans (3-4) sont l'énergie Zeeman d'interaction entre l'aimantation et le champ statique et l'énergie magnétostatique due au champ démagnétisant. Les deux derniers sont des termes d'anisotropie uniaxiale; ils comprennent l'anisotropie magnétocristalline, ainsi que l'anisotropie magnétoélastique due aux contraintes; cette forme uniaxiale de l'anisotropie est valable également pour le cas du cobalt cfc (111), à cause de l'effet de moyenne dû à la texture.

L'équilibre statique est obtenu pour les angles $\theta = \theta_0$ et $\varphi = \varphi_0$ donnés par

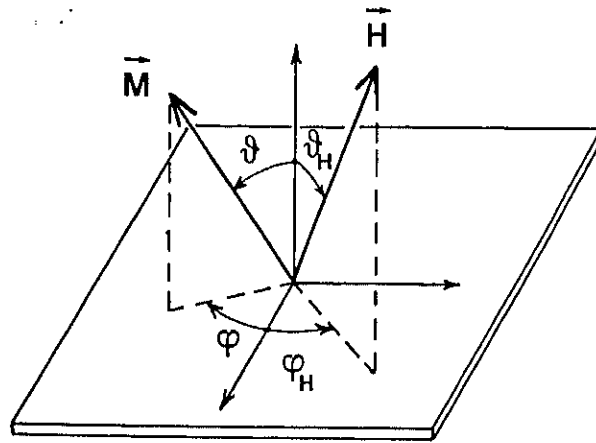


Figure 3-3: Schéma de la géométrie des expériences de résonance ferromagnétique.

$$\left. \begin{aligned} \left(\frac{\partial E}{\partial \theta} \right)_0 &= 0, \\ \left(\frac{\partial E}{\partial \varphi} \right)_0 &= 0, \end{aligned} \right\} \quad (3-5)$$

avec les conditions

$$\left. \begin{aligned} \left(\frac{\partial^2 E}{\partial \theta^2} \right)_0 &> 0, & \left(\frac{\partial^2 E}{\partial \varphi^2} \right)_0 &> 0, \\ \left(\frac{\partial^2 E}{\partial \theta^2} \right)_0 \left(\frac{\partial^2 E}{\partial \varphi^2} \right)_0 - \left(\frac{\partial^2 E}{\partial \theta \partial \varphi} \right)_0^2 &> 0, \end{aligned} \right\} \quad (3-6)$$

l'indice 0 indiquant que l'expression est calculée pour $\theta = \theta_0$ et $\varphi = \varphi_0$. Appliquées à l'expression (3-4) de l'énergie, les relations (3-5) deviennent

$$\left. \begin{aligned} \varphi_0 &= \varphi_H, \\ H \sin(\theta_0 - \theta_H) + (H_{A1} - 4\pi M) \sin\theta_0 \cos\theta_0 + H_{A2} \sin^3\theta_0 \cos\theta_0 &= 0, \end{aligned} \right\} \quad (3-7)$$

où l'on a posé

$$H_{A1} = \frac{2K_1}{M}, \quad \text{et} \quad H_{A2} = \frac{4K_2}{M}. \quad (3-8)$$

Dans une expérience de résonance ferromagnétique, la précession de Larmor de l'aimantation autour de sa position d'équilibre est excitée par un champ hyperfréquence; lorsque la fréquence d'excitation coïncide avec la fréquence naturelle de précession de l'aimantation, il y a absorption résonnante de l'onde hyperfréquence. A la différence de la résonance magnétique nucléaire, on travaille à fréquence fixe, en faisant varier le champ magnétique appliqué. La condition de résonance est généralement obtenue à l'aide de la relation de Smit et Beljers (1955)

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \frac{1}{M^2 \sin^2 \theta_0} \left[\left(\frac{\partial^2 E}{\partial \theta^2}\right)_0 \left(\frac{\partial^2 E}{\partial \varphi^2}\right)_0 - \left(\frac{\partial^2 E}{\partial \theta \partial \varphi}\right)_0^2 \right]. \quad (3-9)$$

où γ , le rapport gyromagnétique, vaut $2,19 \mu_B/\hbar$ dans le cobalt massif (les termes d'amortissement responsables de l'élargissement homogène de la raie de résonance sont négligés dans l'équation ci-dessus). Cette relation présente l'inconvénient de n'être pas applicable lorsque $\theta_0 = 0$; récemment, Baselgia et col. (1988) ont proposé une formule numériquement équivalente, mais formellement plus commode:

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \frac{1}{M^2} \left\{ \left(\frac{\partial^2 E}{\partial \theta^2}\right)_0 \left[\frac{1}{\sin^2 \theta_0} \left(\frac{\partial^2 E}{\partial \varphi^2}\right)_0 + \frac{\cos \theta_0}{\sin \theta_0} \left(\frac{\partial E}{\partial \theta}\right)_0 \right] \right. \\ \left. \times \left[\frac{1}{\sin \theta_0} \left(\frac{\partial^2 E}{\partial \theta \partial \varphi}\right)_0 - \frac{\cos \theta_0}{\sin^2 \theta_0} \left(\frac{\partial E}{\partial \varphi}\right)_0 \right]^2 \right\}. \quad (3-10)$$

On obtient finalement l'expression donnant le champ de résonance H_r ,

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \left[H_r \cos(\theta_0 - \theta_H) + (H_{A1} - 4\pi M)(\cos^2 \theta_0 - \sin^2 \theta_0) + H_{A2} \sin^2 \theta_0 (3\cos^2 \theta_0 - \sin^2 \theta_0) \right] \\ \times \left[H_r \cos(\theta_0 - \theta_H) + (H_{A1} - 4\pi M) \cos^2 \theta_0 + H_{A2} \sin^2 \theta_0 \cos^2 \theta_0 \right]. \quad (3-11)$$

Dans le cas particulier où le champ statique est appliqué parallèlement au film, on obtient

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = H_{r\parallel} (H_{r\parallel} + 4\pi M - H_{A1} - H_{A2}), \quad (3-12)$$

et

$$\frac{\omega}{\gamma} = H_{r\perp} + H_{A1} - 4\pi M \quad (3-13)$$

si le champ est perpendiculaire.

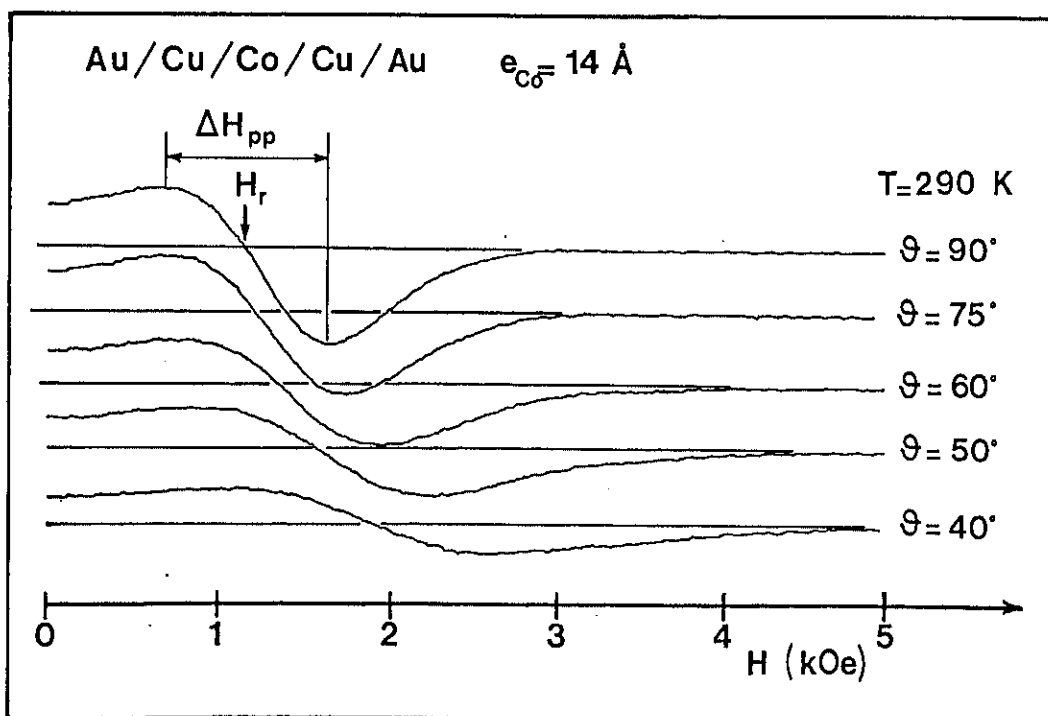


Figure 3-4: Spectre de résonance ferromagnétique à $T=291 \text{ K}$, pour un film Au/Cu/Co/Cu/Au ayant une épaisseur de Co de 14 \AA , et pour diverses valeurs de l'angle θ_H .

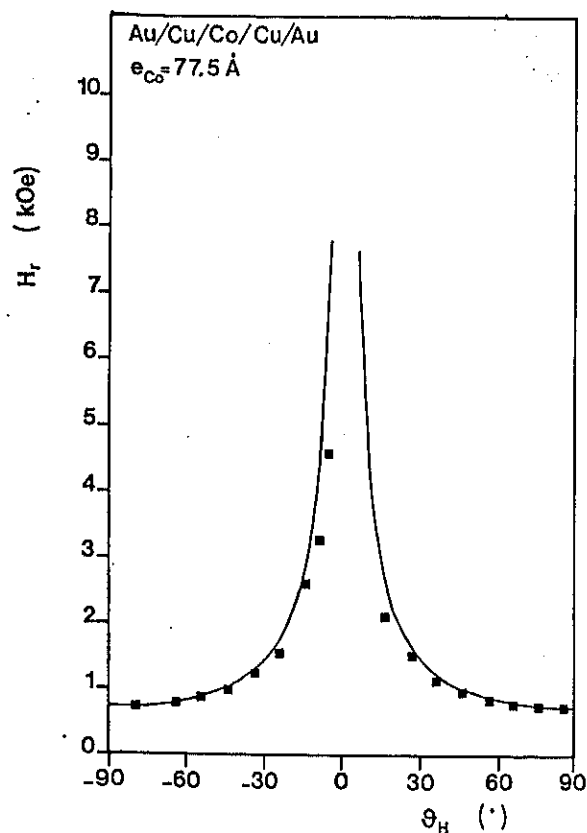


Figure 3-5: Variation du champ de résonance H_r à $T=291$ K, en fonction de l'angle θ_H , pour un film Au/Cu/Co/Cu/Au ayant une épaisseur de Co de 77,5 Å.

3-2.2. Résultats expérimentaux

La figure 3-4 représente le spectre d'absorption à température ambiante pour un film Au/Cu/Co/Cu/Au (épaisseur de cobalt: 14 Å), pour différentes valeurs de l'angle θ_H . On utilise une technique de modulation-détection synchrone, de sorte que le signal effectivement mesuré est proportionnel à la dérivée (par rapport à H) du coefficient d'absorption. On mesure le champ de résonance H_r , ainsi que la largeur pic-à-pic ΔH_{pp} de la raie, en fonction de l'angle θ_H .

Les figures 3-5, 3-6 et 3-7 représentent la variation du champ de résonance H_r en fonction de θ_H , pour des films Au/Cu/Co/Cu/Au, ayant des épaisseurs de cobalt, respectivement, de 77,5 Å, 33 Å et 14 Å; j'ai reporté sur les mêmes figures la courbe de variation théorique du champ de résonance en fonction de θ_H , calculée à l'aide des relations (3-7) et (3-11); les paramè-

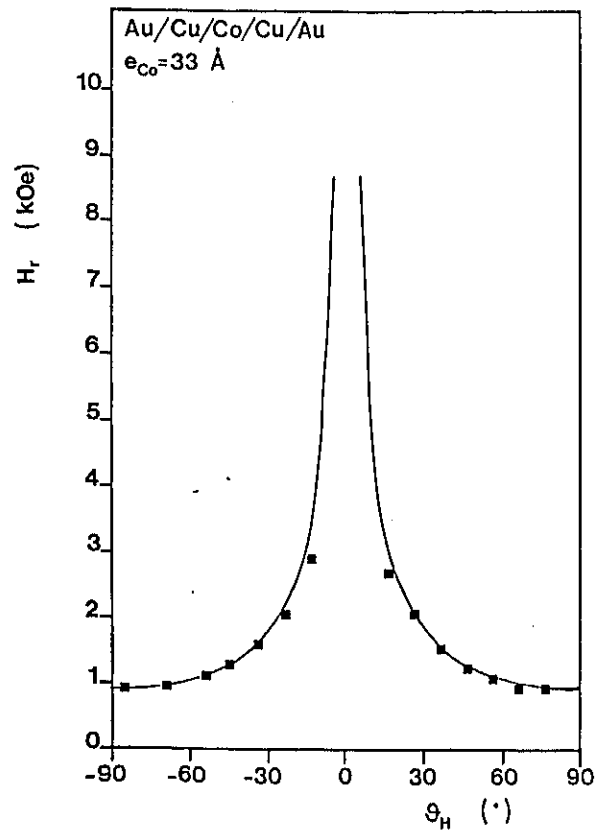


Figure 3-6: *Idem* fig. 3-5, pour une épaisseur de Co de 33 Å.

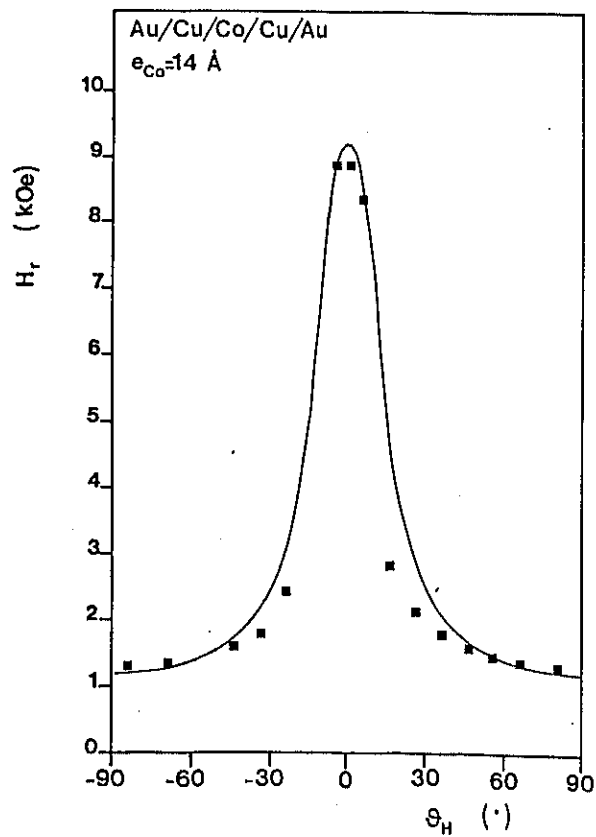


Figure 3-7: *Idem* fig. 3-5, pour une épaisseur de Co de 14 Å.

Tableau 3-1

	$4\pi M-H_{A1}$ (kOe)	H_{A2} (kOe)
Au/Cu/Co/Cu/Au		
77,5 Å	15,9	4
33 Å	13,1	4
14 Å	6,2	-0,15
Au/Co/Au		
80 Å	12,2	3
20 Å	5,5	0,9
11,3 Å	-0,1	1,8

Les $4\pi M-H_{A1}$ et H_{A2} ont été choisis de façon à optimiser l'ajustement entre les résultats théoriques et expérimentaux. L'accord entre les courbes expérimentale et théorique est assez bon. Nous déterminons ainsi, pour chaque échantillon, les champs d'anisotropie effectifs $4\pi M-H_{A1}$ et H_{A2} .

3-2.3. Anisotropie comparée des films Au/Cu/Co/Cu/Au et Au/Co/Au

Le tableau 3-1 rassemble les valeurs de $4\pi M-H_{A1}$ et H_{A2} obtenues, à température ambiante, pour les films Au/Cu/Co/Cu/Au, ainsi que les résultats de Chappert (1985; Chappert et col., 1986) pour les films Au/Co/Au. J'ai tracé sur la figure 3-8 le champ d'anisotropie effectif H_{A1} en fonction de l'inverse de l'épaisseur de cobalt (j'admet pour cela que le terme $4\pi M$ conserve la même valeur que dans le cobalt massif: $4\pi M = 17,7$ kOe, à température ambiante). On constate que, comme dans le cas des films Au/Co/Au, le champ d'anisotropie H_{A1} des films Au/Cu/Co/Cu/Au varie linéairement par rapport à $1/e$. Ceci prouve que la constante d'anisotropie K_1 peut s'écrire

$$K_1 = K_v^{exp} + \frac{2 K_s^{exp}}{e} \quad (3-14)$$

Nous pouvons donc définir, pour nos échantillons, une constante d'anisotropie effective de volume K_v^{exp} , et une constante d'anisotropie effective de

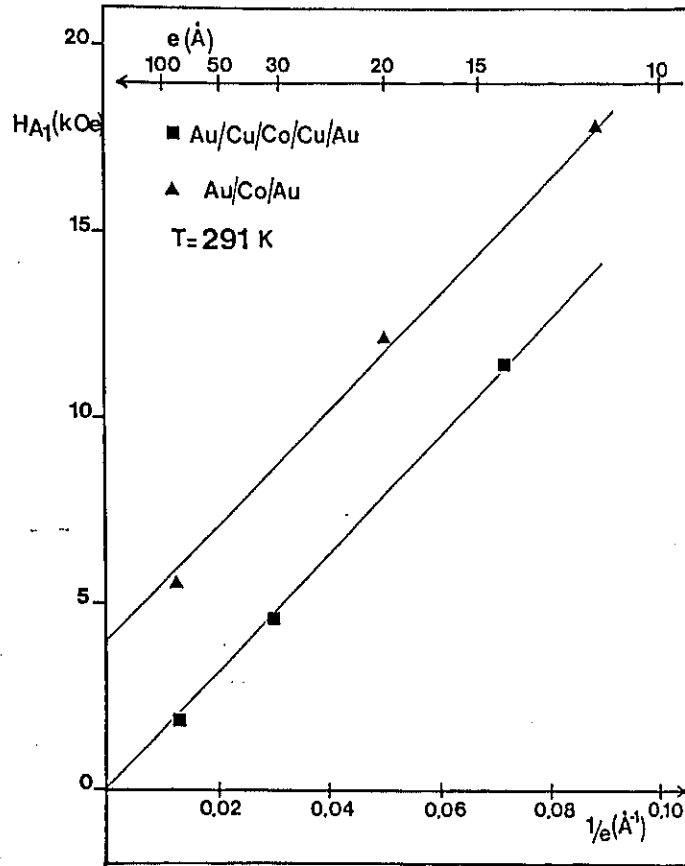


Figure 3-8: Variation du champ d'anisotropie H_{A1} , en fonction de $1/e$ (e étant l'épaisseur de Co), à $T=291$ K, pour des films Au/Cu/Co/Cu/Au. On a reporté également les résultats obtenus par Chappert (1985; Chappert et col., 1986) pour des films Au/Co/Au.

surface K_s^{exp} ; K_v^{exp} est mesurée par l'extrapolation à $1/e = 0$ sur la figure 3-8, K_s^{exp} par la pente. Pour les films Au/Cu/Co/Cu/Au, nous obtenons, à 291 K

$$\left. \begin{aligned} K_v^{exp} &= 0 \pm 2 \times 10^5 \text{ erg.cm}^{-3} \\ K_s^{exp} &= 0,5 \pm 0,05 \text{ erg.cm}^{-2} \end{aligned} \right\} \quad (3-15)$$

que l'on peut comparer aux résultats de Chappert (1985; Chappert et col., 1986) sur les films Au/Co/Au

$$\left. \begin{aligned} K_v^{exp} &= (3,2 \pm 0,2) \times 10^6 \text{ erg.cm}^{-3} \\ K_s^{exp} &= 0,5 \pm 0,05 \text{ erg.cm}^{-2} \end{aligned} \right\} \quad (3-16)$$

On peut faire les remarques suivantes:

- (i) l'anisotropie effective de volume des films Au/Cu/Co/Cu/Au est nulle, alors que celle des films Au/Co/Au est assez proche de celle du cobalt hc massif ($4,1 \times 10^6 \text{ erg.cm}^6$ (Wohlfarth, 1980)). La valeur importante de l'anisotropie effective de volume des films Au/Co/Au est en accord avec leur structure hc. Par contre, pour les films Au/Cu/Co/Cu/Au, les expériences de caractérisation structurale et de résonance magnétique nucléaire indiquent une structure plutôt cfc (par ailleurs assez désordonnée) pour laquelle on s'attend à une anisotropie effective de volume beaucoup plus faible; c'est effectivement le cas.
- (ii) la situation est tout à fait différente pour l'anisotropie effective de surface; en effet on trouve alors la même valeur pour l'interface Cu/Co que pour l'interface Au/Co. Ceci est peut-être à rapprocher du fait que l'arrangement atomique est le même pour une face cfc (111) que pour une face hc (0001); néanmoins, il faut également considérer que les structures électroniques de l'or et du cuivre sont différentes (bien que tous deux soient des métaux nobles), et peuvent *a priori*, par contact avec le cobalt, influencer différemment l'anisotropie d'interface; il faut aussi noter que le désaccord de maille est de -14 % entre l'or et le cobalt, et seulement de -2 % entre le cuivre et le cobalt, de sorte que les effets magnétoélastiques peuvent différer également. De toute évidence, la compréhension de l'anisotropie de surface observée nécessite une étude théorique approfondie; ce sera l'objet des chapitres 6 à 9.
- (iii) contrairement à H_{A1} , le champ d'anisotropie H_{A2} ne semble pas avoir une dépendance simple par rapport à l'épaisseur; en tous cas, il ne varie pas linéairement avec $1/e$. L'introduction du champ d'anisotropie H_{A2} est pourtant nécessaire pour reproduire fidèlement la variation avec H_H du champ de résonance H_r .
- (iv) la présence d'une forte anisotropie de surface de signe positif (c'est-à-dire s'opposant au champ démagnétisant) doit donner lieu à un effet spectaculaire: le basculement hors du plan de la direction de facile aimantation, en dessous d'une épaisseur critique. Cette propriété,

particulièrement riche de potentialités du point de vue des applications technologiques dans le domaine de l'enregistrement magnétique, sera observée directement par magnétométrie (cf. chapitres 4 et 5). La valeur de l'épaisseur critique est obtenue par

$$K_v^{exp} + \frac{2 K_s^{exp}}{e_c} = 2\pi M^2. \quad (3-17)$$

(où l'on a négligé le terme d'anisotropie $K_2 \sin^4 \theta$). En utilisant les valeurs de K_v^{exp} et K_s^{exp} déterminées ci-dessus, nous obtenons

$$\left. \begin{aligned} e_c &= 8 \text{ \AA}, \text{ pour les films Au/Cu/Co/Cu/Au,} \\ \text{et } e_c &= 11 \text{ \AA}, \text{ pour les films Au/Co/Au.} \end{aligned} \right\} \quad (3-18)$$

Dans toute l'étude ci-dessus, nous avons supposé implicitement que la direction de l'aimantation est uniforme dans tout l'échantillon, et peut être caractérisée par des angles uniques θ et φ . Or, ceci n'est en général pas vrai, et θ et φ peuvent dépendre de la coordonnée perpendiculaire au plan (z); la condition de résonance s'en trouve alors affectée. Rado (1982, 1987), et Zhang et Rado (1987) ont étudié théoriquement ce problème. Les calculs sont forts compliqués; je ne les reproduirai donc pas ici et me contenterai de discuter qualitativement la question. Le point essentiel est que, s'il existe une forte anisotropie de surface, l'aimantation des atomes situés à la surface a tendance à rester *ancrée* dans sa propre direction de facile aimantation, et à se *découpler* de l'aimantation des atomes situés à l'intérieur du film. Cet effet est contrarié par l'interaction d'échange, laquelle tend à aligner l'aimantation sur l'ensemble de l'échantillon. La validité de l'approximation de l'aimantation uniforme dépend donc d'une compétition entre l'*ancrage* superficiel dû à l'anisotropie de surface d'une part, et l'échange d'autre part. Il ressort de la théorie de Rado (1987) que, au moins dans le cas où le champ est appliqué perpendiculairement au plan, l'approximation de l'aimantation uniforme est valable si

$$e \ll \frac{A}{K_s}, \quad (3-19)$$

où A est la constante de raideur d'échange. En prenant $A = 2,1 \times 10^{-6} \text{ erg.cm}^{-1}$

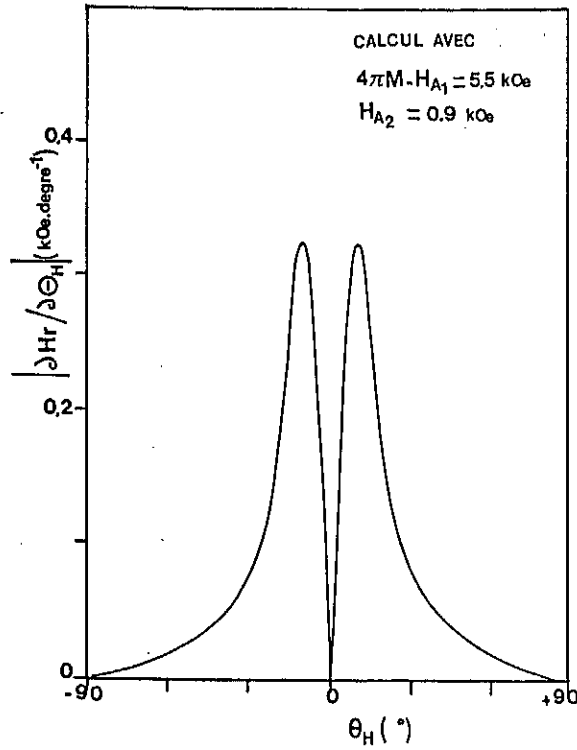


Figure 3-9: Variation par rapport à θ_H de $|\partial H_r / \partial \theta_H|$, d'après Chappert (1985), pour $4\pi M - H_{A1} = 5,5$ kOe et $H_{A2} = 0,9$ kOe.

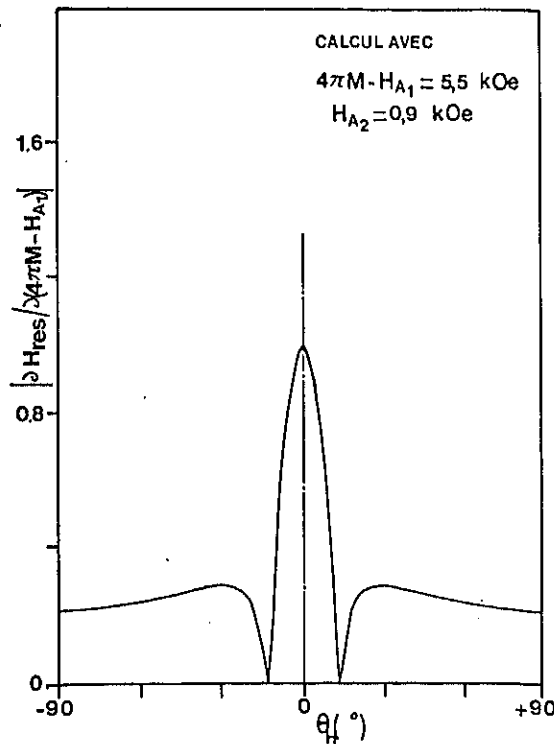


Figure 3-10: Variation par rapport à θ_H de $|\partial H_r / \partial (4\pi M - H_{A1})|$, d'après Chappert (1985), pour $4\pi M - H_{A1} = 5,5$ kOe et $H_{A2} = 0,9$ kOe.

(Döring, 1966), et $K_s = 0,5 \text{ erg.cm}^{-2}$, nous obtenons la condition $e \ll 400 \text{ \AA}$, qui est largement vérifiée dans nos expériences.

3-2.4. Etude des largeurs de raies

Comme on peut le constater sur la figure 3-4, la largeur de la raie d'absorption varie fortement avec l'angle θ_H . Cette forte variation angulaire de ΔH_{PP} suggère qu'il s'agit d'un élargissement inhomogène dû à une distribution de champs de résonance.

Deux causes possibles d'élargissement inhomogène ont été mises en évidence et étudiées par Chappert (1985; Chappert et col., 1986):

- (i) une légère dispersion de la direction normale aux plans compacts des cristaux de cobalt;
- (ii) une dispersion du champ d'anisotropie effectif $4\pi M - H_{A1}$, pouvant être due entre autres à la rugosité, à un mélange de cobalt cfc et hc, ou à des fautes d'empilement.

La largeur de raie s'écrit alors

$$\Delta H_{PP} = \left| \frac{\partial H_r}{\partial \theta_H} \right| \Delta \theta_H + \left| \frac{\partial H_r}{\partial (4\pi M - H_{A1})} \right| \Delta (4\pi M - H_{A1}). \quad (3-20)$$

Les figures 3-9 et 3-10 (d'après Chappert, 1985) représentent les variations par rapport à θ_H de $|\partial H_r / \partial \theta_H|$ et $|\partial H_r / \partial (4\pi M - H_{A1})|$. On constate que, effective-

ment, une dispersion $\Delta \theta_H$ sur l'angle ou $\Delta (4\pi M - H_{A1})$ sur le champ d'anisotropie effectif est tout à fait capable de donner lieu à une variation importante de la largeur de raie. Nous pouvons déterminer les paramètres $\Delta \theta_H$ et $\Delta (4\pi M - H_{A1})$ en les choisissant de façon à reproduire le plus fidèlement possible les résultats expérimentaux. Les figures 3-11, 3-12 et 3-13 représentent les variations expérimentale et théorique de ΔH_r en fonction de θ_H , pour des films Au/Cu/Co/Cu/Au ayant des épaisseurs de cobalt valant respectivement 77,5 Å, 33 Å, et 14 Å. Pour reproduire convenablement les résultats expérimentaux, il faut introduire également une contribution ΔH_0 , indépendante de l'angle θ_H .

Le tableau 3-2 rassemble les résultats, pour les films Au/Cu/Co/Cu/Au,

Tableau 3-2

	ΔH_0 (Oe)	$\Delta\theta_H$ (°)	$\Delta(4\pi M-H_{A1})$ (kOe)
Au/Cu/Co/Cu/Au			
77,5 Å	215	7	2,5
33 Å	330	7	3,3
14 Å	300	7	4,5
Au/Co/Au			
80 Å	160	2	0
20 Å	160	2	1

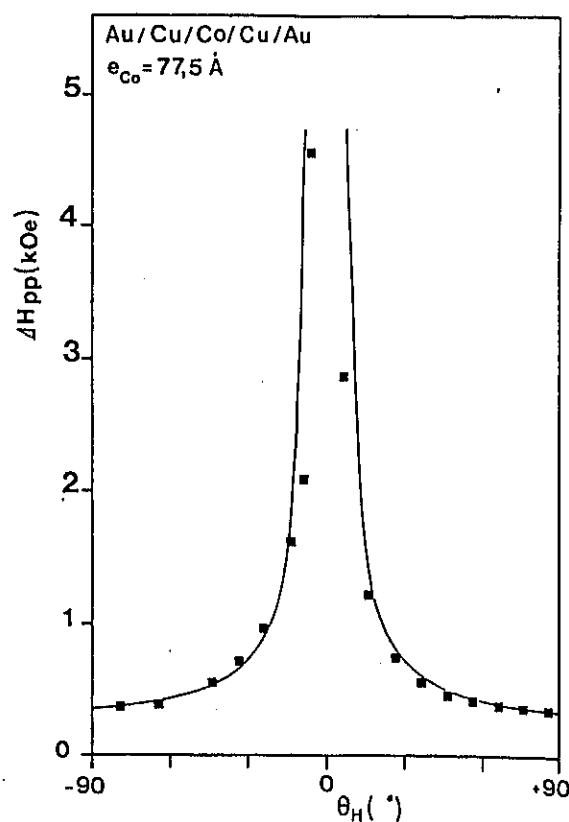


Figure 3-11: Variation expérimentale de ΔH_r en fonction de θ_H , à $T=291 \text{ K}$, pour un film Au/Cu/Co/Cu/Au ayant une épaisseur de Co de 77,5 Å, et courbe calculée théoriquement avec les paramètres: $\Delta H_0 = 215 \text{ Oe}$, $\Delta\theta_H = 7^\circ$, $\Delta(4\pi M-H_{A1}) = 2,5 \text{ kOe}$.

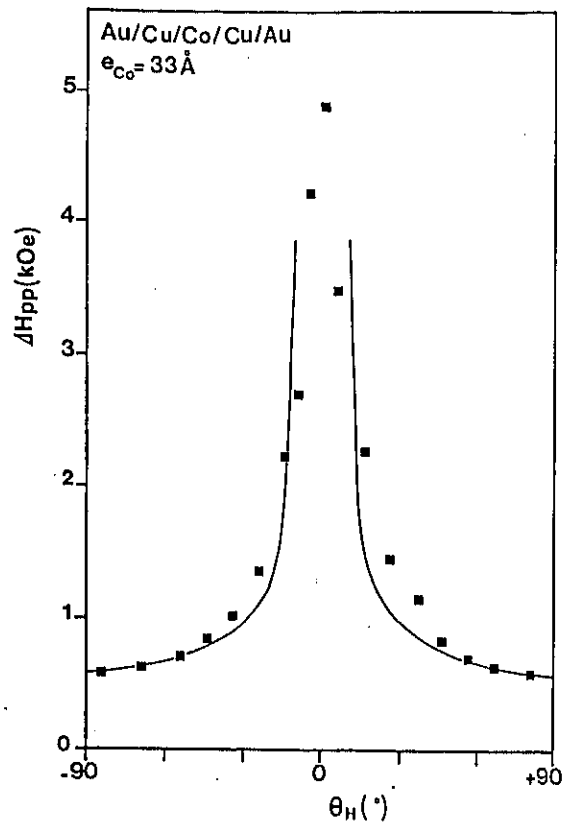


Figure 3-12: *Idem* fig. 3-11, pour une épaisseur de Co de 33 Å, et courbe calculée théoriquement avec les paramètres: $\Delta H_0 = 330 \text{ Oe}$, $\Delta \theta_H = 7^\circ$, $\Delta(4\pi M - H_{A1}) = 3,3 \text{ kOe}$.

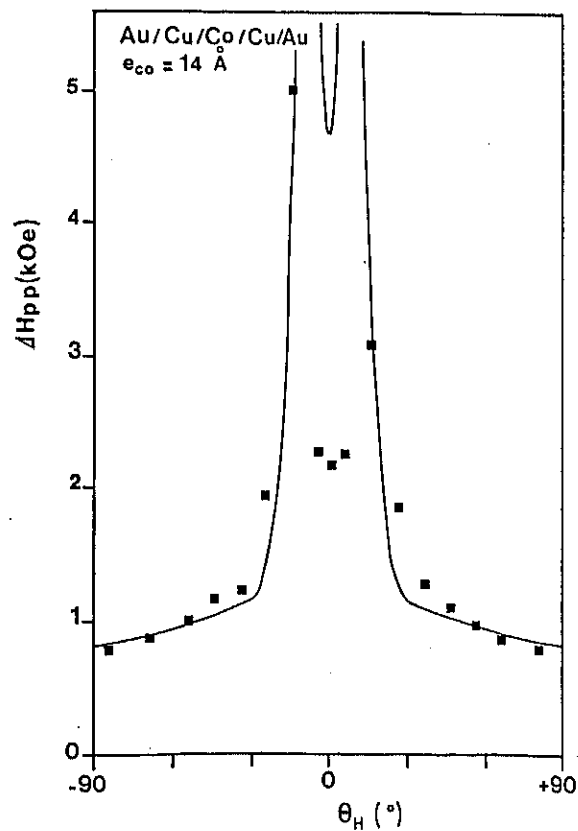


Figure 3-13: *Idem* fig. 3-11, pour une épaisseur de Co de 14 Å, et courbe calculée théoriquement avec les paramètres: $\Delta H_0 = 300 \text{ Oe}$, $\Delta \theta_H = 7^\circ$, $\Delta(4\pi M - H_{A1}) = 4,5 \text{ kOe}$.

ainsi que pour les films Au/Co/Au (Chappert, 1985; Chappert et col., 1986).

En considérant séparément les divers termes d'élargissement inhomogène, nous pouvons faire les commentaires suivants:

- (i) le terme ΔH_0 est assez difficile à interpréter, car il constitue une contribution introduite de façon *ad hoc*, de manière à ajuster les résultats expérimentaux et théoriques; il pourrait correspondre à l'élargissement homogène dû à l'amortissement. Notons malgré tout que ce terme est plus important pour Au/Cu/Co/Cu/Au que pour Au/Co/Au.
- (ii) nous constatons que le terme $\Delta\theta_H$, qui est dû à la désorientation des cristaux de cobalt, est très faible pour Au/Co/Au; ceci confirme les résultats de caractérisation structurale (cf chapitre 2). Une telle information n'avait pu être obtenue pour les films Au/Cu/Co/Cu/Au; l'étude de la largeur de raie en résonance ferromagnétique montre l'existence d'une plus grande désorientation des cristaux de cobalt.
- (iii) la rugosité des interfaces est une origine possible du terme $\Delta(4\pi M - H_{A1})$; en effet, l'énergie d'anisotropie (donc aussi H_{A1}) varie très fortement avec l'épaisseur, surtout aux très faibles épaisseurs. Une fluctuation d'épaisseur de 2 Å explique ainsi bien les valeurs $\Delta(4\pi M - H_{A1}) = 0$ et $\Delta(4\pi M - H_{A1}) = 1$ kOe obtenues respectivement pour des films Au/Co/Au de 80 Å et 20 Å. Par contre ce mécanisme ne peut expliquer à lui seul les valeurs importantes de $\Delta(4\pi M - H_{A1})$ observées pour des films Au/Cu/Co/Cu/Au jusqu'à des épaisseurs aussi importantes que 77,5 Å. Le cobalt hc massif a un champ d'anisotropie de l'ordre de 6 kOe, alors que celui du cobalt cfc massif est voisin de 0. Ainsi, si l'on a un mélange de cristaux cfc et hc, ou bien des fautes d'empilement, on peut avoir une distribution large de champs d'anisotropie, même pour des épaisseurs importantes. Ceci est à rapprocher des résultats de résonance magnétique nucléaire qui suggèrent, pour les films Au/Cu/Co/Cu/Au, une structure à tendance cfc, mais fortement perturbée.

Pour résumer, l'étude des largeurs de raies vient confirmer la bonne qualité structurale des films Au/Co/Au; par contre elle souligne la présence de désordre dans les films Au/Cu/Co/Cu/Au. Par ailleurs, ces derniers ont une anisotropie plus faible, la contribution de volume étant nulle.

Toutes ces raisons nous ont conduit à nous concentrer, pour les études ultérieures par magnétométrie, sur les seuls films Au/Co/Au.

CHAPITRE 4

MAGNETOMETRIE A BASSE TEMPERATURE
DES FILMS DE COBALT SUR OR

La mesure du moment magnétique en fonction du champ et de la température est la méthode la plus directe d'investigation des propriétés magnétiques des matériaux ferromagnétiques. Son avantage essentiel est que l'exploitation des résultats est immédiate, et ne nécessite pas une interprétation théorique (souvent délicate) des mesures comme c'est le cas pour la diffraction d'électrons lents à spin polarisé (SPLEED) ou la photoémission avec analyse de polarisation. La magnétométrie présente par contre l'inconvénient de mesurer une grandeur *extensive* (le moment magnétique total), laquelle est une *moyenne* sur l'ensemble de l'échantillon, à l'encontre de la spectroscopie Mössbauer, par exemple, qui mesure une grandeur *intensive* (le champ hyperfin) et constitue (de par sa sélectivité isotopique) une sonde *locale*.

Pour pouvoir étudier des films ayant une épaisseur de seulement quelques Å, il est nécessaire de disposer d'appareils d'une extrême sensibilité; les magnétomètres à effet Josephson (généralement désignés par l'acronyme SQUID) sont actuellement les plus performants à cet égard.

4-1. Magnétométrie à SQUID en champ faible, et en champ fort; les différents types de mesures

J'ai utilisé, pour réaliser cette étude, deux magnétomètres à SQUID différents:

- (i) d'une part un magnétomètre spécialement étudié pour avoir une grande sensibilité en moment magnétique (5×10^{-10} uem cgs) en champ faible ($H < 30$ Oe), construit au laboratoire par C. Chappert et P. Beauvillain (Chappert, 1985; Beauvillain et col., 1985). Ce magnétomètre fonctionne dans une gamme de température allant de 2 à 200 K; il est en outre possible d'appliquer, en dehors de la zone de mesure, un champ allant jusqu'à environ 10 kOe, permettant de réaliser des mesures d'aimantation rémanente.
- (ii) d'autre part le magnétomètre "champ fort" de G. Bayreuther et G. Lurgert (Universität Regensburg, RFA). Il s'agit d'un magnétomètre commer-

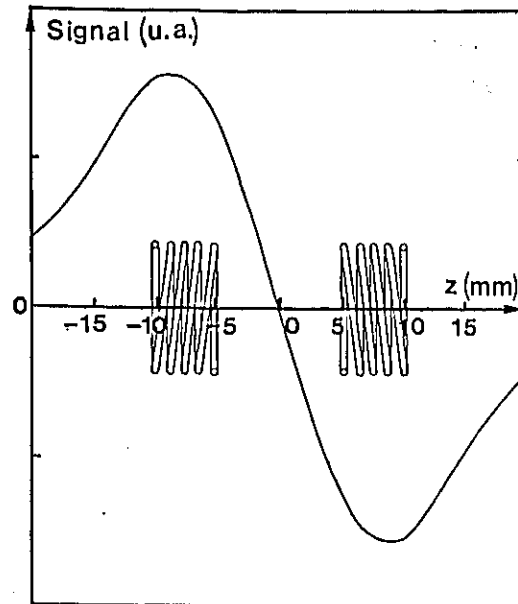


Figure 4-1: Variation du signal délivré par le SQUID, en fonction de la position de l'échantillon. On a représenté également la position des bobines de mesure.

cial (SHE, modèle VTS 50), d'une sensibilité de 5×10^{-7} uem cgs, disposant d'un champ allant jusqu'à 50 kOe, et d'une gamme de température comprise entre 5 et 400 K.

Dans les deux cas, la mesure est effectuée de la façon suivante: le signal mesuré est proportionnel au flux capté par deux bobines de Helmholtz d'axe parallèle au champ, connectées en série et bobinées en sens inverse (gradientmètre du premier ordre); la mesure est effectuée en déplaçant l'échantillon suivant l'axe des bobines, et en enregistrant le signal de sortie du SQUID en fonction de la position de l'échantillon. L'allure du résultat obtenu est représenté sur la figure 4-1. Pour un échantillon de forme donnée, le moment magnétique est proportionnel à la variation pic-à-pic du signal. Le facteur de proportionnalité dépend fortement de la forme de l'échantillon; on comprend aisément qu'il peut devenir très faible pour un échantillon de forme allongée de longueur supérieure à la distance entre les bobines de mesure. Il a été calculé ou étalonné pour diverses géométries d'échantillon, notamment pour des films minces disposés soit parallèlement, soit perpendiculairement à l'axe des bobines.

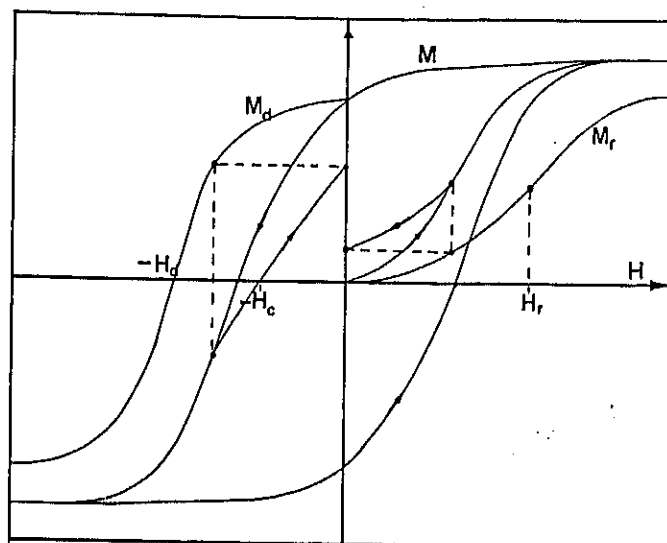


Figure 4-2: Les différentes mesures réalisées à l'aide de magnétomètres à SQUID:

- cycle d'hystérésis $M(H)$
- courbe de désaimantation $M_d(H)$
- courbe d'aimantation rémanente $M_r(H)$

La figure 4-2 montre quels sont les différents types de mesures effectuées à l'aide de ces deux magnétomètres:

- (i) des cycles d'hystérésis $M(H)$, réalisés sur le magnétomètre "champ fort".
- (ii) des courbes de désaimantation $M_d(H)$ (Wohlfarth, 1958, 1963), réalisées à l'aide du magnétomètre "champ faible". Chaque point est obtenu de la façon suivante: l'échantillon est d'abord aimanté dans un champ de +10 kOe, puis est soumis à un champ H (négatif); le moment magnétique rémanent est ensuite mesuré, en champ nul.
- (iii) des courbes d'aimantation rémanente $M_r(H)$ (Wohlfarth, 1958, 1963), réalisées avec le magnétomètre "champ faible": après avoir été préalablement désaimanté au moyen d'un champ alternatif d'amplitude décroissante, l'échantillon est soumis à un champ H , puis ramené en champ nul; on mesure alors le moment magnétique rémanent.

Le cycle d'hystérésis $M(H)$ donne des informations telles que l'aimantation à saturation, l'aimantation rémanente, le champ coercitif H_c , l'allure du cycle (rectangulaire, allongé, etc...). La courbe de désaimantation $M_d(H)$

mesure la variation *irréversible* d'aimantation due à l'application d'un champ opposé à l'aimantation initiale; la comparaison avec le cycle d'hystérésis, lequel mesure la variation totale (*réversible et irréversible*) d'aimantation, renseigne sur le processus de renversement de l'aimantation; on mesure, en particulier, le *champ de désaimantation* H_d , tel que $M_d(H_d)=0$. La courbe d'aimantation rémanente $M_r(H)$ donne des informations sur l'établissement de l'aimantation; on définit le champ H_r pour lequel l'aimantation rémanente atteint la moitié de sa valeur maximale: $M_r(H_r) = \frac{1}{2} M_r(\infty)$.

4-2. Cycles d'hystérésis

La mesure de cycles d'hystérésis sur des films ultraminces est extrêmement délicate, car la masse du métal ferromagnétique (quelques microgrammes) est beaucoup plus faible que celle du support; même si la susceptibilité diamagnétique de ce dernier est très faible, le signal dû au support peut, en champ fort, surpasser largement celui de l'échantillon proprement dit. Il faut donc, d'une part, minimiser le signal dû au support, et d'autre part, être capable de soustraire la contribution de support résiduelle.

Pour minimiser le signal du support, il faut bien entendu diminuer autant que possible la masse de ce dernier. Une autre solution est de mettre à profit l'effet lié au facteur de forme, en utilisant un support très long par rapport aux bobines de détection, l'échantillon étant placé au centre. Cette solution n'est malheureusement pas applicable sur le SHE VTS 50, la chambre de mesure n'étant pas suffisamment longue. Nous avons donc adopté la solution de supports légers: ceux-ci consistent en de petites nacelles construites à partir de ruban adhésif, et suspendues par du fil de coton rigidifié à l'aide de vernis; l'un est adapté aux mesures en champ parallèle, l'autre aux mesures en champ perpendiculaire.

La soustraction de la contribution résiduelle du support pose un problème particulier: en effet les facteurs de forme et les centres de gravité de l'échantillon et du support sont différents, de sorte que le signal pic-à-pic de l'ensemble *support plus échantillon* n'est pas égal à la somme des signaux pic-à-pic de ceux-ci. La manière correcte de s'affranchir de la contribution du support est de la soustraire *point par point* (c'est-à-dire pour chaque position). Cette solution, adoptée sur le magnétomètre "champ faible" de l'IEF, n'est malheureusement pas disponible sur le SHE VTS 50; nous avons donc dû nous contenter, pour les mesures de cycles d'hystérésis, de la sous-

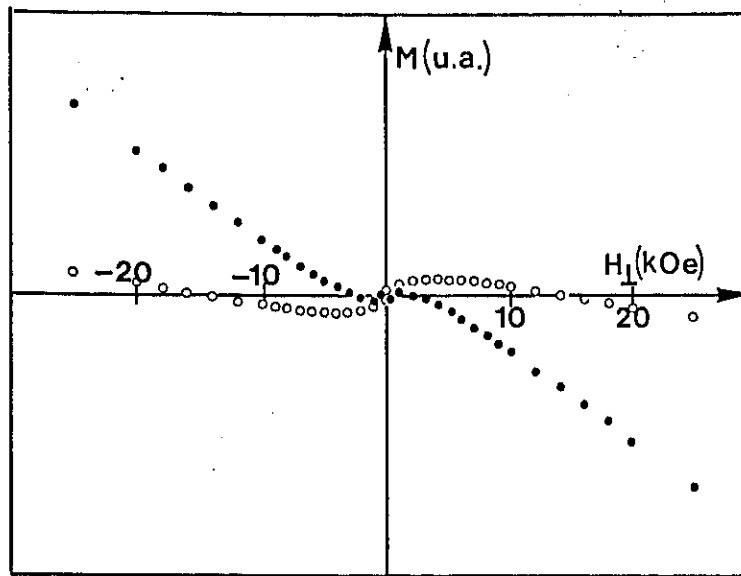


Figure 4-3: Cycle d'hystérésis mesuré en champ perpendiculaire à $T=10$ K, pour un film Au/Co/Au ayant une épaisseur de Co de 15,2 Å, avant (●) et après (○) soustraction du signal de support.

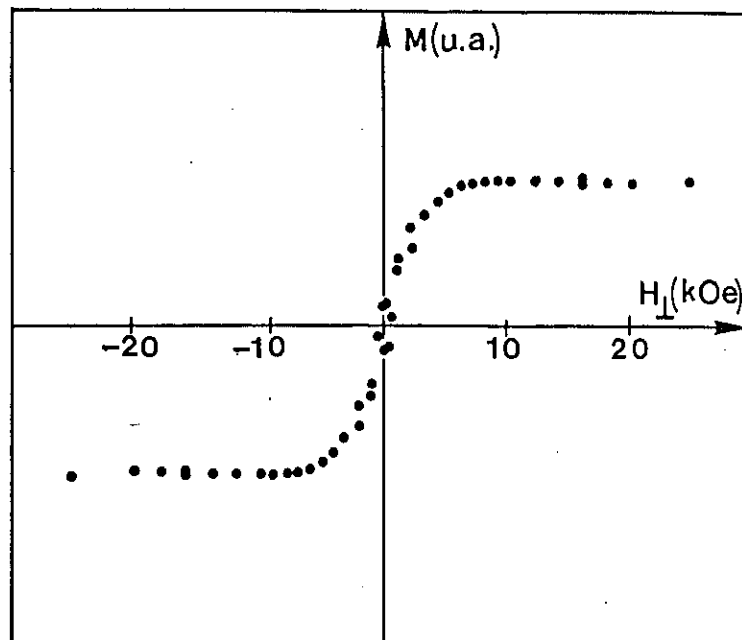


Figure 4-4: *Idem* fig. 4-3, après dépouillement complet (soustraction du signal du support, et du signal dû au vernis).

traction *pic-à-pic* du signal du support, introduisant ainsi une erreur systématique difficile à évaluer.

Les propos développés ci-dessus sont illustrés par la figure 4-3, sur laquelle est représenté le cycle d'hystérésis en champ perpendiculaire d'un film de 15,2 Å d'épaisseur. On constate que la contribution diamagnétique du support domine largement la contribution ferromagnétique du cobalt. Après soustraction du signal du support, il reste une contribution diamagnétique: cette dernière est due au vernis sur lequel se trouve le film après avoir été décollé de son support d'origine en verre. La contribution du vernis peut varier d'un échantillon à l'autre, et n'est pas mesurable séparément; elle est défalquée en mesurant la susceptibilité diamagnétique en champ fort, et en soustrayant l'aimantation correspondante. Le cycle d'hystérésis obtenu finalement est reproduit sur la figure 4-4. Bien entendu, ce processus est source d'incertitude et limite la précision de la mesure.

Nous avons ainsi étudié, à $T=10$ K, les cycles d'hystérésis en champs parallèle et perpendiculaire, de films ayant des épaisseurs de cobalt allant de 2 à 22 Å. La figure 4-5 représente les cycles d'hystérésis de films ayant respectivement 5,4 Å, 9,5 Å et 15,2 Å d'épaisseur. Nous pouvons constater que la direction de facile aimantation est parallèle au plan pour le film de 15,2 Å, et perpendiculaire au plan pour les films de 9,5 Å et 5,4 Å; ce résultat spectaculaire vient confirmer celui obtenu par résonance ferromagnétique (cf. chapitre 3), qui prévoit que, sous l'effet d'une importante anisotropie magnétique d'interface, la direction de facile aimantation doit devenir perpendiculaire au plan pour des épaisseurs de cobalt inférieures à une épaisseur critique de 11 Å. Une particularité des films de cobalt sur or est la valeur remarquablement grande de cette épaisseur critique, par comparaison avec celle d'autres systèmes présentant également un axe facile perpendiculaire (généralement entre 2 et 5 Å, cf. chapitre 1). Cette valeur élevée est due à la présence d'une importante anisotropie magnétique d'interface, d'une part, et à la contribution de l'anisotropie magnétique de volume, liée à la structure hexagonale compacte des films de cobalt sur or, d'autre part (cf. chapitre 3).

Pour la suite de cette étude, je vais focaliser mon attention sur les films ayant leur axe de facile aimantation perpendiculaire au plan, c'est-à-dire d'épaisseurs inférieures à 11 Å. Les figures 4-6 à 4-8 représentent les cycles d'hystérésis en champ perpendiculaire de films ayant des épaisseurs

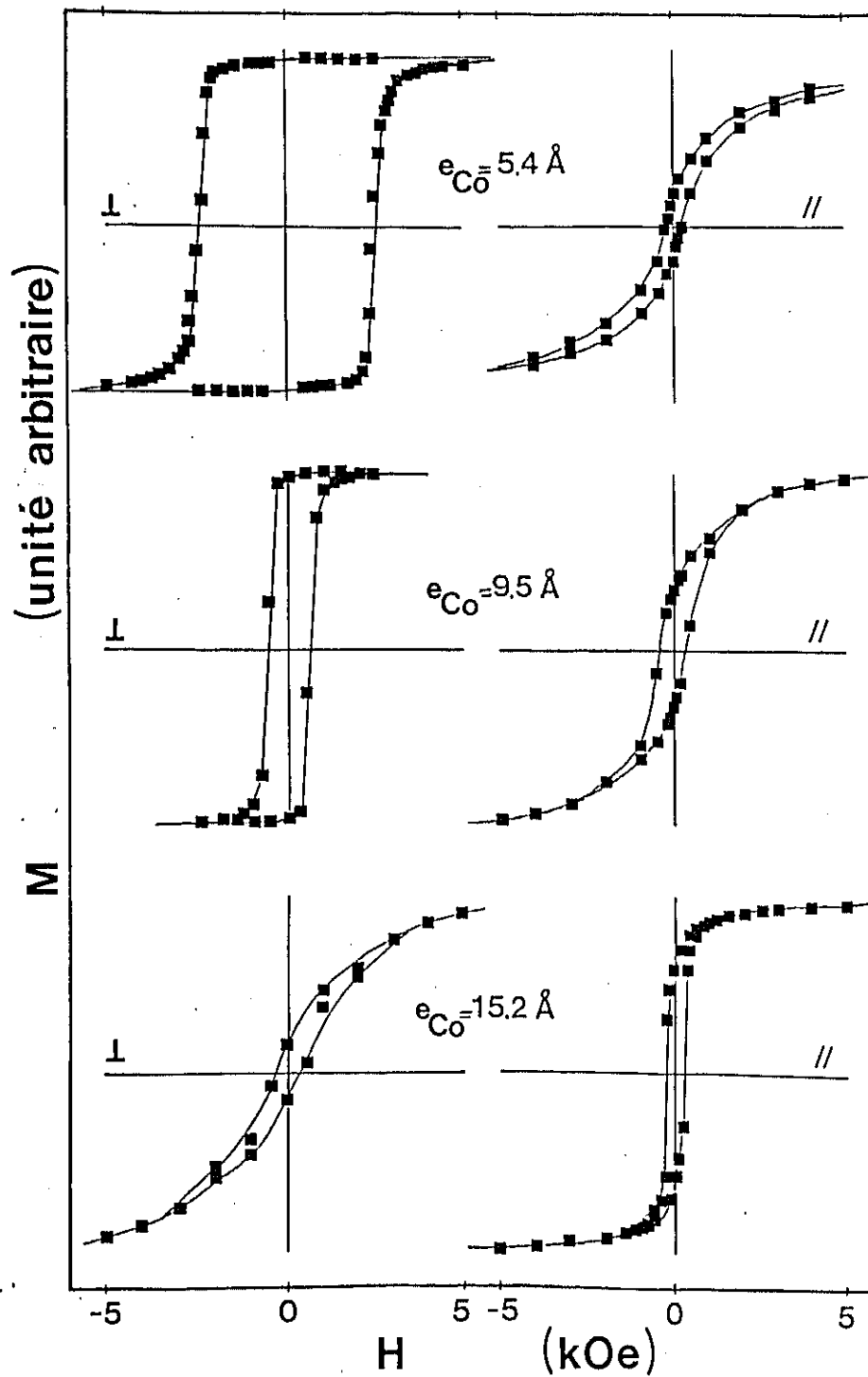


Figure 4-5: Cycles d'hystérésis mesurés à $T=10$ K, pour des films Au/Co/Au ayant des épaisseurs de Co valant respectivement 5,4 Å, 9,5 Å et 15,2 Å, en champ perpendiculaire (gauche) et en champ parallèle (droite).

Tableau 4-1

épaisseur (Å)	2,0	3,3	4,1	5,4	9,5	∞ (massif)
M_s (G)	1500 \pm 300	1440 \pm 150	1500 \pm 150	1560 \pm 150	1470 \pm 100	1446
H_c (kOe)	7,1	7,8	5,1	2,45	0,57	
M_r/M_s (%)	77	89	95	93	99	

de cobalt valant respectivement 2,0 Å, 3,3 Å et 4,1 Å. Les résultats obtenus (aimantation à saturation M_s , champ coercitif H_c , et rapport M_r/M_s) sont rassemblés dans le tableau 4-1.

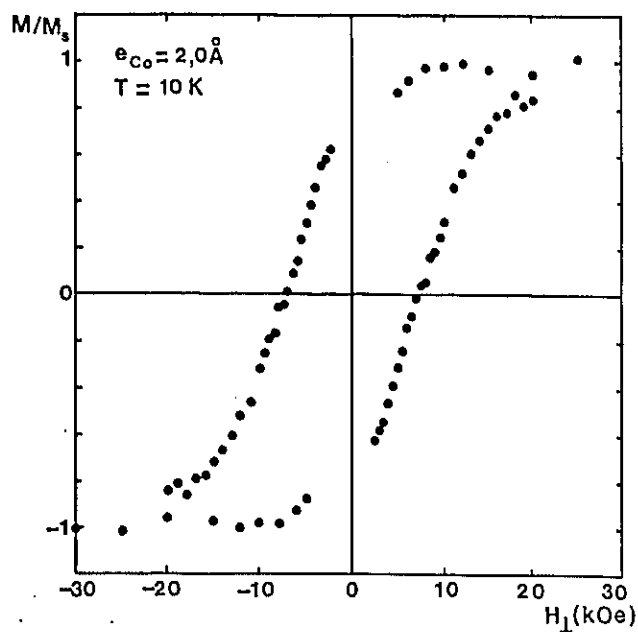


Figure 4-6: Cycle d'hystérésis mesuré à $T=10$ K en champ perpendiculaire, pour un film Au/Co/Au ayant une épaisseur de Co de 2,0 Å.

Nous constatons tout d'abord que les films de cobalt sur or restent ferromagnétiques jusqu'à des épaisseurs aussi faibles que 2 Å, soit environ un plan atomique en moyenne. L'aimantation à saturation ne semble pas différer notablement de celle du cobalt massif; il n'est malheureusement pas possible

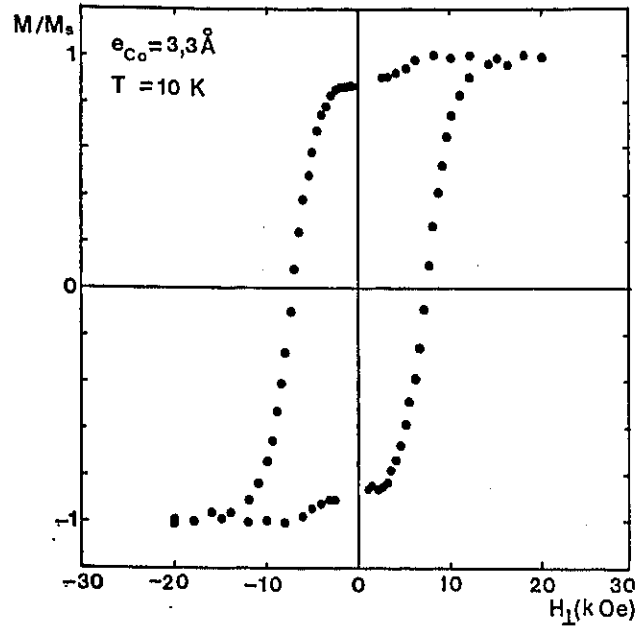


Figure 4-7: *Idem* fig. 4-6, pour une épaisseur de Co de 3,3 Å.

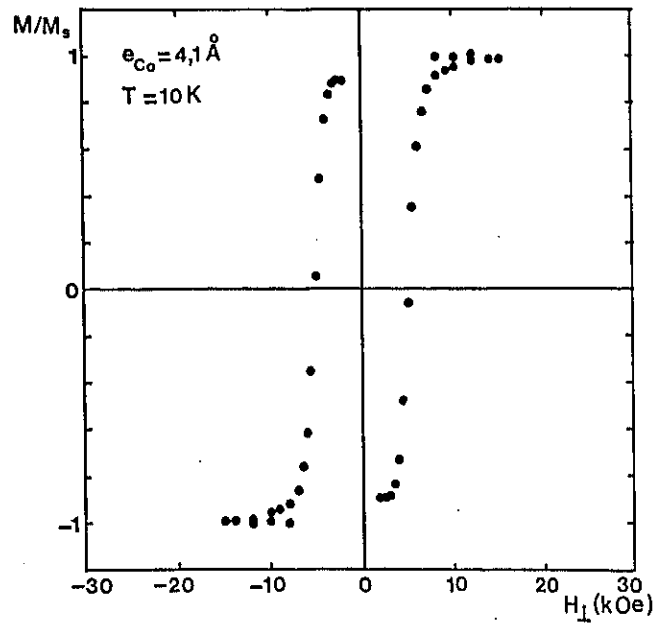


Figure 4-8: *Idem* fig. 4-6, pour une épaisseur de Co de 4,1 Å.

de discuter ce point de façon approfondie, la mesure de l'aimantation à saturation étant trop imprécise (ceci est dû essentiellement au problème de la

soustraction du signal de support, laquelle devient extrêmement hasardeuse pour des films ayant seulement un ou deux plans atomiques d'épaisseur).

Lorsque l'épaisseur diminue, de 9,5 Å à 2 Å, le champ coercitif augmente considérablement; par ailleurs, le cycle d'hystérésis (de forme rectangulaire pour les films de 9,5 Å, 5,4 Å et 4,1 Å) s'allonge notablement pour les deux films les plus minces (3,3 Å et 2,0 Å), comme en témoigne la diminution du rapport M_r/M_s (pour le film de 2,0 Å d'épaisseur, la saturation complète de l'aimantation n'est atteinte que dans un champ de 20 kOe environ). La forte augmentation du champ coercitif aux faibles épaisseurs sera discutée en détail dans un paragraphe ultérieur; l'altération de la forme du cycle pour des épaisseurs inférieures à 4 Å est probablement liée au fait que les films ne sont alors plus parfaitement continus. Notons que les cycles présentent des anomalies, ou des blancs (certains points, aberrants, ayant dû être éliminés) dans la zone des champs faibles; ceci est un artefact dû à l'électronique du magnétomètre à SQUID.

4-3. Mesures en champ faible: courbes de désaimantation

Ainsi que je l'ai signalé plus haut, les courbes de *désaimantation* peuvent donner des informations sur le processus de retournement de l'aimantation; en effet, à l'encontre des cycles d'hystérésis, elles n'enregistrent que les modifications *irréversibles* de l'aimantation. Par ailleurs, toutes les mesures étant effectuées en champ nul, le signal de support (essentiellement diamagnétique) est considérablement plus faible que pour les cycles d'hystérésis. Le support utilisé dans le magnétomètre "champ faible" de l'IEF est un barreau de corindon monocristallin (à la fois isolant électrique, et bon conducteur thermique) assurant la thermalisation de l'échantillon. La susceptibilité magnétique du corindon est faible, et sa forme allongée minimise considérablement son signal; le signal résiduel, dû probablement à des inclusions ferromagnétiques, est peu important et peut être éliminé par la méthode de soustraction *point par point*. Pour les mesures en champ parallèle, l'échantillon est placé directement sur le barreau de corindon, et maintenu par du ruban de téflon; pour les mesures en champ perpendiculaire, une équerre auxiliaire en aluminium très pur est utilisée (le signal de l'équerre est soustrait également *point par point*).

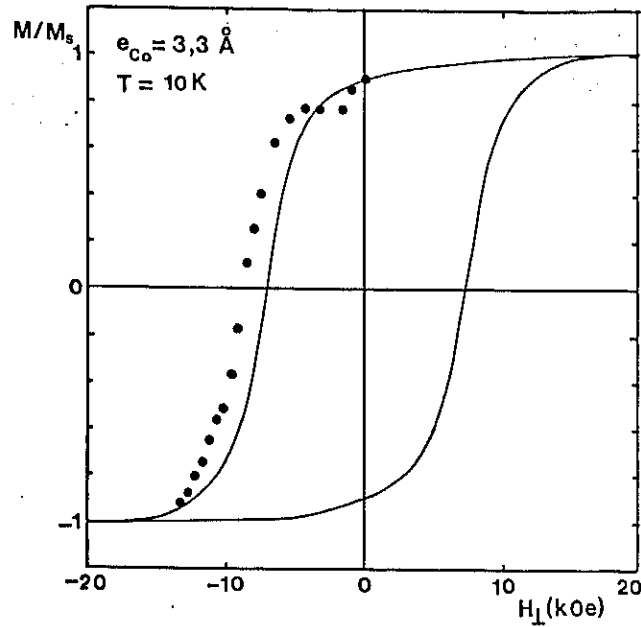


Figure 4-9: Courbe de *désaimantation* perpendiculaire mesurée à $T=5$ K, pour un film Au/Co/Au ayant une épaisseur de Co de 3,3 Å, comparée au cycle d'hystérésis correspondant (trait plein).

Les figures 4-9, 4-10 et 4-11 représentent les courbes de *désaimantation* en champ perpendiculaire obtenues à $T=5$ K pour des films de 3,3 Å, 5,4 Å et 9,5 Å, respectivement, comparées aux cycles d'hystérésis correspondants. La différence entre la courbe de *désaimantation* et le cycle d'hystérésis correspond à la variation réversible de l'aimantation. Bien que les deux courbes soient très voisines l'une de l'autre, la différence est relativement importante au voisinage du champ coercitif: ceci indique une certaine réversibilité du renversement de l'aimantation, et exprime le fait qu'il faut, pour bloquer l'aimantation dans l'état renversé, appliquer un champ légèrement supérieur à celui nécessaire pour effectuer ce renversement. Cet effet, d'autant plus important que l'épaisseur est faible, est mesuré par la différence entre le *champ de désaimantation* H_d , et le champ coercitif H_c . Le tableau 4-2 rassemble les valeurs obtenues pour H_d et H_c (pour le film de 2,0 Å, il n'a pas été possible de mesurer la courbe de *désaimantation*, le champ de saturation étant trop élevé).

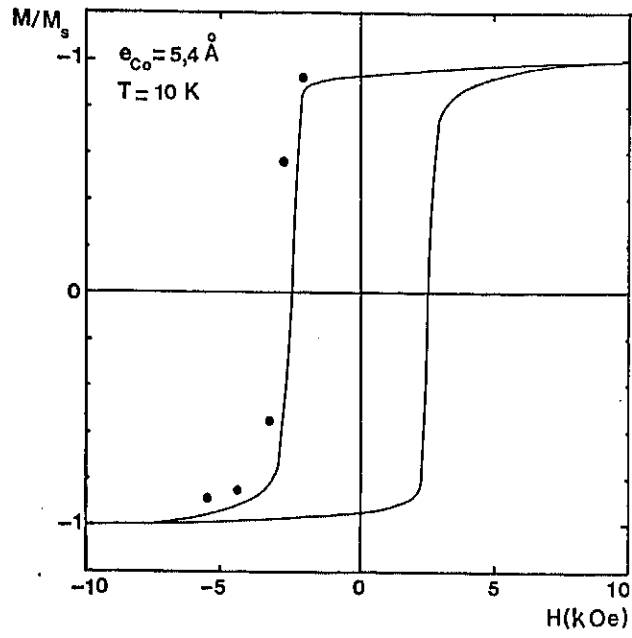


Figure 4-10: *Idem* fig. 4-9, pour une épaisseur de Co de 5,4 Å.

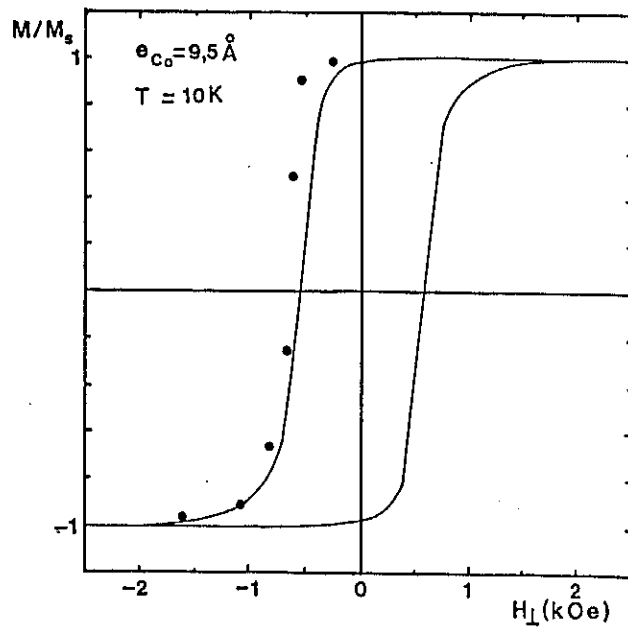


Figure 4-11: *Idem* fig. 4-9, pour une épaisseur de Co de 9,5 Å.

Tableau 4-2

épaisseur (Å)	3,3	4,1	5,4	9,5
H_d (kOe)	8,9	5,6	2,9	0,65
H_c (kOe)	7,8	5,1	2,45	0,57

4-4. Interprétation de la forte variation du champ coercitif et du *champ de désaimantation* aux faibles épaisseurs

Nous venons d'observer que le champ coercitif H_c et le *champ de désaimantation* H_d augmentent de façon spectaculaire pour les très faibles épaisseurs. Ce comportement est visualisé sur la figure 4-12, sur laquelle sont reportées les valeurs de H_c et H_d , en fonction de $1/e^2$ (e étant l'épaisseur de cobalt). Il apparaît clairement que, pour des épaisseurs supérieures à 3 Å, H_c et H_d varient comme $1/e^2$; cette loi de variation n'est plus vérifiée pour des épaisseurs de l'ordre de 2 Å.

Nous pouvons, *a priori*, envisager deux types de mécanismes pour le renversement de l'aimantation:

- (i) si les grains de cobalt voisins sont bien couplés magnétiquement (par échange) les uns aux autres, le film doit apparaître comme magnétiquement continu; le processus auquel on peut alors s'attendre pour le renversement de l'aimantation est celui de déplacement de parois séparant des domaines d'aimantations opposées (domaines et parois pouvant s'étendre sur plusieurs grains, en "ignorant" les joints de grains).
- (ii) si, au contraire, à cause d'un affaiblissement de l'interaction d'échange au niveau des joints de grains, les différents grains sont magnétiquement découplés les uns des autres, nous aurons plutôt affaire à un processus de renversement individuel de l'aimantation de chacun de grains de cobalt.
- (iii) notons bien que les deux mécanismes ci-dessus constituent des cas limites, et que la situation réelle peut évoluer continûment de l'un à l'autre en fonction du degré de découplage magnétique au niveau des joints de grains.

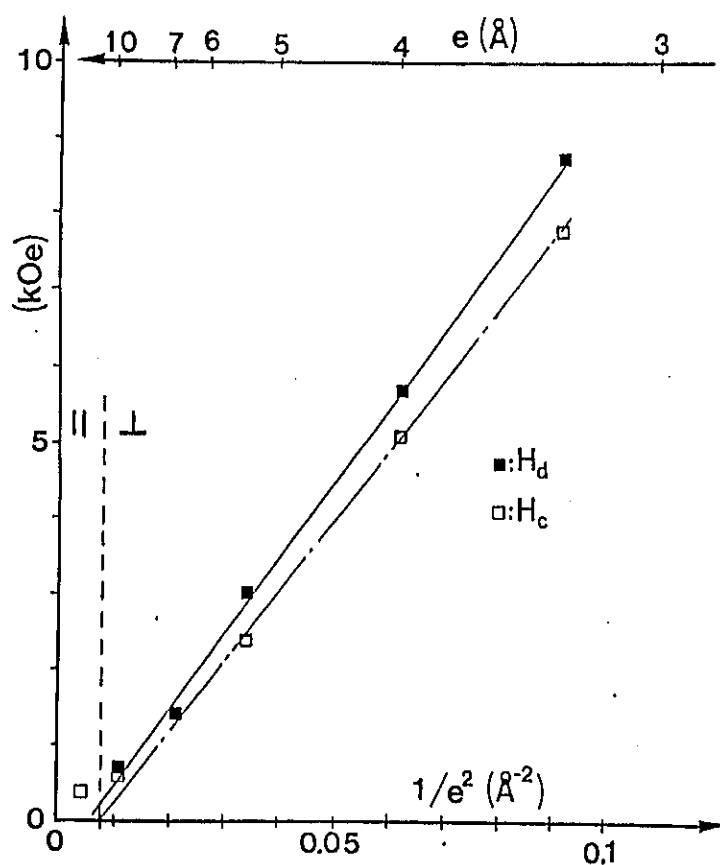


Figure 4-12: Evolution du champ coercitif perpendiculaire H_c , et du champ de désaimantation perpendiculaire H_d , en fonction de $1/e^2$ (e étant l'épaisseur de Co).

Le renversement de l'aimantation d'une assemblée de grains indépendants a fait l'objet de très nombreuses études, tant expérimentales que théoriques, principalement dans le domaine des milieux magnétiques particuliers pour l'enregistrement. Plusieurs mécanismes ont été envisagés pour le retournement de l'aimantation d'un grain isolé:

- (i) le mécanisme le plus simple est la rotation uniforme de l'aimantation; le champ de retournement est alors égal au champ d'anisotropie effectif $H_{A1} - 4\pi M$, lequel est beaucoup plus élevé que le champ coercitif observé.
- (ii) le renversement de l'aimantation peut également s'effectuer *via* des modes non uniformes ("curling" et "buckling"); le calcul du champ de retournement est alors beaucoup plus compliqué que pour le mode homogène; il conduit généralement à des champs de retournement plus faibles.

L'interaction magnétostatique entre les grains complique considérablement le problème; en effet chaque grain subit, outre le champ extérieur et son propre champ démagnétisant, le champ magnétique créé par tous les autres grains, ce qui conduit à un problème à N corps interagissant à longue distance. Wohlfarth (1958, 1963) a proposé la relation suivante entre la courbe de désaimantation $M_d(H)$, et la courbe d'aimantation rémanente $M_r(H)$:

$$M_d(-H) = M_r(+\infty) - 2M_r(H), \quad (4-1)$$

valable dans le cas d'une assemblée de particules sans interactions. Cette loi a été utilisée par divers auteurs (Henkel, 1964; Bissell et col., 1988) pour tester le degré d'interaction des différents grains; la relation (4-1) est généralement infirmée par les résultats expérimentaux, indiquant clairement l'importance de l'interaction magnétostatique entre les grains.

Nous avons comparé, pour un film de 3,3 Å d'épaisseur, la courbe de désaimantation $M_d(H)$ et la courbe d'aimantation rémanente $M_r(H)$. Le résultat est représenté sur la figure 4-13; nous observons que la relation 4-1 est bien vérifiée. Ceci cadre mal avec l'hypothèse de grains non couplés par interaction d'échange; en effet, compte tenu de la proximité des grains, l'interaction magnétostatique devrait conduire à violer la relation 4-1.

Nous pouvons également envisager le mécanisme de renversement de l'aimantation par mouvement de parois. La relation (4-1) peut également être interprétée dans ce cadre.

Lorsque l'on réalise une mesure de désaimantation $M_d(H)$, on part de l'état de saturation; l'échantillon est alors monodomaine. Pour renverser l'aimantation par application d'un champ opposé, il faut que ce champ soit supérieur au champ de nucléation H_n (champ nécessaire pour créer un petit domaine d'aimantation opposée), d'une part, et au champ de propagation H_p (champ permettant le déplacement irréversible des parois, et par conséquent la croissance des domaines d'aimantation renversée), d'autre part. Le champ de désaimantation H_d est donc égal au plus grand des champs H_n et H_p .

En revanche, lors de la mesure d'une courbe d'aimantation rémanente, l'échantillon est au départ dans un état désaimanté, dans lequel les parois préexistent. Le champ nécessaire pour aimanter l'échantillon (mesuré par H_r) est alors égal au champ de propagation H_p .

Dans l'hypothèse du mécanisme de renversement de l'aimantation par mouvements de parois, le résultat $H_d = H_r$ révélé par la figure 4-13 exprime le fait

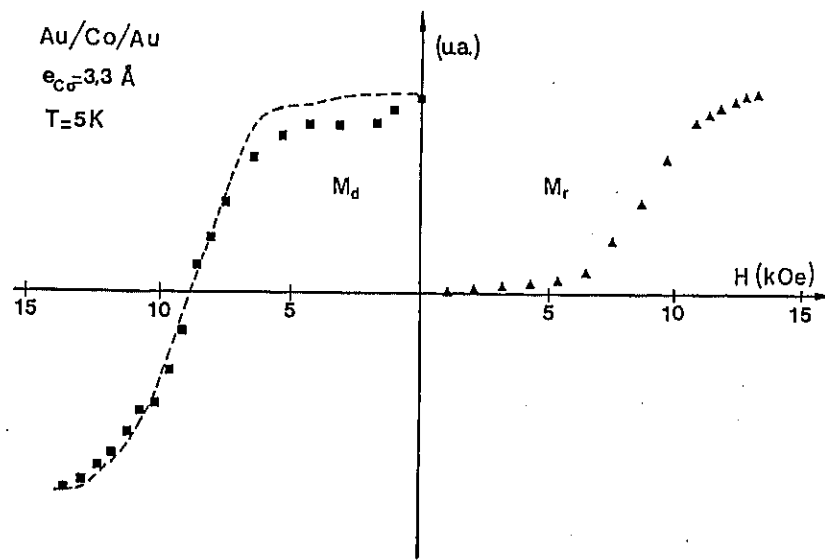


Figure 4-13: Courbes de désaimantation $M_d(H)$ et d'aimantation rémanente $M_r(H)$, mesurées à $T=10 \text{ K}$ en perpendiculaire, pour un film Au/Co/Au ayant une épaisseur de Co de $3,3 \text{ \AA}$. La courbe en pointillés est obtenue à partir de $M_r(H)$ par la relation (4-1).

que le champ de nucléation est inférieur au champ de propagation, et que c'est ce dernier qui détermine le champ de désaimantation H_d , ainsi que le champ coercitif H_c .

4-4.1. Propagation de parois dans un milieu inhomogène

Une paroi sépare deux domaines d'aimantations opposées $\pm M_s$ (dans toute la suite de ce chapitre, il ne sera question que de parois à 180° ; par ailleurs le champ H sera toujours appliqué dans la direction de facile aimantation); la paroi est caractérisée par sa tension γ (énergie par unité de surface), et sa largeur δ ; la tension de paroi joue pour celle-ci le rôle d'une énergie potentielle. Dans un matériau massif, uniaxe, de constante d'échange A et de constante d'anisotropie K , γ et δ sont donnés par (Kneller, 1962)

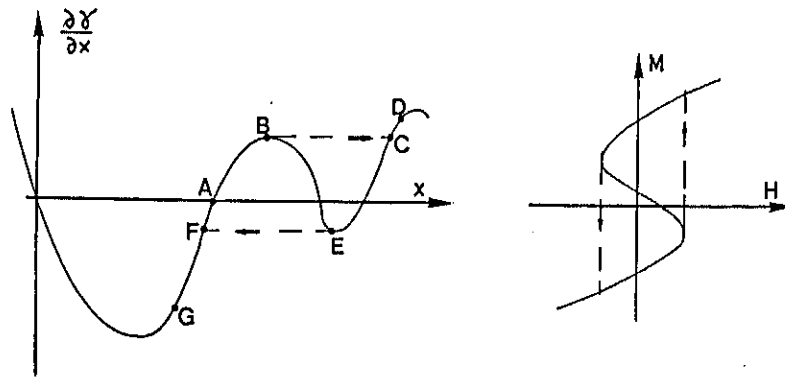


Figure 4-14: Schéma représentant les déplacements d'une paroi plane en présence de variations de la tension de paroi γ . Les traits pointillés représentent les déplacements irréversibles de la paroi.

$$\left. \begin{aligned} \gamma &= 4 \sqrt{AK} , \\ \delta &= \pi \sqrt{\frac{A}{K}} ; \end{aligned} \right\} \quad (4-2)$$

nous admettrons que ces relations restent valables dans le cas d'un film ultramince.

Lorsqu'une paroi de surface S se déplace de δx en présence d'un champ H , l'aimantation passe de $-M_s$ à $+M_s$ sur un volume $S \delta x$, et l'énergie Zeeman diminue de $2HM_s S \delta x$; la paroi subit donc une pression effective égale à $2HM_s$, tendant à la déplacer de façon à augmenter le volume du domaine d'aimantation parallèle au champ, au détriment de celui dont l'aimantation est anti-parallèle au champ.

Dans un milieu inhomogène, la tension de paroi varie d'un point à un autre, et la paroi "voit" des puits et des bosses de potentiel qui font obstacle à son déplacement. L'étude du déplacement de parois en présence d'obstacles a été abordée par divers auteurs (pour une revue d'ensemble voir Kneller, 1962, Herpin, 1964, et Kléman, 1982), les contributions les plus importantes étant dues à Néel (1944, 1946a,b,c, 1949).

L'effet d'inhomogénéités sur le déplacement des parois est schématisé sur la figure 4-14; pour simplifier, considérons une paroi plane rigide se déplaçant dans un potentiel unidimensionnel; la paroi est en équilibre lorsque la force exercée par le champ $2HM_s$ est contrebalancée par celle due aux in-

homogénéités de tension de paroi: $S (\partial\gamma/\partial x)$. Sous l'effet d'un champ positif croissant, la paroi (initialement au repos au point A en champ nul) se déplace de façon réversible jusqu'en B ; arrivée en B , elle "saute" de façon irréversible au point C (saut de Barkhausen), puis se déplace de nouveau réversiblement jusqu'en D . Si l'on fait alors décroître le champ, la paroi va se déplacer réversiblement de C à E , "sauter" de E à F , et le trajet FGA est finalement effectué de façon réversible. J'ai également représenté sur la figure 4-14 le cycle d'hystérésis $M(H)$ correspondant. Si les portions réversibles peuvent être effectuées aussi lentement que possible, et par conséquent sans dissipation d'énergie, il n'en va pas de même lors des sauts de Barkhausen, qui s'effectuent à vitesse finie. L'énergie dissipée au cours du cycle provient des retournements rapides de spins lors des sauts de Barkhausen, au cours desquels sont créés des courants de Foucault (dissipation par effet Joule), et sont émis des photons (par couplage électromagnétique), des phonons (par couplage magnétoélastique), etc...

On comprend bien ainsi comment les inhomogénéités de tension de paroi peuvent donner naissance à l'hystérésis magnétique. Par ailleurs, il apparaît clairement que les maxima relatifs H_p de $\frac{1}{2M_s} \frac{\partial\gamma}{\partial x}$ constituent la distribution des *champs de propagation*; le champ coercitif (ou plus exactement le *champ de désaimantation*) est déterminé par la valeur moyenne $\overline{H_p}$. Si la largeur

$$\Delta H_p = \sqrt{\overline{H_p^2} - \overline{H_p}^2}$$

de la distribution des champs de propagation H_p est faible, le cycle d'hystérésis sera de forme quasi rectangulaire; si au contraire, ΔH_p est important, le cycle sera plus "arrondi", et le renversement de l'aimantation se fera progressivement sur un intervalle de champ de l'ordre de ΔH_p .

La théorie des mouvements de parois planes rigides dans un potentiel unidimensionnel, évoquée ci-dessus, a été développée principalement par l'école allemande (Becker et Döring, 1939; Kersten, 1943); elle donne une idée qualitativement juste des phénomènes liés à l'hystérésis magnétique. Par contre, comme l'a montré Néel (1946a), l'hypothèse de parois rigides est trop grossière pour conduire à des valeurs numériques acceptables. La raison en est que la paroi a tendance à se déformer de façon à se positionner dans les sites de faible tension de paroi, et minimiser ainsi son énergie. La confi-

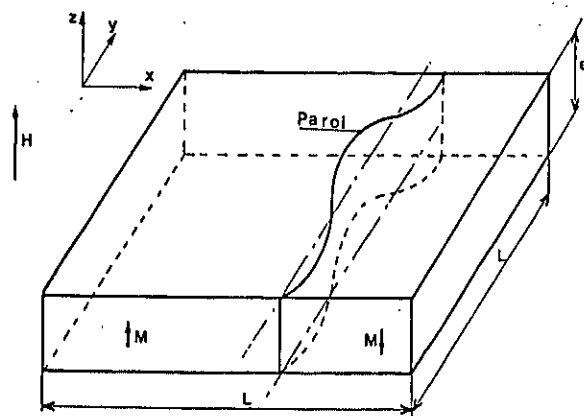


Figure 4-15: Géométrie du modèle choisi pour étudier la propagation d'une paroi dans un film ultramince.

guration adoptée par la paroi résulte de la compétition entre le gain d'énergie par déformation, et l'accroissement d'énergie dû à l'augmentation de la surface. Néel (1946a) a proposé une théorie des mouvements de parois *déformables*. Nous allons nous en inspirer pour de tenter déterminer le champ de propagation des films de cobalt ultraminces.

Le modèle choisi est le suivant:

On considère un film d'épaisseur e , de dimensions latérales L (que l'on pourra faire tendre vers l'infini par la suite), et d'axe de facile aimantation perpendiculaire à son plan ($K > 2\pi M_s^2$). Ce film est séparé en deux domaines d'aimantation $\pm M_s$ par une paroi déformable, parallèle en moyenne à la direction Oy (figure 4-15). On considère que l'aimantation ne dépend pas de z , c'est-à-dire que la paroi est cylindrique de génératrices parallèles à Oz ; ceci est justifié par le fait que toute déviation de la paroi par rapport à la forme cylindrique ferait apparaître des "charges" magnétiques, et causerait ainsi un accroissement d'énergie considérable. Le problème se réduit donc à un problème bidimensionnel. La tension de paroi $\gamma(x, y)$, de valeur moyenne γ_0 , fluctue spatialement; elle est caractérisée par son amplitude de fluctuation $\Delta\gamma(x, y)$, dont la moyenne quadratique est notée $\overline{\Delta\gamma}$ et la longueur de corrélation ξ (longueur caractéristique des variations de tension de paroi).

La paroi s'étend sur une largeur δ_0 (en moyenne); la tension de paroi est donc moyennée spatialement sur une distance de l'ordre de δ_0 , de sorte que

si la longueur de corrélation ξ est plus faible que la largeur de paroi δ_0 , l'amplitude de fluctuation est réduite par un facteur ξ/δ_0 ; à part ce dernier point, l'épaisseur de la paroi ne joue aucun rôle, et celle-ci peut être considérée comme étant infiniment mince. Nous pouvons donc caractériser la paroi par sa position $X(y)$; appelons X_0 la valeur moyenne de $X(y)$, et $\Delta X(y)$ l'écart à cette valeur moyenne.

L'énergie potentielle de la paroi s'écrit

$$E_p = e \int_0^L dy \gamma(X(y), y) \sqrt{1 + \left(\frac{dX}{dy}\right)^2} \quad (4-3)$$

A la suite de Néel, nous pouvons linéariser le problème en développant E_p à l'ordre deux en $\Delta\gamma$ et ΔX ; cette approximation est valable si $\overline{\Delta\gamma} \ll \gamma_0$. Nous obtenons alors:

$$E_p = eL\gamma_0 + e \int_0^L \gamma_0 \frac{1}{2} \left(\frac{d\Delta X}{dy}\right)^2 dy + e \int_0^L \frac{\partial \Delta\gamma(X_0, y)}{\partial x} \Delta X(y) dy. \quad (4-4)$$

L'interprétation physique de l'équation (4-4) est simple: le premier terme du second membre représente l'énergie de la paroi non déformée, le second l'accroissement d'énergie dû à l'augmentation de surface de la paroi lors de sa déformation, et le dernier terme est la variation d'énergie liée aux fluctuations spatiales de tension de paroi.

Le problème variationnel à résoudre est maintenant la minimisation de la fonctionnelle énergie E_p par rapport à la fonction $\Delta X(y)$. Ceci est aisément réalisé par transformation de Fourier (Néel, 1946a; les détails du calcul sont donnés dans l'appendice 1).

Nous obtenons alors le résultat remarquable suivant: le déplacement d'une paroi déformable dans un milieu inhomogène est équivalent au déplacement d'une *paroi rigide fictive*, dans un potentiel unidimensionnel effectif $E_p^{eff}(X_0)$. Le calcul de minimisation de l'énergie permet de montrer que le potentiel effectif $E_p^{eff}(X_0)$ peut s'écrire sous la forme suivante:

$$E_p^{eff}(X_0) = eL\gamma_0 \left(1 + \left(\frac{\overline{\Delta\gamma}}{\gamma_0} \right)^2 f(X_0/\xi, \xi/L) \right). \quad (4-5)$$

Le premier terme du second membre de l'équation (4-5) représente l'énergie de la paroi non déformée; le second terme (négatif) représente le gain énergétique dû à la déformation de la paroi. La fonction f , sans dimension, ne dépend que des grandeurs sans dimension X_0/ξ et ξ/L ; ce sont les variations d'amplitude de f qui déterminent le champ de propagation de la paroi. Il n'est pas possible de déterminer explicitement f ; nous allons donc nous baser sur des arguments physiques qualitatifs pour déterminer les caractéristiques importantes de $E_p^{eff}(X_0)$: longueur caractéristique et amplitude de variation.

La distance moyenne entre deux "bosses" de la tension de paroi $\gamma(x,y)$ est de l'ordre de ξ . Donc, lorsqu'elle se déplace sur une distance de l'ordre de ξ , la paroi rencontre environ L/ξ de ces "bosses"; on comprend aisément qu'il est énergétiquement plus favorable pour la paroi de franchir successivement toutes ces "bosses", plutôt que plusieurs à la fois, de sorte qu'à chaque "bosse" de la tension de paroi $\gamma(x,y)$ correspond un maximum du potentiel effectif $E_p^{eff}(X_0)$. La distance séparant deux maxima du potentiel effectif est donc de l'ordre de ξ^2/L . Considérons maintenant la "hauteur" des variations d'amplitude de $E_p^{eff}(X_0)$; lorsque la paroi franchit une "bosse", son énergie varie de $e\xi \overline{\Delta\gamma} \alpha$, où $e\xi$ est la surface apparente de la "bosse", $\overline{\Delta\gamma}$ sa "hauteur", et α un facteur qui prend en compte la réduction d'énergie due aux déformations de la paroi. Cette expression montre que l'amplitude des variations ne dépend pas de la longueur L de la paroi; l'amplitude des variations de la fonction f doit donc être de l'ordre de ξ/L .

Pour résumer, nous pouvons donc évaluer l'amplitude des variations du potentiel effectif $E_p^{eff}(X_0)$ à environ $e\xi \overline{\Delta\gamma}^2/\gamma_0$, la distance entre deux maxima successifs étant de l'ordre de ξ^2/L .

Il est important de remarquer que l'existence d'une paroi plane fictive équivalente se déplaçant dans un potentiel unidimensionnel, trop souvent admise sans justification, est un résultat non trivial, et repose en particulier sur l'hypothèse $\overline{\Delta\gamma} \ll \gamma_0$ qui permet la linéarisation du problème. Dans le cas où les fluctuations relatives de l'énergie de paroi sont importantes, cette réduction à un problème unidimensionnel n'est pas possible. La théorie de Néel permet de définir dans quels cas on peut ramener le problème à celui d'une paroi se déplaçant dans un potentiel effectif unidimensionnel, et de préciser les caractéristiques du potentiel effectif.

En faisant l'hypothèse que le potentiel effectif est représenté convena-

blement par une succession d'arcs de paraboles (Néel, 1942), nous pouvons alors évaluer l'ordre de grandeur du champ de propagation moyen $\overline{H_p}$:

$$\overline{H_p} \approx 2 \frac{\overline{\Delta\gamma^2}}{\gamma_0 \xi M_s}, \quad (4-5)$$

ce résultat étant à multiplier par $(\xi/\delta_0)^2$, si la largeur de paroi δ_0 est plus grande que la longueur de corrélation ξ .

4-4.2. Rôle de la rugosité

Nous avons jusqu'ici étudié la propagation des parois en présence de fluctuations de l'énergie de paroi, sans préciser le mécanisme physique à l'origine de ces fluctuations. Nous allons maintenant évaluer le champ de propagation des parois dans les films ultraminces de cobalt sur or, en attribuant à la rugosité du film l'origine de l'hystérésis magnétique (Seiden, 1988).

Nous admettrons que la constante de raideur d'échange A conserve la même valeur que dans le matériau massif: $A = 2,1 \times 10^{-6} \text{ erg.cm}^{-1}$ (Döring, 1966). La constante d'anisotropie peut s'écrire $K = 2\pi M_s^2 (e_c/e)$, où $e_c = 11 \text{ \AA}$ est l'épaisseur critique en dessous de laquelle l'axe de facile aimantation est perpendiculaire au plan; en effet, en négligeant la contribution de volume (faible par rapport à celle de surface), la constante d'anisotropie est proportionnelle à $1/e$, et est égale à l'énergie démagnétisante $2\pi M_s^2$ lorsque $e = e_c$. La largeur de paroi est très faible (respectivement 60 Å et 120 Å, pour des épaisseurs de 3 Å et 10 Å), à cause de la forte anisotropie. La rugosité sera discutée en détail au chapitre 9. L'amplitude σ des fluctuations d'épaisseur est d'environ 3 Å, et la longueur de corrélation ξ de la rugosité est de l'ordre de 200 Å.

Lorsque l'épaisseur fluctue de σ , deux effets contribuent à modifier l'énergie de la paroi:

- (i) la variation de superficie;
- (ii) la variation d'énergie par unité de surface, liée à la variation de constante d'anisotropie.

On peut définir la tension effective de paroi par

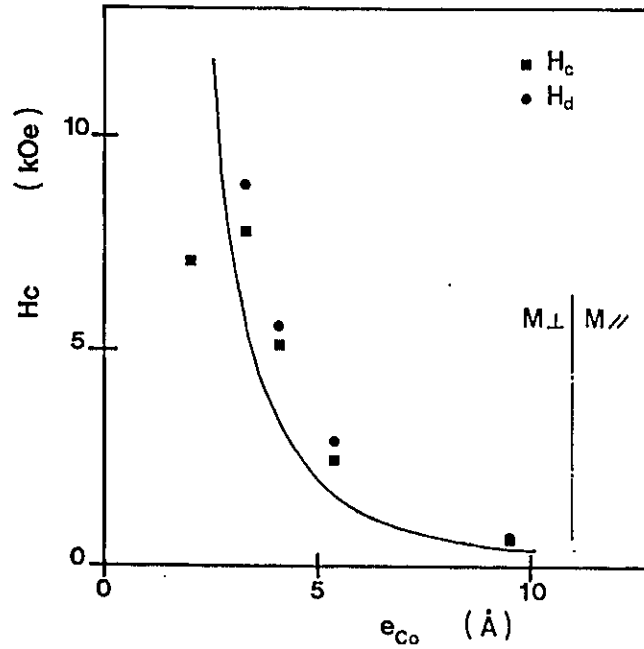


Figure 4-16: Comparaison du champ de propagation H_p calculé théoriquement, et des valeurs expérimentales du champ coercitif H_c et du champ de désaimantation H_d , en fonction de l'épaisseur de Co.

$$\gamma_{eff} = \frac{e \gamma}{e} \quad (4-6)$$

γ_{eff} est la tension de paroi équivalente pour un film d'épaisseur uniforme e , égale à l'épaisseur moyenne du film; γ_{eff} inclus les deux causes de variation d'énergie de la paroi énumérées ci-dessus. On se ramène ainsi au cas discuté au paragraphe 4-4.1, d'une paroi se déplaçant dans un film d'épaisseur uniforme, mais dont la tension de paroi fluctue spatialement.

La tension effective de paroi peut alors s'écrire

$$\gamma_{eff} = \frac{4}{e} \sqrt{2\pi M_s^2 \lambda e_c e} = \sqrt{\frac{e}{e}} \gamma_0 \quad (4-7)$$

de sorte que la fluctuation $\Delta\gamma$ de tension effective de paroi vaut:

$$\overline{\Delta r} \approx r_0 \frac{\sigma}{2e} \quad (4-8)$$

Nous obtenons finalement l'expression du champ de propagation:

$$\overline{H_p} \approx \frac{2 \sigma^2 \sqrt{2\pi A e_c}}{e^{5/2} \xi} \quad (4-9)$$

où e désigne désormais l'épaisseur moyenne du film. La dépendance est en $1/e^{5/2}$, alors qu'expérimentalement, le champ coercitif H_c et le *champ de désaimantation* varient plutôt comme $1/e^2$. En fait, comme le montre la figure 4-16, l'accord entre la théorie et l'expérience peut être considéré comme satisfaisant, compte tenu de la connaissance très sommaire que l'on a des grandeurs caractérisant le problème. Le résultat exprimé par la relation (4-9) explique clairement le rôle de la rugosité dans la forte augmentation du champ coercitif aux faibles épaisseurs. Remarquons que pour les très faibles épaisseurs ($\approx 2 \text{ \AA}$), les résultats expérimentaux diffèrent notablement des prévisions théoriques. Il n'y a rien d'étonnant à cela: le film n'étant vraisemblablement plus continu à ces épaisseurs, le modèle théorique développé ci-dessus perd sa signification et sa validité.

CHAPITRE 5

EVOLUTION THERMIQUE DE L'AIMANTATION
ET DU CYCLE D'HYSTERESIS
DES FILMS DE COBALT SUR OR

5-1. Variation thermique de l'aimantation spontanée et de l'aimantation rémanente

Alors que pour les études à basse température (chapitre précédent), les films peuvent être considérés comme étant dans leur état fondamental, il n'en est plus de même à température ambiante. Les états excités de basse énergie (ondes de spins) jouent alors un rôle essentiel, et sont responsables, notamment, de la diminution de l'aimantation spontanée. Dans le cas des films ultraminces (voir discussion au chapitre 1), la théorie des ondes de spins montre que l'anisotropie intervient de façon cruciale dans la variation thermique de l'aimantation spontanée.

L'étude par magnétométrie de l'aimantation spontanée pose un certain nombre de problèmes, d'ordre fondamental aussi bien que d'ordre pratique. En effet, en champ nul, un échantillon macroscopique est en général décomposé en plusieurs domaines de sorte que l'aimantation moyenne est nulle ou très faible; pour atteindre la saturation "technique" de l'échantillon, il faut lui appliquer un champ pouvant aller jusqu'à plusieurs dizaines de kOe. L'aimantation n'est plus alors égale à l'aimantation spontanée en champ nul à cause de la *susceptibilité en champ fort* du matériau; l'aimantation à l'intérieur d'un domaine peut s'écrire:

$$M(T, H) = M_s(T) + \Delta M(T, H) , \quad (5-1)$$

où $M_s(T)$ est l'aimantation spontanée (celle qui nous intéresse), et $\Delta M(T, H)$ la variation d'aimantation induite par le champ magnétique. Les principales contributions à $\Delta M(T, H)$ sont (Wohlfarth, 1980):

- (i) le paramagnétisme de Pauli des électrons d ;
- (ii) le paramagnétisme orbital de Van Vleck;
- (iii) la susceptibilité due aux ondes de spins;

Pour un ferromagnétique fort, la susceptibilité de Pauli est nulle; pour un

ferromagnétique faible, elle est de l'ordre de 1 à 2×10^{-5} uem cgs; la susceptibilité de Van Vleck est d'environ 2 à 5×10^{-5} uem cgs. La variation d'aimantation correspondant aux contributions (i) et (ii) est donc de l'ordre de 5 G dans un champ de 50 kOe et dépend peu de la température. La contribution due aux ondes de spins est nulle à $T=0$, mais augmente rapidement avec la température.

Le point important, pour que l'on puisse obtenir $M_s(T)$ par extrapolation linéaire à champ nul à partir de mesures de $M(T, H)$ effectuées en champ fort, est que $\Delta M(T, H)$ dépende linéairement de H . Ceci est bien vérifié par les contributions de Pauli et de Van Vleck, ainsi que pour la contribution d'ondes de spins à basse température. Par contre, lorsque l'on s'approche de la température de Curie, la contribution des ondes de spins devient fortement non linéaire par rapport à H , et il n'est plus possible d'obtenir $M_s(T)$ par extrapolation linéaire à champ nul.

Par ailleurs se posent toujours les problèmes liés à la soustraction du signal du support, évoqués au chapitre précédent.

Nous avons observé (cf. chapitre 4) que, à basse température et pour les échantillons les plus minces, l'aimantation rémanente perpendiculaire est très proche de l'aimantation à saturation, de sorte que l'échantillon peut être considéré comme étant constitué d'un seul domaine, en champ nul. S'il reste dans l'état monodomaine lorsque la température augmente, la variation thermique de l'aimantation rémanente doit suivre celle de l'aimantation spontanée; si au contraire, sous l'effet du réchauffement, le film se décompose en plusieurs domaines, l'aimantation rémanente décroîtra plus rapidement que l'aimantation spontanée. La comparaison de l'évolution thermique de l'aimantation spontanée et de l'aimantation rémanente renseigne donc sur la stabilité thermique de la structure monodomaine.

Nous avons mesuré sur nos échantillons la variation thermique entre 10 et 300 K de l'aimantation spontanée $M_s(T)$ et de l'aimantation rémanente $M_r(T)$. Notons que $M_r(T)$ est obtenu en mesurant, en champ nul, la décroissance thermique de l'aimantation rémanente acquise à basse température. Ce n'est donc pas à proprement parler l'aimantation rémanente, mesurée à la température T ; le terme d'*aimantation thermorémanente* serait plus approprié s'il ne désignait déjà un autre phénomène; faute de mieux, nous conserverons pour $M_r(T)$, par abus de langage, l'appellation d'"aimantation rémanente".

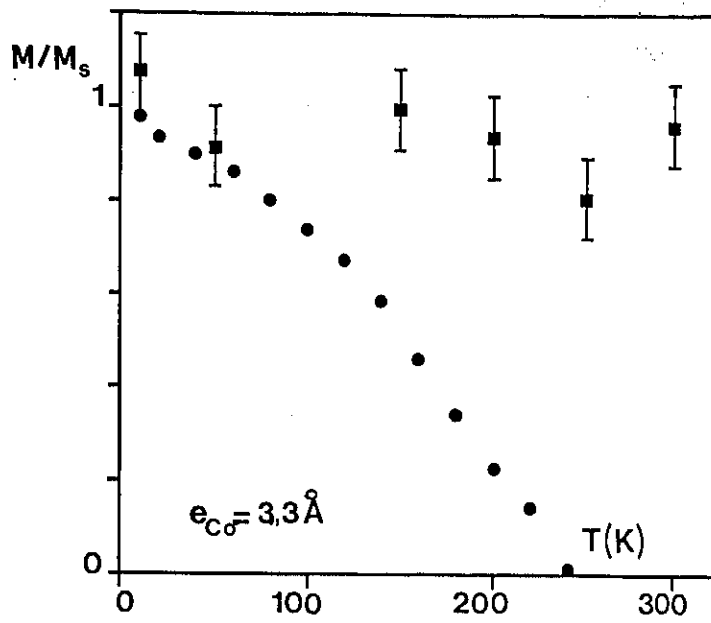


Figure 5-1: Variation thermique de l'aimantation spontanée (carrés), et de l'aimantation rémanente (cercles), d'un film de cobalt sur or de 3,3 Å d'épaisseur.

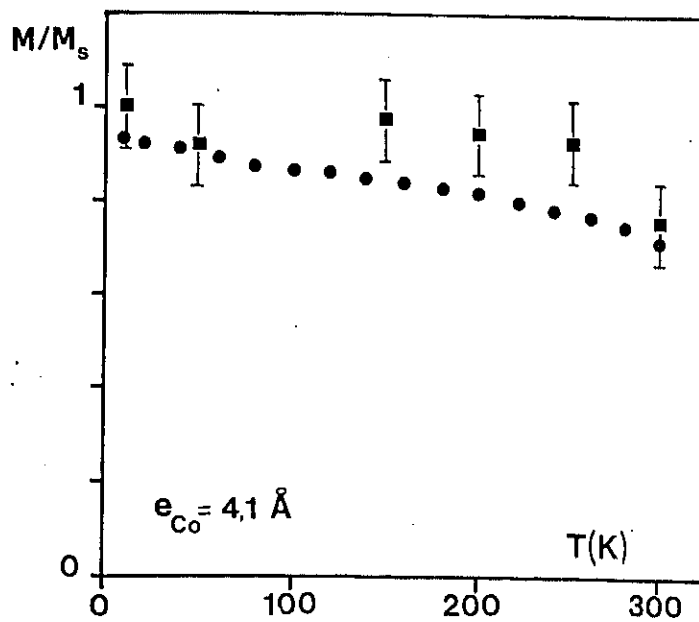


Figure 5-2: *Idem* fig. 5-2, pour un film de 4,1 Å d'épaisseur.

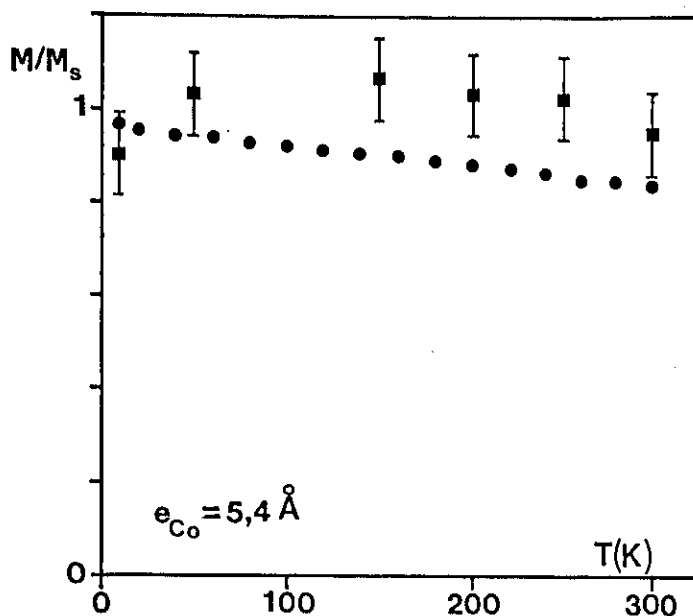


Figure 5-3: *Idem* fig. 5-1, pour un film de 5,4 Å d'épaisseur.

Les figures 5-1 à 5-3 représentent les résultats des mesures de $M_s(T)$ et $M_r(T)$ pour des épaisseurs de cobalt valant respectivement 3,3 Å, 4,1 Å et 5,4 Å. La précision des mesures de $M_s(T)$ n'est pas très bonne, à cause du problème de soustraction du signal de support discuté au chapitre 4; en revanche, celle des mesures de $M_r(T)$ est bien meilleure, car ces mesures sont effectuées en champ nul.

En dépit de leur dispersion, les courbes $M_s(T)$ montrent clairement que la variation d'aimantation spontanée entre $T=10$ K et $T=300$ K est relativement faible même pour un échantillon aussi mince que 3,3 Å. Par ailleurs, il n'apparaît pas de différence notable entre les courbes $M_s(T)$ des différents échantillons.

Il est intéressant de comparer ces résultats aux prédictions de la théorie des ondes de spins. Corciovei (1963) a dérivé une expression analytique pour la variation thermique de $M_s(T)$ de films ferromagnétiques cs (001), présentant une anisotropie uniaxiale du type "axe facile". J'ai appliqué ses résultats aux films de cobalt ayant leur axe de facile aimantation perpendiculaire au plan (c'est-à-dire d'épaisseur comprise entre 1 et 5 plans atomiques); étant donné que ce calcul concerne des films cs (001), et que nous avons affaire à des films hc (0001), j'ai "renormalisé" la valeur de l'in-

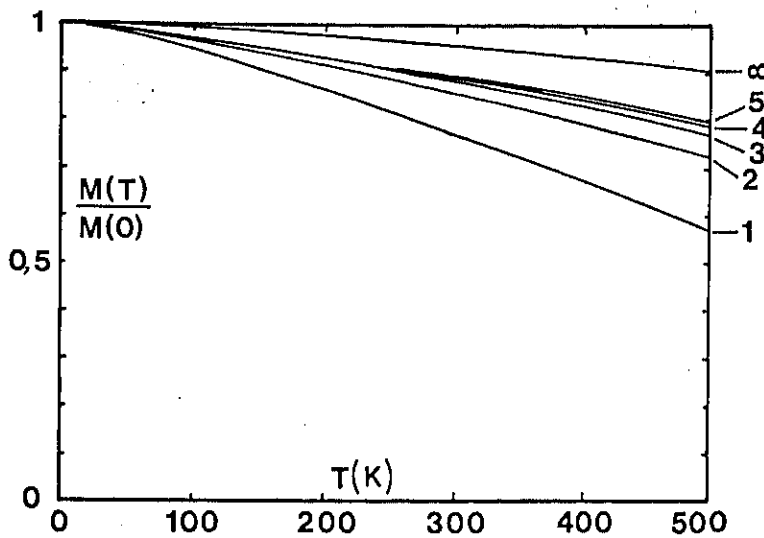


Figure 5-4: Variation thermique de l'aimantation spontanée calculée à l'aide de la théorie des ondes de spins (d'après Corciovei, 1963), pour des films de cobalt de 1 à 5 plans atomiques d'épaisseur, et pour le cobalt massif.

teraction d'échange, de façon à retrouver la loi de décroissance de l'aimantation du cobalt massif, à la limite des épaisseurs infinies. Pour déterminer l'énergie d'anisotropie, j'ai extrapolé aux très faibles épaisseurs les résultats obtenus par résonance ferromagnétique pour $e > 12$ Å.

La figure 5-4 représente la variation thermique de l'aimantation spontanée $M_s(T)$ calculée pour des films composés de 1 à 5 plans atomiques, et pour le cobalt massif. Nous constatons qu'à température ambiante, même pour un film monoatomique, la variation d'aimantation par rapport à l'état fondamental ne dépasse pas 20%. Entre 2 et 5 plans atomiques, elle ne dépend que faiblement de l'épaisseur. La décroissance relativement lente de l'aimantation spontanée avec la température, pour des épaisseurs aussi faibles, est due à la forte anisotropie uniaxiale: une anisotropie uniaxiale de type "axe facile" joue un rôle équivalent à celui d'un champ magnétique, et ouvre une bande interdite au bas du spectre d'énergie des ondes de spins, défavorisant ainsi leur excitation thermique (cf. chapitre 1).

La variation de $M_s(T)$ avec l'épaisseur résulte de deux mécanismes compétitifs:

- (i) pour une valeur donnée de l'anisotropie, $M_s(T)$ doit décroître avec T d'autant plus vite que l'épaisseur est faible;

(ii) l'anisotropie (qui s'oppose à la décroissance de l'aimantation spontanée avec le température) augmente comme $1/e$ lorsque l'épaisseur diminue (cf. chapitre 3).

La compensation de ces deux mécanismes explique pourquoi les courbes $M_s(T)$ dépendent peu de l'épaisseur.

La comparaison des résultats théoriques aux résultats expérimentaux est assez difficile, à cause de la dispersion de ces derniers. Néanmoins, en ordre de grandeur, l'accord est satisfaisant, et confirme le rôle crucial joué par l'anisotropie dans la stabilisation de l'aimantation vis-à-vis des ondes de spins. Ces résultats montrent bien qu'une décroissance rapide de l'aimantation et une température de Curie basse ne sont pas des propriétés générales des ferromagnétiques bidimensionnels.

Si l'on examine maintenant la variation thermique de l'aimantation rémanente $M_r(T)$, on constate que pour les films de 5,4 Å et 4,1 Å, elle est peu différente de celle de l'aimantation spontanée $M_s(T)$, alors que pour le film de 3,3 Å, $M_r(T)$ décroît très rapidement avec la température, et s'annule vers 240 K. Compte tenu du fait que l'aimantation spontanée de cet échantillon est, à cette température, encore relativement proche de sa valeur maximale, la disparition de l'aimantation rémanente du film de 3,3 Å au dessus de 240 K indique non pas la transition vers l'état paramagnétique, mais que le temps de stabilité de l'aimantation rémanente (état métastable) devient inférieur au temps caractéristique de la mesure (de l'ordre d'une heure).

Ces arguments seront réexaminés et discutés au paragraphe 5-3, lors de la discussion générale des résultats expérimentaux.

5-2. Etude de la dépendance temporelle de l'aimantation

Une des caractéristiques essentielles des matériaux ferromagnétiques (ou ferrimagnétiques) est l'existence d'un *cycle d'hystérésis*. Cela signifie que ces matériaux ont la possibilité de se trouver dans un état métastable (état d'équilibre local, mais d'énergie libre supérieure à celle de l'état d'équilibre thermodynamique). Ceci est rendu possible par l'existence de *barrières énergétiques* défavorisant le retour à l'équilibre thermodynamique. Cette propriété essentielle est à l'origine d'applications technologiques aussi importantes que les aimants permanents et l'enregistrement d'information sur

des supports magnétiques. Or le second principe de la thermodynamique nous enseigne que pour tout système, donc en particulier aussi pour les corps ferromagnétiques, la tendance est au retour vers l'état d'équilibre thermodynamique.

Ce retour vers l'état d'équilibre thermodynamique donne lieu, dans les matériaux ferromagnétiques, au phénomène de *trainage thermique* (appelé aussi trainage de Jordan ou trainage par fluctuations), lequel a été identifié par Preisach (1935), puis par Street et Wooley (1949) et Néel (1950) comme étant dû au franchissement par activation thermique des barrières énergétiques séparant l'état métastable de l'état d'équilibre thermodynamique. Il s'agit donc, comme l'a fait remarquer Néel (1951), d'un phénomène général affectant tous les matériaux ferromagnétiques.

Dans les corps ferromagnétiques macroscopiques, on n'observe souvent pas de trainage magnétique; la raison en est que la hauteur des barrières énergétiques est telle que les temps caractéristiques peuvent être gigantesques à température ambiante, rendant le trainage inobservable dans les expériences courantes. A l'inverse, dans les fines particules ferromagnétiques, l'effet des fluctuations thermiques est très important, et donne lieu, entre autres, aux phénomènes de superparamagnétisme, et d'aimantation thermorémanente (Néel, 1949), ce dernier cas étant remarquable par ses applications en paléomagnétisme.

Dès lors, on peut se poser la question de savoir quel est le rôle joué par les fluctuations thermiques lorsque l'une *seulement* des dimensions de l'échantillon devient microscopique (les autres restant macroscopiques), c'est-à-dire pour un film ultramince.

Nous avons donc entrepris l'étude d'une éventuelle dépendance temporelle de l'aimantation, dans les films ultraminces de cobalt sur or.

5-2.1. Un nouveau type de magnétomètre: le piézomagnétomètre ou magnétomètre à gradient alternatif

L'étude de phénomènes liés à la dépendance temporelle de l'aimantation dans des films ultraminces requiert deux conditions:

- (i) il faut disposer d'un magnétomètre suffisamment sensible pour mesurer l'aimantation de films composés de seulement quelques plans atomiques;
- (ii) l'autre condition est de pouvoir réaliser les mesures et faire va-

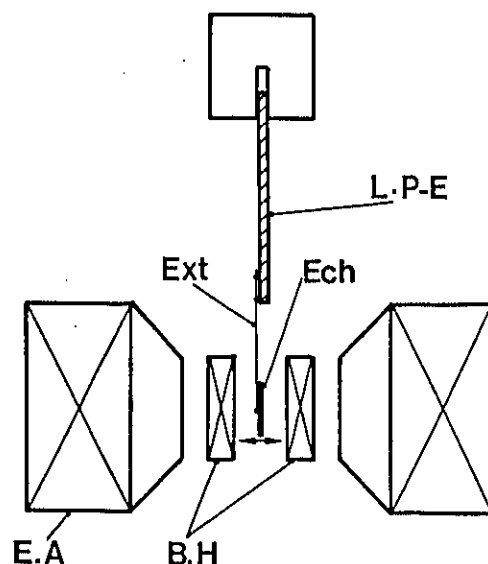


Figure 5-5: Schéma du principe de fonctionnement du piézomagnétomètre; E.A.: électroaimant; B.H.: bobines de Helmholtz en inverse; L.P.-E.: lame piezoélectrique; Ech.: échantillon; Ext.: extension.

rier le champ aussi rapidement que possible, afin d'avoir une bonne résolution temporelle.

Les magnétomètres à SQUID répondent au critère de sensibilité mais pas à celui de rapidité. En effet, il y a sur ces magnétomètres un écran supraconducteur destiné à stabiliser le champ magnétique; pour changer la valeur du champ magnétique, il faut réchauffer puis laisser refroidir cet écran, de sorte que le changement de champ dure au minimum 15 à 20 minutes. Par ailleurs, la mesure proprement dite dure environ 5 minutes.

Au contraire, les classiques magnétomètres à échantillon vibrant mesurent l'aimantation en temps réel (temps de mesure de l'ordre d'un dixième de seconde) et le champ (créé par un électroaimant standard) peut être modifié rapidement; en revanche, ils ne sont en général pas suffisamment sensibles pour étudier des films ultraminces.

Très récemment, un nouveau type de magnétomètre a été mis au point (Flanders, 1988), qui combine les avantages du magnétomètre à SQUID (extrême sensibilité) et du magnétomètre à échantillon vibrant (rapidité de mesure et de variation du champ): le piézomagnétomètre ou magnétomètre à gradient alternatif.

Le principe de fonctionnement de ce magnétomètre est schématisé sur la figure 5-5. L'élément central est une lame piézoélectrique, fixée à une extrémité; cette lame délivre entre ses deux faces une différence de potentiel proportionnelle à sa déflexion, c'est-à-dire au déplacement de l'extrémité libre. Sur l'extrémité libre de la lame est fixée une extension portant l'échantillon à étudier, lui-même se trouvant dans l'entrefer d'un électroaimant. L'ensemble lame-extension-échantillon constitue un oscillateur mécanique de quelques centaines de Hz de fréquence de résonance, et de facteur de qualité de l'ordre de 100. De part et d'autre de l'échantillon, sont placées deux bobines de Helmholtz, alimentées en courant alternatif et bobinées en sens inverse, produisant au niveau de l'échantillon un gradient alternatif de champ magnétique. L'oscillateur mécanique subit une force alternative proportionnelle au moment magnétique créé dans l'échantillon par le champ statique de l'électroaimant, et oscille avec une amplitude proportionnelle à la force d'excitation. Il apparaît donc entre les faces de la lame piézoélectrique une différence de potentiel proportionnelle au moment magnétique de l'échantillon, que l'on mesure en détection synchrone à la fréquence d'excitation des bobines de Helmholtz. En travaillant à la fréquence de résonance de l'oscillateur mécanique, on peut ainsi atteindre une sensibilité en moment magnétique de l'ordre de quelques 10^{-8} uem cgs.

Nous avons utilisé, pour effectuer les mesures décrites ci-dessous, un tel magnétomètre, fonctionnant à température ambiante, construit par G. Bayreuther à l'Université de Regensburg. Toutes les mesures présentées sont réalisées, pour chaque échantillon, dans sa direction de facile aimantation, c'est-à-dire parallèlement ou perpendiculairement au plan, respectivement pour les échantillons d'épaisseurs supérieures et inférieures à 11 Å.

5-2.2. Mise en évidence et étude du traînage magnétique

Nous avons mesuré le cycle d'hystérésis d'échantillons d'épaisseurs inférieures à 11 Å, pour différentes vitesses de balayage du champ magnétique. La figure 5-6 représente les cycles mesurés pour un film de 8,1 Å d'épaisseur, à des vitesses de balayage du champ valant respectivement 3,7 et 82 Oe.s⁻¹. La forme quasi rectangulaire, et la valeur importante de l'aimantation rémanente apportent une preuve supplémentaire de la présence d'une forte anisotropie s'opposant au champ démagnétisant. La pente négative

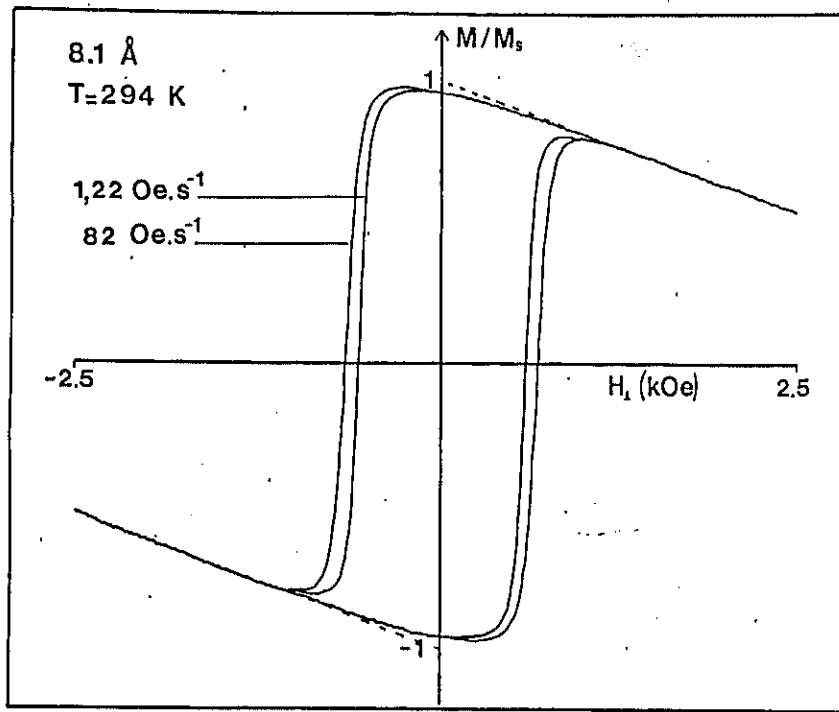


Figure 5-6: Cycles d'hystérésis en champ perpendiculaire mesurés à température ambiante à l'aide du piézomagnétomètre sur un film de cobalt sur or de 8,1 Å d'épaisseur, à des vitesses de balayage du champ valant respectivement 1,22 et 82 Oe.s⁻¹.

Tableau 5-1

\dot{H} (Oe.s ⁻¹)	179	82,0	33,3	17,2	8,33	3,70	1,22
H_c (Oe)	671	651	630	599	589	558	548

des cycles est due au diamagnétisme du support. Le résultat important de ces mesures est la dépendance du cycle par rapport à la vitesse de balayage du champ: le cycle est d'autant plus étroit que cette dernière est faible. Le tableau 5-1 donne les valeurs du champ coercitif mesurées pour ce film (8,1 Å), en fonction de la vitesse de balayage \dot{H} du champ magnétique.

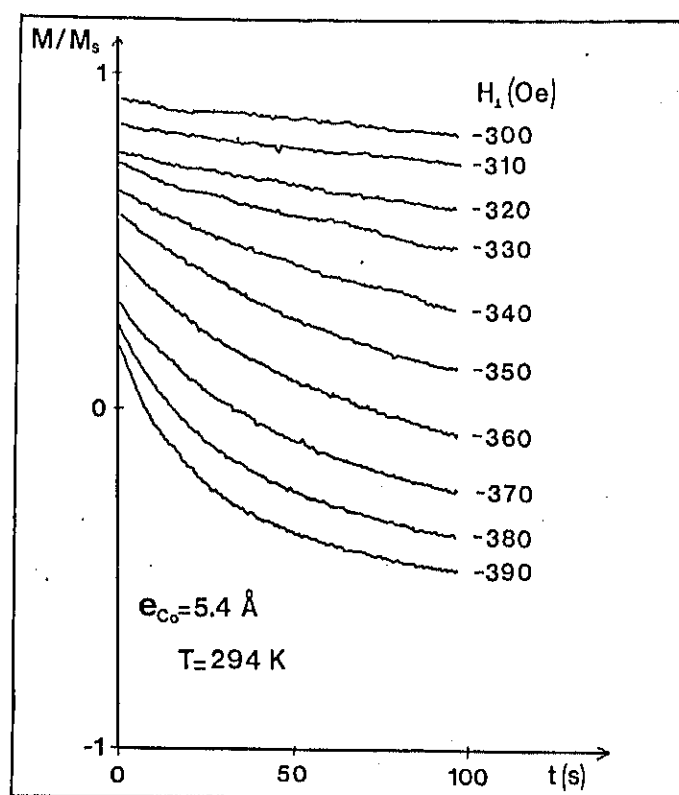


Figure 5-7: Variation temporelle de l'aimantation d'un film de 5,4 Å d'épaisseur, après saturation en champ positif, pour diverses valeurs du champ négatif appliqué.

Un comportement analogue est observé également pour les échantillons de 4,1 Å, 5,4 Å et 9,5 Å d'épaisseur. Ces résultats montrent sans ambiguïté le rôle prépondérant joué par le facteur temps, et mettent en évidence l'existence du phénomène de trainage magnétique dans nos échantillons.

Afin d'étudier en détail le trainage magnétique, nous avons réalisé pour chaque échantillon l'expérience suivante: après avoir été préalablement saturé en champ positif, le film est soumis à un champ négatif constant; la variation temporelle de l'aimantation est alors enregistrée. Cette mesure est effectuée pour diverses valeurs du champ négatif appliqué. La figure 5-7 représente la variation temporelle de l'aimantation ainsi observée, sur un film de 5,4 Å d'épaisseur, pour différentes valeurs du champ. Il apparaît

que le traînage de l'aimantation est particulièrement important, et que le taux de décroissance de l'aimantation augmente avec la valeur absolue du champ.

Ces observations constituent, à ma connaissance, la première mise en évidence expérimentale du phénomène de traînage magnétique, dans des films constitués de seulement quelques plans atomiques (Bayreuther et col., 1989a,b).

5-2.3. Analyse et discussion des mesures de traînage magnétique

Le traînage de l'aimantation observé, à la fois directement, et via la dépendance temporelle des cycles d'hystérésis, est-il dû uniquement aux fluctuations thermiques?

Il existe un autre mécanisme de traînage magnétique: le traînage de diffusion (Snoek, 1938; Néel, 1951, 1952). Le traînage de diffusion trouve son origine dans la stabilisation des parois due à la diffusion d'atomes d'impuretés; le temps de stabilisation des parois est déterminé par le temps nécessaire à la migration des atomes d'impuretés. L'énergie nécessaire pour déplacer une paroi augmente ainsi avec le temps; il en résulte un traînage de l'aimantation. Ce mécanisme ne peut expliquer la dépendance temporelle observée pour les cycles d'hystérésis, car il devrait conduire à l'effet opposé, à savoir une augmentation du champ coercitif lorsque la vitesse de balayage du champ magnétique diminue! En effet, plus le cycle est décrit lentement, plus les parois ont le temps de se stabiliser, et plus le champ nécessaire pour les déplacer irréversiblement doit être élevé; ceci est contraire à nos observations.

Nous pouvons donc raisonnablement supposer que le traînage observé est bien dû à l'activation thermique du franchissement des barrières énergétiques séparant l'état d'équilibre métastable de l'état d'équilibre thermodynamique.

Si toutes les barrières d'énergie ont la même hauteur E_a , le taux de variation de l'aimantation doit alors être donné par

$$\frac{dM(t)}{dt} = - \frac{M(t) - M(\infty)}{\tau} , \quad (5-1)$$

où $M(\infty)$ est l'aimantation de l'état d'équilibre, et τ un temps de relaxation vérifiant une loi d'activation d'Arrhenius:

$$\tau = \tau_0 \exp(E_a / k_B T) . \quad (5-2)$$

La variation de l'aimantation suit alors une loi exponentielle:

$$M(t) = M(\infty) + [M(t=0) - M(\infty)] \exp(-t/\tau) . \quad (5-3)$$

Lorsqu'au contraire, il y a une distribution d'énergies d'activation de largeur ΔE_a , le problème de la dépendance temporelle de l'aimantation est plus compliqué. Les calculs détaillés sont présentés dans l'appendice 1. La variation temporelle de l'aimantation dépend du rapport $\Delta E_a / k_B T$. Si ΔE_a est faible devant $k_B T$, la loi de variation de l'aimantation est quasi exponentielle; si au contraire ΔE_a est grand devant $k_B T$, elle est quasi logarithmique. Dans tous les cas, le début de la relaxation de l'aimantation suit une loi linéaire, avec un temps de relaxation correspondant à une énergie d'activation moyenne.

Afin d'étudier la loi de relaxation de l'aimantation, nous avons enregistré, pendant une durée d'environ une heure, la variation de l'aimantation du film de 8,1 Å, dans un champ de -500 Oe, après saturation préalable en champ positif. L'analyse de la dépendance temporelle de l'aimantation requiert la connaissance de l'aimantation $M(\infty)$ dans l'état d'équilibre thermodynamique. Celle-ci peut être obtenue, en principe, par une mesure d'aimantation anhystérétique (en appliquant un champ alternatif d'amplitude initiale supérieure au champ coercitif, que l'on réduit ensuite progressivement jusqu'à zéro). Dans notre cas, l'aimantation dans l'état d'équilibre n'est pas connue. Nous devons faire alors une hypothèse sur sa valeur; le plus simple est de supposer qu'elle vaut respectivement $+M_s$ ou $-M_s$ selon que le champ est positif ou négatif. Cette hypothèse est probablement bien vérifiée au voisinage du champ coercitif, compte tenu de la forme rectangulaire des cycles d'hystérésis.

Dans le but de mettre en évidence une éventuelle dépendance quasi exponentielle ou quasi logarithmique, j'ai tracé, respectivement, sur les figu-

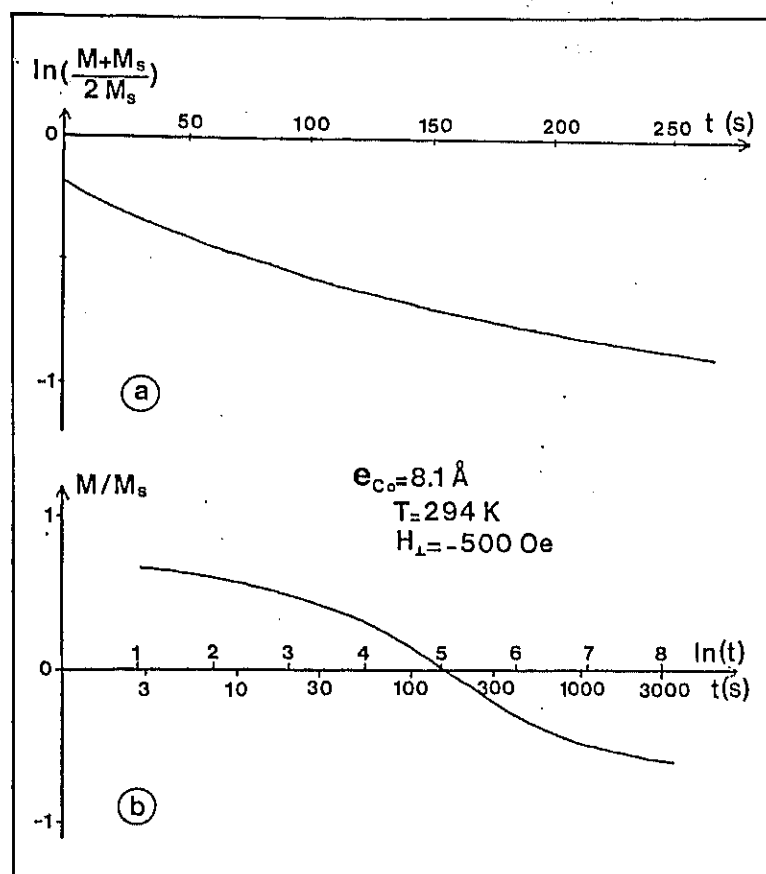


Figure 5-8: Variation de l'aimantation d'un film de 8,1 Å, dans un champ de -500 Oe, après saturation en champ positif; (a): $\ln((M+M_s)/M_s)$ en fonction de t ; (b): M/M_s en fonction de $\ln(t)$.

res 5-8a et 5-8b, la variation par rapport à t de $\ln[(M+M_s)/M_s]$, et celle de M/M_s par rapport à $\ln(t)$. Nous pouvons constater que la variation temporelle de l'aimantation n'est ni exponentielle, ni logarithmique; ceci est dû au fait que ΔE_a n'est ni très grand, ni très petit devant $k_B T$. Une estimation du rapport $\Delta E_a / k_B T$ peut être obtenue en mesurant la pente maximale de M/M_s en fonction de $\ln(t)$ (cf. apendice 1, paragraphe A1-2.3); il est de l'ordre de 6 dans le cas présent.

Nous avons donc choisi, pour analyser les mesures de traînage magnétique,

de mesurer le temps de relaxation donné par la pente initiale de la décroissance de l'aimantation. Pour tous les échantillons étudiés, le logarithme du temps de relaxation varie linéairement par rapport au champ magnétique; la figure 5-9 montre la courbe obtenue pour le film de 8,1 Å d'épaisseur.

Ce résultat indique que, pourvu que $\ln(\tau_0)$ varie avec le champ beaucoup plus lentement que E_a (ceci est en général très bien vérifié), l'énergie d'activation varie linéairement avec le champ magnétique, et peut s'écrire (pour $H < 0$):

$$E_a = V_B M_s (H + H_a); \quad (5-4)$$

V_B est un volume introduit pour raison d'homogénéité, et H_a un champ magnétique; la signification physique de ces deux grandeurs apparaîtra plus loin.

Pour interpréter ce comportement, il faut se pencher sur le mécanisme de renversement de l'aimantation. De même qu'au chapitre précédent, j'envisagerai, *a priori*, le modèle de particules magnétiquement indépendantes, et celui de mouvements de parois dans un film magnétiquement continu.

Considérons tout d'abord le modèle des particules magnétiquement indépendantes de volume V , et de champ d'anisotropie effectif H_K : si l'aimantation se renverse suivant le mode uniforme, l'énergie d'activation vaut (Néel, 1949)

$$E_a(H) = V M_s \frac{(H + H_K)^2}{2 H_K} \approx V M_s \left(\frac{H_K}{2} + H \right), \quad (5-5)$$

pour $|H| \ll H_K$. L'énergie d'activation est bien de la forme (5-4), avec $H_a = H_K/2$ et $V_B = V$.

Dans l'hypothèse de mouvements de parois, nous avons montré au chapitre précédent, que tout se passe comme si celles-ci restaient rigide-ment planes, et se déplaçaient dans un potentiel unidimensionnel effectif. En champ nul, l'énergie d'activation vaut

$$E_a(H=0) \approx 2M_s \frac{H_p}{2} eL \frac{\xi^2}{2L}; \quad (5-6)$$

dans la formule (5-6), $2M_s$ est la variation d'aimantation dans une zone tra-

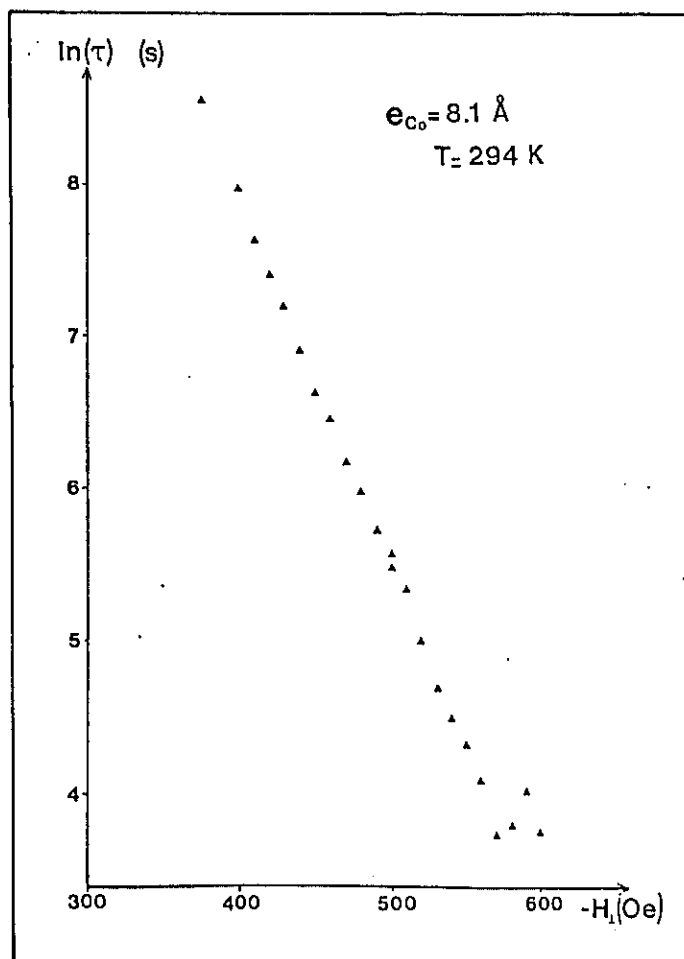


Figure 5-9: Variation de $\ln(\tau(H))$ en fonction de H , pour le film de 8,1 Å d'épaisseur.

versée par une paroi, $\overline{H_p}$ est le champ qu'il faut appliquer pour permettre la propagation irréversible de la paroi, eL est la surface de la paroi plane équivalente, et $E^2/2L$ est la distance entre le point d'équilibre local initial de la paroi et le sommet de la barrière d'énergie. Sous l'effet d'un champ (négatif dans le cas présent), l'énergie d'activation est abaissée; en faisant l'approximation que le potentiel effectif dans lequel se déplace la paroi est constitué d'arcs de paraboles (Néel, 1942), on montre aisément qu'elle vaut alors

$$E_a(H) \approx e\mathcal{E}^2 M_s \left(\frac{\overline{H_p}}{2} + H \right), \quad (5-7)$$

pour $|H| \ll \overline{H_p}$. Dans ce cas encore, l'énergie d'activation est de la forme (5-4), avec $V_B = e\mathcal{E}^2$ et $H_a = \overline{H_p}/2$.

Il apparaît que, pour les deux mécanismes envisagés (particules magnétiquement indépendantes, ou mouvements de parois à travers un film magnétiquement continu), l'énergie d'activation varie (en première approximation) linéairement avec le champ. Dans les deux cas, le champ H_a , que l'on peut convenir d'appeler *champ d'activation*, est relié au champ qu'il faut appliquer pour renverser l'aimantation en l'absence de processus d'activation, c'est-à-dire au champ coercitif H_c (ou plus vraisemblablement au *champ de désaimantation* H_d) à basse température. Dans les deux cas également, le volume V_B correspond au volume dans lequel l'aimantation passe de $+M_s$ à $-M_s$ lors d'un processus élémentaire d'activation thermique; $2M_s V_B$ est l'amplitude des variations discontinues irréversibles ("sauts" de Barkhausen) du moment magnétique de l'échantillon; pour cette raison, nous appellerons V_B *volume de Barkhausen*.

Pour chaque échantillon, la droite représentant $\ln(\tau)$ en fonction de H nous procure deux informations:

- (i) le rapport $V_B M_s / k_B T$, donné par la pente de la droite; connaissant $k_B T$ et admettant, pour M_s , la valeur du cobalt massif, nous obtenons ainsi une mesure du *volume de Barkhausen* V_B .
- (ii) le temps de relaxation en champ nul $\tau(H=0)$, obtenu à partir de l'extrapolation à champ nul de la droite; il s'écrit:

$$\tau(H=0) = \tau_0 \exp\left(\frac{V_B M_s H_a}{k_B T}\right); \quad (5-8)$$

connaissant le rapport $V_B M_s / k_B T$, $\tau(H=0)$ dépend essentiellement du temps τ_0 et du *champ d'activation* H_a . Il n'est malheureusement pas possible de mesurer séparément ces deux quantités; en effet, il faudrait pour cela effectuer des mesures à diverses températures, ce que ne permet pas le magnétomètre utilisé.

Tableau 5-2

épaisseur (Å)	3,3	4,1	5,4	8,1	9,5	22,2
axe facile	⊥	⊥	⊥	⊥	⊥	∥
$\tau(H=0)$	< 1 mn	5,5 h	11,4 ans	1,3 ans	14 jours	9,3 mois
I_B (A)	?	400	480	300	280	310

Afin de pouvoir comparer les volumes de Barkhausen d'échantillons d'épaisseurs différentes, nous définissons la longueur de Barkhausen l_B (l'extension latérale correspondante):

$$l_B = \sqrt{\frac{V_B}{e}} \quad (5-9)$$

Le tableau 5-2 rassemble les valeurs de $\tau(H=0)$ et de l_B mesurées pour les divers échantillons.

Il est remarquable de constater que $\tau(H=0)$ peut varier par de nombreux ordres de grandeurs entre deux échantillons d'épaisseurs très voisines, alors que la longueur de Barkhausen l_B varie au contraire très peu dans toute la gamme d'épaisseur étudiée.

Comme le montre l'équation (5-8), $\tau(H=0)$ est déterminé par deux grandeurs *a priori* non connues: τ_0 et le champ d'activation H_a . L'ordre de grandeur de τ_0 est généralement de 10^{-12} à 10^{-10} s (Néel, 1951; Uehara et Barbara, 1986); à partir de ces valeurs et des valeurs mesurées de $\tau(H=0)$, nous pouvons évaluer un ordre de grandeur du champ d'activation H_a . Conformément au modèle de traînage thermique discuté précédemment, $2H_a$ doit être comparable au champ coercitif H_c et au champ de désaimantation H_d mesurés à basse température. Les valeurs correspondantes sont données dans le tableau 5-3.

Les ordres de grandeurs sont effectivement comparables (\approx quelques kOe); il serait déraisonnable d'espérer un accord meilleur, compte tenu de la simplicité de cette interprétation.

La très forte variation de $\tau(H=0)$ d'un échantillon à l'autre s'explique

Tableau 5-3

épaisseur (Å)	3,3	4,1	5,4	9,5
H_c à $T=10$ K (kOe)	7,8	5,1	2,45	0,57
H_d à $T=5$ K (kOe)	8,9	5,6	2,9	0,65
$2H_a$ à $T=294$ K (kOe)	?	2,9 - 3,3	2,0 - 2,2	2,9 - 3,2

Tableau 5-4

l_B (Å)	300	350	400	450	500
$\tau(H=0)$	80×10^{-3} s	5 mn	49 jours	6400 ans	10^9 ans

par sa dépendance exponentielle par rapport à E_a . De faibles variations des paramètres du problème (H_a , l_B) sont capables d'entraîner une variation de plusieurs ordres de grandeurs pour $\tau(H=0)$: le tableau 5-4 donne les valeurs de $\tau(H=0)$ calculées à température ambiante, pour un film de 5 Å d'épaisseur, en prenant $\tau_0 = 10^{-11}$ s et $H_a = 1,5$ kOe, pour des valeurs de l_B variant de 300 à 500 Å.

Ces résultats éloquentes expliquent l'importante dispersion des mesures de $\tau(H=0)$ rapportées dans le tableau 5-3.

La faible variation de l_B d'un échantillon à l'autre suggère qu'il s'agit bien d'un paramètre pertinent caractérisant le problème, indépendamment de l'épaisseur. Revenons sur les deux hypothèses formulées ci-dessus pour le mécanisme de renversement de l'aimantation. Nous avons vu que les deux modèles prédisent une dépendance linéaire de l'énergie d'activation par rapport au champ H ; par contre la signification physique de la *longueur de Barkhausen* l_B diffère d'un mécanisme à l'autre.

Dans l'hypothèse de particules magnétiquement découplées renversant individuellement leur aimantation, l_B représente la dimension latérale moyenne de ces particules; il paraît raisonnable de supposer que ces "grains magnétiques" hypothétiques coïncident avec les "grains cristallographiques" formant le film de cobalt; l_B doit alors correspondre au diamètre moyen des "grains cristallographiques", soit environ 2000 Å (cf chapitre 2).

Si au contraire, le renversement de l'aimantation se produit *via* des mou-

vements de parois à travers un film magnétiquement continu, l'origine de l'hystérésis étant attribuée à la rugosité (cf chapitre précédent), la longueur de Barkhausen l_p doit correspondre à la longueur de corrélation de la rugosité ξ , laquelle est de l'ordre de 200 Å.

La valeur mesurée pour la longueur de Barkhausen, de l'ordre de 300 à 400 Å pour l'ensemble des échantillons, est assez voisine de la longueur de corrélation de la rugosité ξ (≈ 200 Å), et nettement plus petite que le diamètre moyen des grains de cobalt (≈ 2000 Å). Ceci suggère fortement, en accord avec les résultats obtenus à basse température, que le renversement de l'aimantation se produit effectivement par déplacement de parois séparant des domaines d'aimantations opposées.

5-2.4. Discussion de la dépendance temporelle des cycles d'hystérésis

La dépendance temporelle observée sur les cycles d'hystérésis à température ambiante (fig. 5-6), nous a permis de mettre en évidence l'existence du phénomène de trainage magnétique dans les films ultraminces de cobalt sur or.

Ayant étudié de façon détaillée les lois régissant la dépendance temporelle de l'aimantation en champ constant, je vais maintenant m'intéresser de plus près à son comportement en champ variable, et discuter les cycles d'hystérésis mesurés en champ perpendiculaire sur le film de 8,1 Å d'épaisseur.

Examinons tout d'abord le cas où $\Delta E_a \ll k_B T$, c'est-à-dire où l'on peut considérer qu'il n'y qu'un seul temps de relaxation:

$$\tau(H) = \tau_0 \exp\left(\frac{E_a(H)}{k_B T}\right), \quad (5-10)$$

avec

$$E_a(H) = V_B M_s (H_a + H), \quad (5-11)$$

pour $H < 0$. De même qu'au paragraphe précédent, nous ferons l'hypothèse que, dans l'état d'équilibre thermodynamique, l'aimantation vaut respectivement

$+M_s$ ou $-M_s$, selon que le champ est positif ou négatif; cette approximation n'est pas valable au voisinage de $H=0$, par contre elle semble tout à fait raisonnable lorsque l'on s'approche du champ coercitif.

Le cycle d'hystérésis est décrit à une vitesse de variation du champ \dot{H} ; nous nous intéressons à la partie du cycle au cours de laquelle le champ varie de 0 à $-H_{max}$, l'échantillon ayant été préalablement aimanté à saturation en champ positif. L'aimantation satisfait à l'équation différentielle suivante:

$$\frac{dM}{dH} = - \frac{M+M_s}{\dot{H} \tau(H)}, \quad (5-12)$$

dont on tire:

$$\frac{d(M+M_s)}{M+M_s} = - \frac{dH}{\dot{H} \tau(H=0) \exp\left(\frac{V_B M_s H}{k_B T}\right)}. \quad (5-13)$$

Cette équation se résoud aisément, et l'on obtient:

$$M(H) = M_s \left\{ 2 \exp\left[\frac{k_B T}{V_B M_s \dot{H}} \left(\frac{1}{\tau(H=0)} - \frac{1}{\tau(H)} \right) \right] - 1 \right\}. \quad (5-14)$$

L'aimantation s'annule pour $H=-H_c$, donné par

$$H_c = \frac{k_B T}{V_B M_s} \left[\ln(\dot{H}) + \ln\left(\frac{V_B M_s}{k_B T} \tau(H=0) \ln(2) \right) \right]; \quad (5-15)$$

le champ coercitif doit donc varier linéairement par rapport à $\ln(\dot{H})$. La figure 5-10 montre que c'est effectivement le cas, pour le film de 8,1 Å étudié. La mesure de la pente et de la position de la droite permettent une détermination de V_B et de $\ln(\tau(H=0))$, indépendamment de celle obtenue au paragraphe précédent par l'étude de $\tau(H)$. Nous obtenons $I_B=380$ Å et $\ln(\tau(H=0))=25$, contre $I_B=300$ Å et $\ln(\tau(H=0))=17,5$ au paragraphe précédent. La différence entre les valeurs obtenues peut s'expliquer par l'existence d'une distribution d'énergies d'activation ΔE_a ; nous avons estimé

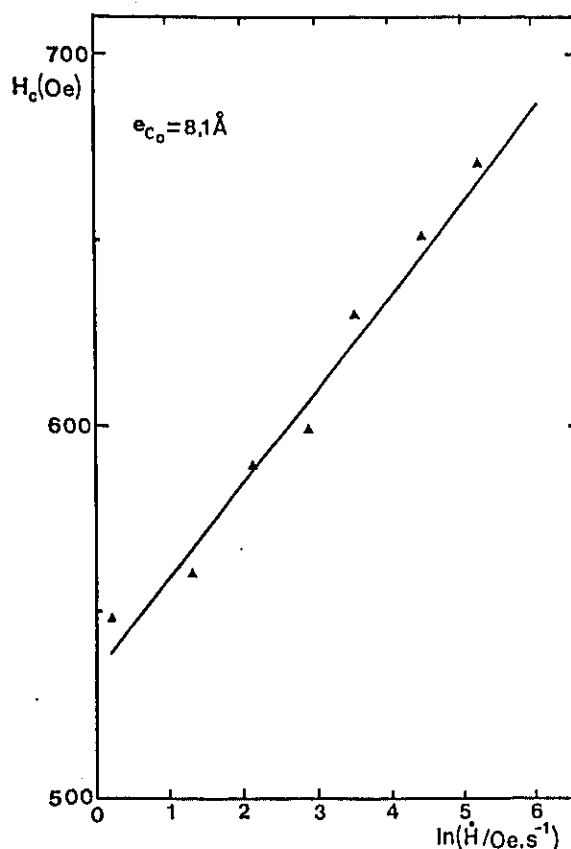


Figure 5-10: Variation de H_c en fonction de $\ln(\dot{H})$, pour le film de 8,1 Å d'épaisseur.

$\Delta E_a / k_B T \approx 6$ pour $|H|=500$ Oe, par l'étude de la décroissance de l'aimantation en champ constant. Cette distribution d'énergie d'activation a pour conséquence que le temps de relaxation effectif augmente au fur et à mesure du renversement de l'aimantation; il est donc naturel que le temps de relaxation $\tau(H=0)$ mesuré au début de la relaxation soit plus faible que celui obtenu à partir de mesures du champ coercitif.

J'ai représenté sur les figures 5-11 et 5-12, les cycles d'hystérésis mesurés sur le film de 8,1 Å d'épaisseur, respectivement pour $\dot{H}=1,22$ Oe.s⁻¹ et $\dot{H}=82,0$ Oe.s⁻¹, ainsi que les cycles calculés théoriquement à partir de la formule (5-14), et en prenant $\ln(\tau(H=0))=25$, $I_B=380$ A, et:

- (a) $\Delta E_a = 0$;
- (b) une distribution rectangulaire d'énergies d'activation, de largeur $\Delta E_a / k_B T = 6$;
- (c) une distribution Gaussienne de largeur $\Delta E_a / k_B T = 6$;
- (d) une distribution Lorentzienne de largeur $\Delta E_a / k_B T = 4$.

Les cycles (b), (c) et (d) ont été calculés en intégrant numériquement l'é-

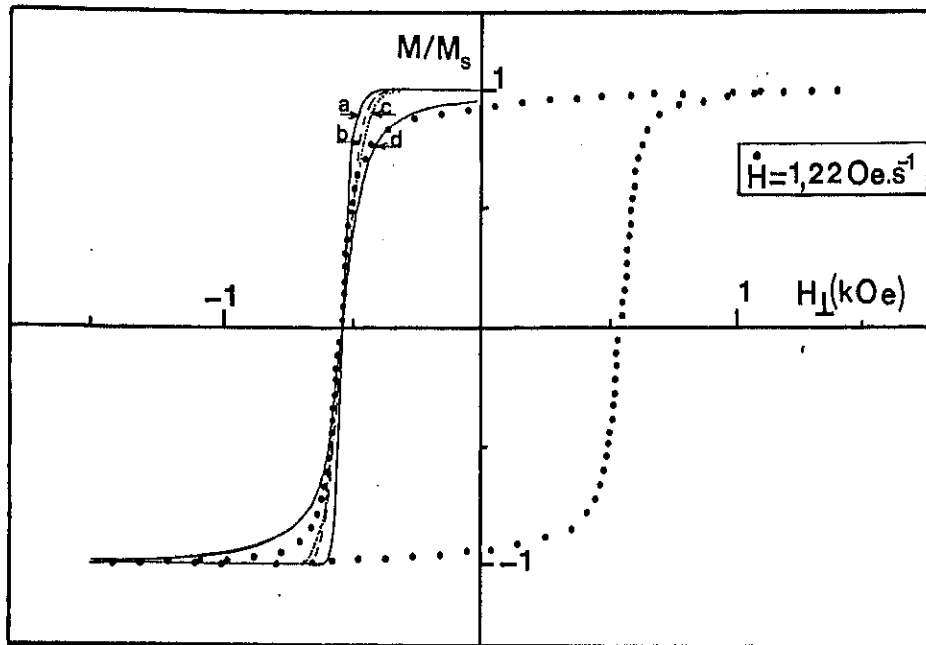


Figure 5-11: Cycle d'hystérésis expérimental, et cycles calculés théoriquement, pour le film de 8,1 Å, avec une vitesse de balayage du champ de $1,22 \text{ Oe}\cdot\text{s}^{-1}$; (a): $\Delta E_a = 0$; (b): distribution rectangulaire d'énergies d'activation de largeur $\Delta E_a/k_B T=6$; (c): distribution Gaussienne de largeur $\Delta E_a/k_B T=6$; (d): distribution Lorentzienne de largeur $\Delta E_a/k_B T=4$.

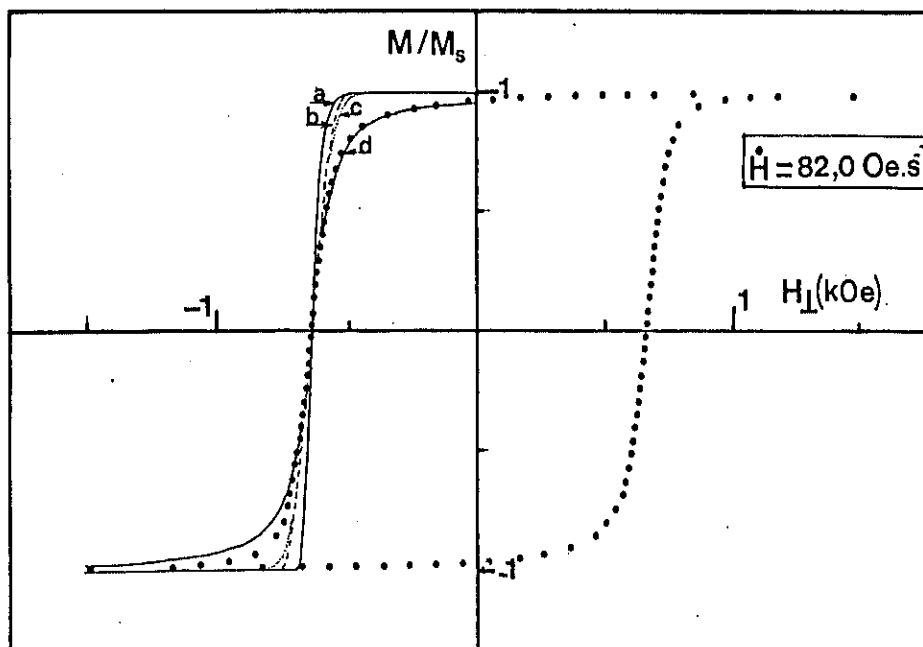


Figure 5-12: *Idem* fig. 5-11, pour une vitesse de balayage du champ de $82 \text{ Oe}\cdot\text{s}^{-1}$.

quation (5-14) sur la distribution d'énergies d'activation.

Les cycles calculés avec une seule énergie d'activation (a) donnent une variation beaucoup trop rapide de l'aimantation; les cycles obtenus en prenant une distribution rectangulaire (b) ou Gaussienne (c) reproduisent assez bien les cycles expérimentaux au voisinage du champ coercitif, mais assez mal par ailleurs. Le meilleur accord est obtenu en prenant une distribution Lorentzienne d'énergies d'activation. Ceci montre que la distribution réelle est de forme assez étalée, et non de forme compacte comme le sont les distributions Gaussienne et rectangulaire. Il est tout à fait satisfaisant d'observer que le même modèle et les mêmes paramètres permettent de reproduire fidèlement des cycles d'hystérésis aussi différents que ceux mesurés pour $\dot{H}=1,22 \text{ Oe.s}^{-1}$ et $\dot{H}=82 \text{ Oe.s}^{-1}$, respectivement.

Les résultats ci-dessus montrent toute l'information qui peut être obtenue à partir de l'analyse quantitative de la dépendance temporelle des cycles d'hystérésis: *volume de Barkhausen*, forme et largeur de la distribution d'énergies d'activation.

5-3. Discussion générale du comportement magnétique des films de cobalt sur or

Les mesures de cycles d'hystérésis à basse température, montrant que l'axe de facile aimantation est perpendiculaire au plan du film pour des épaisseurs inférieures à 11 Å, ont confirmé les résultats des expériences de résonance ferromagnétique, et l'existence d'une forte anisotropie uniaxiale de surface s'opposant au champ démagnétisant.

De même, la faible variation de l'aimantation spontanée, entre le zéro absolu et la température ambiante, est en accord qualitatif avec la théorie des ondes de spins, en prenant en compte l'anisotropie magnétique.

Je me suis tout particulièrement intéressé aux propriétés "techniques" de l'aimantation des films ayant leur axe facile perpendiculaire au plan. Les principales observations expérimentales sont les suivantes:

- (i) à basse température, le champ coercitif H_c et le *champ de désaimantation* H_d augmentent de façon spectaculaire aux très faibles épaisseurs (jusqu'à 8 kOe).
- (ii) alors que pour des films d'épaisseurs supérieures à 4 Å, la dépendance thermique de l'aimantation rémanente est très voisine de celle de

l'aimantation spontanée, elle s'en démarque très nettement pour le film de 3,3 Å d'épaisseur, et s'annule vers 240 K; il en résulte l'absence d'hystérésis à température ambiante pour cet échantillon, dont la température de Curie est pourtant bien supérieure à 300 K.

(iii) les cycles d'hystérésis mesurés à température ambiante à l'aide du piézomagnétomètre révèlent la présence d'un trainage magnétique important.

L'étude du trainage magnétique a permis de l'interpréter comme étant dû au passage thermiquement activé d'un état métastable à l'état d'équilibre thermodynamique. L'analyse des résultats montre que l'énergie d'activation décroît linéairement avec le champ; nous pouvons ainsi définir et mesurer un *volume de Barkhausen*, correspondant aux variations irréversibles du moment magnétique.

La présence de trainage magnétique nous permet d'expliquer pourquoi le film de 3,3 Å ne présente pas d'hystérésis à température ambiante, alors que son aimantation spontanée est encore relativement proche de celle de l'état fondamental: dans ce film, l'énergie d'activation est telle que, à température ambiante le temps de relaxation de l'aimantation $\tau(H=0)$ est beaucoup plus faible que le temps caractéristique de mesure; le retour à l'état d'équilibre thermodynamique est trop rapide pour permettre l'observation de l'hystérésis. Cette interprétation a été confirmée par des études récentes par effet Faraday (Ferré, 1989) réalisées au Laboratoire de Physique des Solides (Orsay): à une vitesse de balayage du champ de 32000 Oe.s^{-1} , l'échantillon de 3,3 Å présente de l'hystérésis, avec un champ coercitif de 100 Oe environ.

L'ensemble des résultats expérimentaux, aussi bien à basse température (augmentation du champ coercitif aux très faibles épaisseurs), qu'à température ambiante (trainage magnétique), est bien expliqué par un modèle de parois de Bloch se propageant à travers le film; cette interprétation met en lumière le rôle prépondérant joué par la rugosité, et son influence sur les propriétés magnétiques "techniques" des films ultraminesces.

La compréhension de l'influence des caractéristiques structurales à l'échelle mésoscopique sur les propriétés "techniques" (coercivité, remanence, etc...) des films ultraminesces est de la plus haute importance, dans l'optique de leurs applications technologiques éventuelles; en particulier, s'ouvre la perspective, par un contrôle adéquat des paramètres de rugosité (en-

tre autres), de réaliser des matériaux ayant des caractéristiques ajustables en vue d'utilisations spécifiques.

D'un point de vue plus fondamental, l'existence de domaines et parois dans des films ultraminces est un sujet assez controversé; notamment, Yafet et Gyorgy (1988) ont calculé la structure des domaines et parois dans des films ultraminces d'axe facile perpendiculaire. Ils trouvent ainsi que lorsque l'énergie d'anisotropie est plus de 1,4 fois supérieure à l'énergie démagnétisante (comme c'est le cas pour nos films de cobalt), la largeur des domaines est supérieure à 1 μm , de sorte que les échantillons doivent être monodomains. Signalons néanmoins que ces auteurs considèrent des films parfaits (sans rugosité), et que le gain d'énergie magnétostatique dû à la décomposition en domaines est extrêmement faible. Il est donc vraisemblable que la rugosité, à cause des champs de dispersion importants auxquels elle donne lieu, joue un rôle essentiel de stabilisation de la structure en domaines d'un film réel; sa prise en compte dans un calcul plus réaliste constitue une tâche ardue. Sur le plan expérimental, l'observation de domaines dans des films de quelques plans atomiques d'épaisseur, reste un objectif encore non atteint, en dépit du développement de techniques originales (cf. chapitre 1).

La conclusion à laquelle nous arrivons au terme de la discussion ci-dessus, si elle ne fournit pas de preuve à proprement parler, apporte de fortes présomptions en faveur de l'existence des domaines et des parois.

SECONDE PARTIE:

ETUDES THEORIQUES

CHAPITRE 6

THEORIE DE NEEL DE L'ANISOTROPIE
MAGNETOCRISTALLINE DE SURFACE

Dans les chapitres précédents, j'ai discuté l'*anisotropie magnétique de surface* sans me préoccuper de son origine physique. Nous pouvons définir de façon opérationnelle cette *anisotropie magnétique de surface* en disant qu'elle donne lieu à une dépendance linéaire de l'anisotropie totale par rapport à $1/e$. Cette définition correspond à la situation expérimentale, mais ne préjuge pas de la nature du phénomène. Dans ce chapitre et les suivants, nous allons envisager plusieurs mécanismes donnant lieu à une dépendance en $1/e$ de l'anisotropie magnétique totale, et discuter leurs ordres de grandeur afin de savoir s'ils peuvent ou non expliquer les résultats expérimentaux.

Le mécanisme envisagé par Néel (1954) est le suivant: à la surface d'un cristal cubique, la symétrie est abaissée par rapport au volume. Dans le développement de l'énergie magnétocristalline (énergie de couplage entre le réseau et les moments magnétiques) apparaissent alors des termes d'ordre deux (interdits dans le volume), donnant lieu à une énergie d'*anisotropie magnétique de surface*. Nous conviendrons d'appeler ce mécanisme *anisotropie magnétocristalline de surface*. Néel a rapproché quantitativement cette anisotropie due à la rupture de symétrie à la surface de celle produite par une déformation du réseau cristallin et liée à la magnétostriction. Pour cela, il a proposé un modèle phénoménologique du couplage magnétocristallin décrivant à la fois la magnétostriction et l'*anisotropie magnétocristalline de surface*. En utilisant les constantes de magnétostriction, connues expérimentalement, il a pu prédire l'ordre de grandeur de l'*anisotropie magnétocristalline de surface*.

Outre son importance historique, le modèle de Néel donne une interprétation extrêmement simple et claire de l'origine physique du phénomène, ainsi que des ordres de grandeurs corrects, simplement sur la base d'arguments de symétrie.

Je présenterai tout d'abord le modèle de Néel tel qu'il l'a proposé pour les cristaux cubiques, puis j'en donnerai une généralisation aux cristaux hexagonaux, que j'appliquerai au cas du cobalt.

6-1. Présentation de la théorie de Néel

Il s'agit d'un modèle semi-classique d'interactions pseudo-dipolaires entre moments localisés. L'énergie de couplage magnétocristallin entre les sites i et j est supposée être de la forme

$$\begin{aligned}
 w_{ij} &= g(r_{ij}) \left[\left(\vec{S}_i \cdot \vec{u}_{ij} \right) \left(\vec{S}_j \cdot \vec{u}_{ij} \right) - \frac{1}{3} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \right] \\
 &= g(r_{ij}) \left[\cos^2 \varphi_{ij} - \frac{1}{3} \right]
 \end{aligned}
 \tag{6-1}$$

où r_{ij} est la distance entre les atomes i et j , φ_{ij} est l'angle polaire entre la direction \vec{u}_{ij} et la direction commune des spins \vec{S}_i et \vec{S}_j , lesquels sont supposés maintenus parallèles par l'interaction d'échange.

- (i) la fonction $g(r)$ doit décroître très rapidement, de sorte que l'on peut négliger les interactions autres qu'entre premiers voisins.
- (ii) on peut développer la fonction $g(r)$ autour de la distance interatomique d'équilibre r_0 , en ne gardant que les termes d'ordre le plus bas, soit: $g(r) = 1 + m \delta r$.

L'énergie magnétocristalline par atome s'écrit alors

$$W_{MC} = \frac{1}{2} \sum_{\tilde{X}} w_{ij}
 \tag{6-2}$$

où \tilde{X} symbolise une somme restreinte aux premiers voisins.

En présence d'une déformation de tenseur $\epsilon_{\mu\nu}$, r_{ij} et φ_{ij} n'ont plus leur valeur d'équilibre, et il apparaît une énergie magnétocristalline non nulle. Dans tout ce chapitre, ainsi que dans l'Appendice 2, les indices grecs μ, ν , etc, symbolisent les axes cartésiens (1, 2, 3); pour les calculs concernant les matériaux massifs (notamment pour la magnétostriction), j'utiliserai les axes cristallins usuels, par contre, pour le calcul de l'anisotropie de surface, l'axe 3 représentera la normale au plan. La minimisation de la somme de l'énergie magnétocristalline et de l'énergie élastique par rapport à la déformation permet le calcul des constantes d'anisotropie λ_{100} et λ_{111} , en fonction des paramètres l et m et des constantes d'élasticité. Le calcul de la magnétostriction, assez lourd, est reporté à l'Appendice 2. A partir des valeurs expérimentales des λ et des constantes d'élasticité, Néel tire celle des paramètres l et m .

L'énergie magnétocristalline par atome en l'absence de déformation du réseau s'écrit, à un terme constant près

$$w_A = \frac{1}{2} \sum_{\mu, \nu} I \cos^2 \varphi = \frac{1}{2} I \sum_{\mu, \nu} \tilde{S}_{\mu\nu} \beta_\mu \beta_{\nu'} \quad (6-3)$$

où les β_μ sont les cosinus directeurs de l'aimantation, et avec la notation

$$\tilde{S}_{\mu\nu} = \sum_{\alpha} \alpha_\mu \alpha_{\nu'} \quad (6-4)$$

les α_μ étant les cosinus directeurs d'une liaison entre premiers voisins. Dans le volume d'un cristal cubique, seuls les $\tilde{S}_{\mu\mu}$ sont non nuls; ils sont tous égaux de sorte que l'anisotropie est nulle (à l'ordre 2; l'anisotropie d'ordre 4 provient d'interactions pseudo-quadrupolaires, négligées ici). Il n'en est pas de même à une surface, à cause de l'absence de premiers voisins au dessus de la surface. Par exemple, pour une surface (001) ou (111) d'un cristal cfc, l'énergie d'anisotropie par atome de surface s'écrit

$$w_A = \frac{1}{2} I \sin^2 \theta, \quad (6-5)$$

θ étant l'angle entre l'aimantation et la normale au plan. L'ordre de grandeur calculé par Néel pour l'*anisotropie magnétocristalline de surface* est de 0.1 à 1 erg.cm⁻². Il s'agit d'une anisotropie considérable, puisqu'elle correspond à des champs d'anisotropie allant jusqu'à 80 kOe. Par ailleurs, la magnétostriction pouvant être aussi bien positive que négative, il en est de même pour l'*anisotropie magnétocristalline de surface*; il n'existe pas d'argument de symétrie permettant d'en prévoir le signe d'une manière générale.

6-2. Extension de la théorie de Néel aux systèmes hexagonaux

La théorie de Néel, présentée ci-dessus, n'a été appliquée jusqu'à maintenant qu'à des matériaux cubiques. Dans ce paragraphe, je montre comment on peut la généraliser à des systèmes hexagonaux. Le principe du calcul reste le même que dans les matériaux cubiques, néanmoins, le calcul de la magnétostriction est beaucoup plus délicat, à cause d'une symétrie plus complexe.

Afin de ne pas alourdir inutilement le texte, j'ai reporté le détail des calculs dans l'Appendice 2.

En particulier, par rapport au cas cubique, il y a cette fois quatre constantes de magnétostriction ($\lambda_A, \lambda_B, \lambda_C, \lambda_D$) au lieu de deux ($\lambda_{100}, \lambda_{111}$). Nous devons donc résoudre un système de quatre équations à deux inconnues (l et m). Il n'y a en général pas de solution à un tel système. Pour lever cette difficulté, je propose de chercher les paramètres l et m qui donnent le meilleur ajustement des constantes de magnétostriction. Ce procédé est tout-à-fait conforme à l'esprit de Néel: *"Notre procédé n'a pas la rigueur formelle de la méthode classique mais nous précisons bien qu'il n'est pas dans notre intention d'étudier la magnétostriction et l'anisotropie pour elles-mêmes, mais simplement d'évaluer la grandeur de certaines forces interatomiques qui entrent en jeu dans ces phénomènes"*. La façon la plus simple de procéder consiste à utiliser la méthode des moindres carrés; j'ai montré dans l'Appendice 2 que le problème se ramène alors à la résolution d'un système de deux équations à deux inconnues. A partir des valeurs expérimentales des constantes de magnétostriction (Hubert et coll., 1969) et d'élasticité (Mac Skimin, 1963) du cobalt, j'obtiens $l=6.1 \times 10^{-16}$ erg et $r_0 m=1.14 \times 10^{-16}$ erg. Les valeurs expérimentales et calculées des constantes de magnétostriction du cobalt sont données dans le tableau 6-1.

Tableau 6-1

	valeurs expérimentales	valeurs calculées
λ_A	-50×10^{-6}	-74×10^{-6}
λ_B	-107×10^{-6}	18×10^{-6}
λ_C	126×10^{-6}	65×10^{-6}
λ_D	-105×10^{-6}	-105×10^{-6}

Excepté pour λ_B , on obtient un accord qualitatif correct entre les valeurs expérimentales et calculées. Il est toutefois évident qu'avec seulement deux paramètres phénoménologiques, on ne peut pas donner une description très détaillée de la magnétostriction. En prenant en compte des voisins

plus éloignés et en introduisant plus de paramètres, nous pourrions ajuster mieux les résultats, mais nous perdriions alors l'avantage le plus important du modèle de Néel, qui est sa simplicité.

Considérons maintenant l'anisotropie magnétocristalline d'un atome situé à l'intérieur du cristal, ou à une surface (0001). Dans les deux cas elle s'écrit:

$$w_A = \frac{1}{2} I \left(\tilde{S}_{11} - \tilde{S}_{33} \right) \sin^2 \vartheta. \quad (6-9)$$

Pour un atome du volume, en prenant le rapport c/a idéal de la structure hexagonale compacte: $c/a = \sqrt{8/3} \approx 1,633$, on obtient une anisotropie égale à zéro. Ceci est dû au fait que la structure hc a localement une symétrie quasi-sphérique. En tenant compte de la valeur réelle $c/a \approx 1,622$, nous obtenons une anisotropie de volume non nulle, quoique environ 100 fois plus faible qu'à la surface; finalement, les constantes d'anisotropie par unité de volume et de surface valent respectivement:

$$\left. \begin{aligned} K_V^{Néel} &= 1,2 \times 10^6 \text{ erg.cm}^{-3}, \\ K_S^{Néel} &= 0,84 \text{ erg.cm}^{-2}. \end{aligned} \right\} \quad (6-10)$$

Pour $K_V^{Néel}$, l'accord avec la valeur expérimentale ($4 \times 10^6 \text{ erg.cm}^{-3}$ à température ambiante) est assez mauvais. Mais ce n'est pas très étonnant, car nous venons de montrer que les contributions des premiers voisins à $K_V^{Néel}$ se compensent presque totalement; dans ce cas, l'approximation des premiers voisins n'est vraisemblablement plus valable. Par contre, la valeur de $K_S^{Néel}$ est très proche des résultats expérimentaux (respectivement 0,7 et 0,5 erg.cm^{-2} à 10 et 291 K pour l'interface Au/Co (Chappert, 1985; Chappert et col., 1986), et 0,5 erg.cm^{-2} à 291 K pour l'interface Cu/Co (cf chapitre 3)).

Pour résumer, nous pouvons dire que le paramètre I mesure l'anisotropie magnétocristalline intrinsèque, au niveau microscopique. Dans le volume, cette anisotropie est masquée par la symétrie, totalement dans un cristal cubique, en grande partie dans un cristal hexagonal compact. La magnétostriction lève le voile sur une très faible portion de cette anisotropie, et c'est tout le génie de Néel que d'avoir su tirer sur ce coin du voile, évaluer cette anisotropie intrinsèque, et prédire correctement l'ordre de gran-

deur de l'*anisotropie magnétocristalline de surface*, longtemps avant les premiers résultats expérimentaux (Gradmann et Müller, 1968; Gradmann, 1974).

CHAPITRE 7

COUPLAGE SPIN-ORBITE ET ANISOTROPIES
MAGNETIQUES DANS LES FILMS ULTRAMINCES

La théorie de Néel permet de comprendre comment l'*anisotropie magnétocristalline de surface* est reliée aux propriétés magnétoélastiques du matériau. Elle n'en repose pas moins sur un modèle phénoménologique d'interactions entre moments magnétiques localisés, peu adapté au cas des métaux. Pour ces derniers, le cadre théorique qui rend le mieux compte des propriétés électroniques et magnétiques est celui de la théorie des bandes. Depuis les travaux de Van Vleck (1937), on sait que l'anisotropie magnétocristalline est due au couplage spin-orbite.

Le principe du calcul de l'anisotropie magnétocristalline due au couplage spin-orbite dans la théorie des bandes est connu depuis longtemps déjà (Brooks, 1940; Fletcher, 1954). Il a été largement appliqué aux matériaux massifs (Mori, 1969; Kondorskii et Staube, 1973; Kondorskii, 1974; Mori et col., 1974a,b; Fritsche et col., 1987; Daalderop et col., 1988), Mais, il n'y a eu que très peu d'études théoriques de l'anisotropie des films ultraminces.

Bennett et Cooper (1971) puis Takayama et col. (1976), ont calculé l'anisotropie magnétocristalline d'un film monoatomique de Ni (001), dans un modèle de liaisons fortes. L'utilisation d'une structure de bandes très sommaire ne leur permet d'obtenir qu'un ordre de grandeur de l'anisotropie, d'ailleurs en accord avec celui de Néel.

Très récemment, Gay et Richter (1986, 1987) ainsi que Karas et col. (1988) ont effectué un calcul *ab initio* auto-cohérent de l'anisotropie magnétocristalline d'un film monoatomique de Fe (001). Ce type d'étude, beaucoup plus complexe, requiert un temps de calcul énorme (plusieurs heures sur les plus gros ordinateurs actuels); par ailleurs, les résultats obtenus sont mutuellement en désaccord. Toutes les études théoriques publiées à ce jour concernent exclusivement des films d'orientation (001), alors que la plupart des résultats expérimentaux sont obtenus pour des films à surfaces denses telles que cfc (111), cc (110) ou hc (0001); il importe donc d'étudier théoriquement de telles orientations.

Le moment magnétique de spin dans les films ultraminces a été étudié en détail par de nombreux auteurs (cf chapitre 1). Par contre jusqu'à mainte-

nant, à ma connaissance, ces auteurs n'ont pas pris en compte le couplage spin-orbite, et par conséquent ont négligé le moment magnétique orbital. Bien que ce dernier soit presque entièrement bloqué dans les métaux de transition, sa contribution n'est pas négligeable dès que l'on prétend à une certaine précision.

Dans ce chapitre, je présente une étude théorique des effets liés au couplage spin-orbite (anisotropie magnétocristalline et moment magnétique orbital) dans des films monoatomiques de métaux de transition (Bruno, 1989). Mon étude, menée dans le cadre de la théorie des *liaisons fortes*, se démarque des travaux plus anciens de Bennett et Cooper (1971) et de Takayama et col. (1976) par les points suivants:

- (i) la structure de bandes utilisée est plus réaliste (prise en compte de l'hybridation, de toutes les sous-bandes 3d, de la bande 4s);
- (ii) j'ai étudié de façon systématique l'anisotropie magnétique des métaux de transition, aussi bien dans l'orientation (001) que (111).

L'utilisation approfondie de la théorie des perturbations m'a permis de découpler la dépendance angulaire de l'énergie d'anisotropie de sa dépendance par rapport à la structure électronique; je calcule alors directement les différentes constantes d'anisotropie à partir de la structure de bandes du système non perturbé.

L'utilisation conjointe de la méthode des liaisons fortes et de la théorie des perturbations rend les calculs beaucoup plus souples et rapides que ceux de Gay et Richter (1986, 1987) et de Karas et col. (1988); j'ai ainsi pu effectuer les calculs numériques sur un microordinateur de type PC. Compte tenu du caractère semi-empirique de la structure de bandes obtenue, la justesse des résultats est nécessairement limitée: le but de ce calcul est plutôt d'étudier l'importance qualitative des différents paramètres, et de tenter de dégager des tendances et ordres de grandeur.

Enfin, ce calcul représente la première étude du moment magnétique orbital dans les films ferromagnétiques ultraminces. En menant le calcul perturbatif du moment orbital parallèlement à celui de l'énergie d'anisotropie, on met clairement en évidence l'analogie formelle entre ces deux quantités. En m'appuyant sur des arguments de symétrie et d'ordre de grandeur, je montre que le moment magnétique doit présenter une anisotropie d'environ $0,1 \mu_B$ /atome. Ce résultat est confirmé par les calculs numériques.

7-1. Le couplage spin-orbite

Le couplage spin-orbite, à l'origine de l'anisotropie magnétocristalline et du déblocage du moment orbital des matériaux ferromagnétiques, apparaît dans l'approximation de Pauli de l'équation de Dirac; le Hamiltonien correspondant s'écrit

$$\mathcal{H}_{so} = \frac{\hbar}{2m^2 c^2} (\vec{\nabla}V \times \vec{p}) \cdot \vec{S}, \quad (7-1)$$

ou bien, en décomposant sur les différents sites \vec{R}_j , le potentiel V subi par l'électron,

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{so} &= \sum_j \frac{\hbar}{2m^2 c^2} (\vec{\nabla}V_j \times \vec{p}) \cdot \vec{S} \\ &= \sum_j \xi(r_j) \vec{S} \cdot \vec{L}(\vec{r}_j), \end{aligned} \quad (7-2)$$

(Elliott, 1954) avec $\vec{r}_j = \vec{r} - \vec{R}_j$, et

$$\xi(r_j) = \frac{1}{2m^2 c^2} \frac{1}{r_j} \frac{dV_j(r_j)}{dr_j}. \quad (7-3)$$

On a pour cela supposé que le potentiel est à symétrie sphérique autour de chaque ion, et utilisé les relations

$$\left. \begin{aligned} \vec{\nabla}V_j &= \frac{\vec{r}_j}{r_j} \frac{dV_j}{dr_j}, \\ \vec{L}(\vec{r}_j) &= \vec{r}_j \times \vec{p}. \end{aligned} \right\} \quad (7-4)$$

Ricodeau (1972) et Wang et Callaway (1973) ont montré que l'approximation sphérique est excellente pour les métaux cubiques; bien que cela paraisse quelque peu provoquant, et en l'absence de plus d'information à ce sujet, je supposerai qu'il en est de même dans un film monoatomique. Par ailleurs, la fonction $\xi(r)$ étant très rapidement décroissante, on peut négliger la contribution provenant de sites autres que celui occupé par l'électron.

Arrivé à ce point, il est utile d'introduire un peu de formalisme. Dans

tout ce chapitre, je vais utiliser le formalisme des liaisons fortes de Slater et Koster (1954), bien que la validité des résultats obtenus dans le paragraphe 7-2 ne soit pas restreinte à un schéma particulier.

Les états de base sont des fonctions centrées sur des sites atomiques et orthonormées (fonctions de Löwdin (1956)) $|j, \mu, \sigma\rangle$, où j, μ, σ désignent respectivement le site atomique, la sous-bande 3d et le spin. Les sous-bandes 3d $yz, zx, xy, x^2-y^2, 3z^2-r^2$ correspondent respectivement à $\mu=1, 2, 3, 4, 5$. x, y, z se réfèrent aux axes cristallins, la direction Oz étant choisie perpendiculairement au plan du film; la quantification du spin est effectuée suivant la direction Oz , repérée par les angles sphériques usuels θ et φ .

L'orthonormalisation des fonctions de base s'exprime par

$$\langle j_1, \mu_1, \sigma_1 | j_2, \mu_2, \sigma_2 \rangle = \delta_{j_1, j_2} \delta_{\mu_1, \mu_2} \delta_{\sigma_1, \sigma_2} \quad (7-5)$$

Les fonctions de Bloch sont définies par

$$|\vec{k}, \mu, \sigma\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_j \exp(i\vec{k} \cdot \vec{R}_j) |j, \mu, \sigma\rangle, \quad (7-6)$$

et la fonction propre $|\vec{k}, n, \sigma\rangle$ correspondant à l'énergie propre $\epsilon_{n, \sigma}(\vec{k})$ s'écrit

$$|\vec{k}, n, \sigma\rangle = \sum_{\mu} a_{n, \mu, \sigma}(\vec{k}) |\vec{k}, \mu, \sigma\rangle. \quad (7-7)$$

Les fonctions $|\vec{k}, \mu, \sigma\rangle$ et $|\vec{k}, n, \sigma\rangle$ sont également orthonormées, de sorte que l'on a les relations inverses

$$|j, \mu, \sigma\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{k}} \exp(-i\vec{k} \cdot \vec{R}_j) |\vec{k}, \mu, \sigma\rangle, \quad \text{et} \quad (7-8)$$

$$|\vec{k}, \mu, \sigma\rangle = \sum_n a_{n, \mu, \sigma}^*(\vec{k}) |\vec{k}, n, \sigma\rangle. \quad (7-9)$$

On introduit également les densités d'états généralisées

$$\mathcal{N}_{\mu_1, \mu_2, \sigma}(\vec{k}, \epsilon) = \sum_n a_{n, \mu_1, \sigma}^*(\vec{k}) a_{n, \mu_2, \sigma}(\vec{k}) \delta(\epsilon - \epsilon_{n, \sigma}(\vec{k})), \quad (7-10)$$

$$\mathcal{N}_{\mu_1, \mu_2}(\vec{k}, \epsilon) = \sum_{\sigma} \mathcal{N}_{\mu_1, \mu_2, \sigma}(\vec{k}, \epsilon), \quad (7-11)$$

et la densité de polarisation de spin généralisée

$$\mathcal{M}_{\mu_1, \mu_2}(\vec{k}, \epsilon) = \mathcal{N}_{\mu_1, \mu_2, \uparrow}(\vec{k}, \epsilon) - \mathcal{N}_{\mu_1, \mu_2, \downarrow}(\vec{k}, \epsilon). \quad (7-12)$$

En utilisant les opérateurs de création c^\dagger et d'annihilation c de la seconde quantification, le Hamiltonien de couplage spin-orbite s'écrit

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{SO} &= \sum_{j, \mu_1, \mu_2, \sigma_1, \sigma_2} \langle j, \mu_1, \sigma_1 | \xi(r_j) \vec{L} \cdot \vec{S} | j, \mu_2, \sigma_2 \rangle c_{j, \mu_1, \sigma_1}^\dagger c_{j, \mu_2, \sigma_2} \\ &= \bar{\xi} \sum_{\mu_1, \mu_2, \sigma_1, \sigma_2} \langle \mu_1, \sigma_1 | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_2, \sigma_2 \rangle \sum_{\vec{k}} c_{\mu_1, \sigma_1}^\dagger(\vec{k}) c_{\mu_2, \sigma_2}(\vec{k}), \end{aligned} \quad (7-13)$$

où $\bar{\xi}$ (noté simplement ξ ci-dessous) est la constante de couplage spin-orbite, et où les éléments de matrice $\langle \mu_1, \sigma_1 | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_2, \sigma_2 \rangle$ (avec $\langle \mu_1, \sigma_1 |$ et $| \mu_2, \sigma_2 \rangle$ se référant implicitement au même point) sont donnés en fonction de θ et φ dans les tableaux 7-1 et 7-2, et par les relations (7-14) (Takayama et col., 1976):

$$\left. \begin{aligned} \langle \mu_1, -\sigma | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_2, -\sigma \rangle &= \langle \mu_1, \sigma | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_2, \sigma \rangle^*, \\ \langle \mu_1, -\sigma | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_2, \sigma \rangle &= -\langle \mu_1, \sigma | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_2, -\sigma \rangle^*, \\ \langle \mu_1, \sigma_1 | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_2, \sigma_2 \rangle &= -\langle \mu_2, \sigma_1 | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_1, \sigma_2 \rangle. \end{aligned} \right\} \quad (7-14)$$

Le moment orbital est $\langle L_z \rangle$, la valeur moyenne de la composante de \vec{L} parallèle à la direction de quantification du spin; on montre facilement (cf Appendice 3) que

$$\langle \mu_1, \sigma_1 | L_z | \mu_2, \sigma_2 \rangle = 2\delta_{\sigma_1, \sigma_2} \langle \mu_1, \uparrow | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_2, \uparrow \rangle. \quad (7-15)$$

Cette dernière relation est très importante, car c'est elle qui nous permettra d'établir le parallèle entre l'anisotropie magnétique et le moment orbital.

Tableau 7-1

$\vec{L} \cdot \vec{S}$	$ 1\uparrow\rangle$	$ 2\uparrow\rangle$	$ 3\uparrow\rangle$	$ 4\uparrow\rangle$	$ 5\uparrow\rangle$
$\langle 1\uparrow $	0	$\frac{i}{2}\cos\theta$	$\frac{-i}{2}\sin\theta\sin\varphi$	$\frac{-i}{2}\sin\theta\cos\varphi$	$\frac{-i\sqrt{3}}{2}\sin\theta\cos\varphi$
$\langle 2\uparrow $		0	$\frac{i}{2}\sin\theta\cos\varphi$	$\frac{-i}{2}\sin\theta\sin\varphi$	$\frac{i\sqrt{3}}{2}\sin\theta\sin\varphi$
$\langle 3\uparrow $			0	$i\cos\theta$	0
$\langle 4\uparrow $				0	0
$\langle 5\uparrow $					0

Tableau 7-2

$\vec{L} \cdot \vec{S}$	$ 1\uparrow\rangle$	$ 2\uparrow\rangle$	$ 3\uparrow\rangle$	$ 4\uparrow\rangle$	$ 5\uparrow\rangle$
$\langle 1\downarrow $	0	$\frac{-i}{2}\sin\theta$	$\frac{1}{2}(\cos\varphi - i\cos\theta\sin\varphi)$	$\frac{-1}{2}(\sin\varphi + i\cos\theta\cos\varphi)$	$\frac{-\sqrt{3}}{2}(\sin\varphi + i\cos\theta\cos\varphi)$
$\langle 2\downarrow $		0	$\frac{1}{2}(\sin\varphi + i\cos\theta\cos\varphi)$	$\frac{1}{2}(\cos\varphi - i\cos\theta\sin\varphi)$	$\frac{-\sqrt{3}}{2}(\cos\varphi - i\cos\theta\sin\varphi)$
$\langle 3\downarrow $			0	$-i\sin\theta$	0
$\langle 4\downarrow $				0	0
$\langle 5\downarrow $					0

7-2. Théorie perturbative de l'anisotropie magnétocristalline et du moment orbital

La constante de couplage spin-orbite ξ des métaux de transition 3d est de l'ordre de 0,05 eV, donc beaucoup plus faible que la largeur de la bande 3d (quelques eV); ceci justifie l'utilisation de la théorie des perturbations. Je me limiterai à l'ordre de perturbation le plus bas, c'est à dire au second ordre pour la correction à l'énergie, et au premier pour la correction à la fonction d'onde.

Ces dernières sont données par les formules classiques, respectivement

$$\delta E = \sum_{exc} \frac{|\langle fond | \mathcal{H}_{so} | exc \rangle|^2}{E_{fond} - E_{exc}}, \quad (7-16)$$

$$\delta |fond\rangle = \sum_{exc} \frac{\langle exc | \mathcal{H}_{so} | fond \rangle}{E_{fond} - E_{exc}} |exc\rangle, \quad (7-17)$$

où $|fond\rangle$, $|exc\rangle$, E_{fond} , E_{exc} représentent respectivement l'état fondamental, un état excité, et les énergies correspondantes pour le système non perturbé. Etant donné que la valeur moyenne de L_z est nulle dans l'état non perturbé, on obtient

$$\langle L_z \rangle = \sum_{exc} \langle fond | L_z | exc \rangle \frac{\langle exc | \mathcal{H}_{so} | fond \rangle}{E_{fond} - E_{exc}} + c.c., \quad (7-18)$$

l'expression c.c. symbolisant le complexe conjugué.

En calculant de cette façon δE et $\langle L_z \rangle$, je néglige toute déformation de la surface de Fermi; Kondorskii et Staube (1973) ont estimé que la contribution négligée est de signe opposé, de sorte que mes résultats seront probablement surestimés.

\mathcal{H}_{so} est un opérateur à un électron, et diagonal en \vec{k} ; ainsi, les seuls états excités à envisager sont de la forme

$$|exc\rangle = c_{n_2, \sigma_2}^+(\vec{k}) c_{n_1, \sigma_1}(\vec{k}) |fond\rangle, \quad (7-19)$$

avec $\epsilon_{n_1, \sigma_1} < \epsilon_F < \epsilon_{n_2, \sigma_2}$ (ϵ_F est le niveau de Fermi).

En développant les états propres suivant les états de base, et en utili-

sant les propriétés de symétrie des éléments de matrice de $\vec{L} \cdot \vec{S}$, on peut montrer (cf Appendice 3) que

$$\delta E = -\xi^2 \sum_{\mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4} \langle \mu_1, \uparrow | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_2, \uparrow \rangle \langle \mu_3, \uparrow | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_4, \uparrow \rangle G(\mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4), \quad (7-20)$$

avec

$$G(\mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4) = \sum_{\vec{k}} \int_{\epsilon < \epsilon_F} d\epsilon \int_{\epsilon_F < \epsilon'} d\epsilon' \times \\ \times \frac{\mathcal{M}_{\mu_1, \mu_4}(\vec{k}, \epsilon) \mathcal{M}_{\mu_3, \mu_2}(\vec{k}, \epsilon')}{\epsilon' - \epsilon}. \quad (7-21)$$

On a un résultat analogue pour $\langle L_z \rangle$, en remplaçant dans (7-20) ξ^2 par 4ξ , et $G(\mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4)$ par

$$H(\mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4) = \sum_{\vec{k}} \int_{\epsilon < \epsilon_F} d\epsilon \int_{\epsilon_F < \epsilon'} d\epsilon' \times \\ \times \frac{1}{2} \frac{\mathcal{N}_{\mu_1, \mu_4}(\vec{k}, \epsilon) \mathcal{M}_{\mu_3, \mu_2}(\vec{k}, \epsilon') + \mathcal{M}_{\mu_1, \mu_4}(\vec{k}, \epsilon) \mathcal{N}_{\mu_3, \mu_2}(\vec{k}, \epsilon')}{\epsilon' - \epsilon}. \quad (7-22)$$

Les expressions (7-20) à (7-22) donnent l'énergie d'anisotropie et le moment orbital, sous une forme dans laquelle sont séparées la dépendance angulaire (entièrement incluse dans les éléments de matrice de $\vec{L} \cdot \vec{S}$) et la dépendance envers la structure électronique (contenue dans les facteurs G et H). On obtient donc δE et $\langle L_z \rangle$ dans une direction quelconque à partir de la structure de bandes non-perturbée, sans avoir à préciser la direction de quantification du spin, et par conséquent, en conservant à la zone de Brillouin toute sa symétrie. C'est un des avantages de la méthode perturbative. Un autre avantage est de bien mettre en lumière la profonde corrélation formelle et donc quantitative entre l'énergie d'anisotropie et le moment orbital.

En explicitant les éléments de matrice de $\vec{L} \cdot \vec{S}$, on obtient finalement

$$\delta E = K_0 + K_2 \sin^2 \theta, \quad (7-23)$$

pour des films mmonoatomiques d'orientation (001) ou (111), et

$$\delta E = K_0 + K_2 \sin^2 \theta + K'_2 \sin^2 \theta \cos 2\varphi, \quad (7-24)$$

pour une orientation (110), avec

$$K_0 = \frac{\xi^2}{4} [I(1,2,1,2) + I(1,2,3,4) + 4I(3,4,3,4)], \quad (7-25)$$

$$K_2 = \frac{\xi^2}{4} \left\{ \begin{aligned} & -I(1,2,1,2) - 4I(1,2,3,4) - 4I(3,4,3,4) \\ & + \frac{1}{2} [I(1,3,1,3) + I(1,4,1,4)] + \sqrt{3} [I(1,4,1,5) - I(2,4,2,5)] \\ & + \frac{1}{2} [I(2,4,2,4) + I(2,3,2,3)] - \sqrt{3} [I(1,3,2,5) + I(1,5,2,3)] \\ & + \frac{3}{2} [I(2,5,2,5) + I(1,5,1,5)] + [I(1,3,2,4) - I(1,4,2,3)] \end{aligned} \right\}, \quad (7-26)$$

$$K'_2 = \frac{\xi^2}{4} \left\{ \begin{aligned} & \frac{1}{2} [I(1,4,1,4) - I(1,3,1,3)] + \sqrt{3} [I(1,4,1,5) + I(2,4,2,5)] \\ & + \frac{1}{2} [I(2,3,2,3) - I(2,4,2,4)] + \sqrt{3} [I(1,3,2,5) - I(1,5,2,3)] \\ & + \frac{3}{2} [I(1,5,1,5) - I(2,5,2,5)] - [I(1,3,2,4) + I(1,4,2,3)] \end{aligned} \right\}, \quad (7-27)$$

où l'on a posé

$$I(\mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4) = \operatorname{Re} \left[\begin{aligned} & G(\mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4) + G(\mu_2, \mu_1, \mu_4, \mu_3) \\ & - G(\mu_1, \mu_2, \mu_4, \mu_3) - G(\mu_2, \mu_1, \mu_3, \mu_4) \end{aligned} \right]. \quad (7-28)$$

Nous obtenons un résultat analogue pour $\langle L_\xi \rangle$, en remplaçant ξ^2 par 4ξ dans (7-25), (7-26) et (7-27), et G par H dans (7-28).

7-3. Calcul de la structure de bandes

Nous avons vu au paragraphe précédent comment obtenir l'énergie d'anisotropie et le moment orbital, en fonction de la structure de bandes dans l'état non perturbé. Je présente ici le calcul proprement dit de la structure de bandes. Etant donné que j'utilise pour cela des techniques classiques, je serai relativement bref quant à leur description.

7-3.1. La méthode des liaisons fortes de Slater-Koster

Dans les métaux de transition, les électrons 3d, responsables du magnétisme, sont assez fortement liés aux noyaux, de sorte qu'une description en termes d'un nombre restreint de *combinaisons linéaires d'orbitales atomiques* rend compte relativement fidèlement de leur structure électronique. Cette approximation est appelée méthode des *liaisons fortes*.

Le Hamiltonien s'écrit

$$\mathcal{H} = \mathcal{T} + \sum_j \mathcal{V}_j, \quad (7-29)$$

où \mathcal{T} est l'opérateur énergie cinétique, et \mathcal{V}_j est le potentiel créé par l'ion j . L'élément de matrice du Hamiltonien entre deux fonctions de Bloch s'écrit

$$\begin{aligned} \langle \vec{k}_1, \mu_1, \sigma_1 | \mathcal{H} | \vec{k}_2, \mu_2, \sigma_2 \rangle &= \delta_{\vec{k}_1, \vec{k}_2} \delta_{\sigma_1, \sigma_2} \times \\ &\times \sum_j \exp(i\vec{k}_2 \cdot \vec{R}_j) \langle 0, \mu_1, \sigma_1 | \mathcal{H} | j, \mu_2, \sigma_1 \rangle. \end{aligned} \quad (7-30)$$

Nous devons donc calculer les éléments de matrice de \mathcal{H} entre deux fonctions de Löwdin, l'une centrée à l'origine, et l'autre au site j . Les fonctions de Löwdin étant localisées au voisinage d'un site, ces éléments de matrice décroissent rapidement avec la distance entre sites, de sorte que l'on peut se contenter de ne considérer que les sites proches voisins. Par ailleurs, on néglige les termes dits à *trois centres*, qui couplent des orbitales centrées sur des ions différents *via* le potentiel dû à un troisième ion; en effet ces

termes sont plus faibles que les termes à deux centres $\langle 0, \mu_1 | \mathcal{T} + \mathcal{V}_0 + \mathcal{V}_j | j, \mu_2 \rangle$. Le calcul *ab initio* des éléments de matrice (7-30) représente une tâche phénoménale; la méthode de Slater et Koster (1954) consiste à les considérer comme des paramètres ajustables, que l'on choisit de façon à reproduire convenablement les niveaux énergétiques en des points de haute symétrie de la zone de Brillouin. Il s'agit donc d'une méthode d'interpolation, qui s'appuie pour la détermination des paramètres sur les résultats d'autres méthodes de calcul, ou bien sur des données expérimentales. Slater et Koster ont habilement tiré parti du fait que le terme $\mathcal{T} + \mathcal{V}_0 + \mathcal{V}_j$ possède une symétrie axiale autour de la direction Oj pour réduire le nombre de paramètres. Les orbitales sont décomposées en orbitales de type σ , π , δ de façon analogue au cas d'une molécule diatomique, et finalement les intégrales à deux centres s'expriment en termes de paramètres nommés $(dd\sigma)_1$, $(dd\pi)_1$, $(dd\delta)_1$ qui représentent respectivement l'élément de matrice entre deux orbitales d de caractère σ , π ou δ (l'indice 1 indique qu'il s'agit de premiers voisins; on a également des termes entre second voisins, etc...). Slater et Koster ont calculé les expressions des éléments de matrice de \mathcal{H} entre fonctions de Löwdin, en fonction des paramètres $(dd\sigma)$, etc..., et des cosinus directeurs de la liaison. J'ai utilisé ces relations pour calculer les éléments de matrice entre fonctions de Bloch pour des films monoatomiques cfc (001) et cfc(111) (ou hc (0001)) (cf Appendice 3).

7-3.2. Interaction Coulombienne interélectronique et approximation de Hartree-Fock

L'interaction de Coulomb entre électrons est responsable du ferromagnétisme dans les métaux. Une revue détaillée de ces problèmes est donnée par Gautier (1982). Il est donc absolument nécessaire d'inclure explicitement cette interaction dans notre problème. L'approximation de Hartree-Fock est la façon la plus simple de la prendre en compte. Le Hamiltonien d'interaction interélectronique s'écrit, en seconde quantification

$$\mathcal{H}_{ee} = \frac{1}{2} \sum_{\substack{\sigma_1, \sigma_2 \\ j_1, j_2, j_3, j_4 \\ \mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4}} V_{j_1, j_2, j_3, j_4}^{\mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4} \times \\ \times c_{j_4, \mu_4, \sigma_1}^+ c_{j_3, \mu_3, \sigma_2}^+ c_{j_2, \mu_2, \sigma_2} c_{j_1, \mu_1, \sigma_1} \quad (7-31)$$

avec

$$V_{j_1, j_2, j_3, j_4}^{\mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4} = \int d^3 r \int d^3 r' \langle j_4, \mu_4 | \vec{r} \rangle \langle j_3, \mu_3 | \vec{r}' \rangle \times \\ \times \frac{e^2}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \langle \vec{r}' | j_2, \mu_2 \rangle \langle \vec{r} | j_1, \mu_1 \rangle. \quad (7-32)$$

L'approximation de Hartree-Fock consiste à chercher la solution de l'équation de Schrödinger à N électrons sous la forme d'un déterminant de Slater de façon à satisfaire au principe de Pauli; c'est une approximation de *champ moyen*, dans laquelle les électrons sans interaction sont soumis à un potentiel représentant l'interaction moyenne avec tous les autres électrons. Cette approximation néglige les *corrélations* et les *fluctuations*. En utilisant le principe variationnel de Ritz, on obtient un système d'équations de Schrödinger à un électron couplées de façon auto-cohérente (Messiah, 1964). Le Hamiltonien de Hartree-Fock à un électron est obtenu en pratique en ne retenant dans \mathcal{H}_{ee} que les termes qui s'expriment sous la forme de produits $\hat{n}_\alpha \hat{n}_\beta$ ($\hat{n}_\alpha = c_\alpha^\dagger c_\alpha$), puis en remplaçant $\hat{n}_\alpha \hat{n}_\beta$ par $\hat{n}_\alpha n_\beta + n_\alpha \hat{n}_\beta$, où n_α est la valeur moyenne de \hat{n}_α qui doit être déterminée de façon auto-cohérente. Il est à noter que ce Hamiltonien contient *2 fois* l'énergie d'interaction, puisque chaque électron subit le champ moyen créé par *tous les autres électrons*.

A cause de la décroissance exponentielle des fonctions de base, les termes les plus importants sont les termes intraatomiques, et l'on peut donc négliger tous les autres (Friedel, 1969). Par ailleurs, je supposerai que tous les V restants sont égaux; le Hamiltonien d'interaction prend alors la forme

$$\mathcal{H}_{ee}^{HF} = V \sum_j \sum_{\mu_1, \mu_2} \sum_{\sigma_1, \sigma_2} \hat{n}_{j, \mu_1, \sigma_1} n_{j, \mu_2, \sigma_2} (1 - \delta_{\sigma_1, \sigma_2}). \quad (7-33)$$

La signification physique de cette expression est immédiate: elle exprime le fait que chaque électron subit le champ Coulombien répulsif dû aux autres électrons du même site; en vertu du principe de Pauli qui interdit à deux électrons d'occuper la même spin-orbitale, la répulsion due aux électrons de même spin est plus faible. Ceci favorise donc la polarisation de spin des électrons 3d. L'énergie d'interaction V , calculée dans l'approximation de Hartree-Fock est largement surestimée; en effet, l'approximation de Hartree-Fock, négligeant les corrélations de Coulomb entre électrons de spins opposés, leur permet de s'approcher mutuellement en moyenne beaucoup plus qu'ils ne le font réellement. On peut néanmoins rester dans le cadre commode de l'approximation de Hartree-Fock, à condition de remplacer l'énergie d'interaction V par une énergie d'interaction effective U_{eff} (Friedel, 1969); une partie des corrélations est ainsi prise en compte.

Nous obtenons finalement l'expression du Hamiltonien d'interaction:

$$\mathcal{H}_{ee}^{HF} = \sum_{j, \mu, \sigma} \Delta \epsilon_{j, \mu, \sigma}^{HF} \hat{n}_{j, \mu, \sigma} \quad (7-34)$$

où

$$\Delta \epsilon_{j, \mu, \sigma}^{HF} = U_{eff} \sum_{\mu_1} n_{j, \mu_1, -\sigma} \quad (7-35)$$

est la correction d'énergie de l'état $|j, \mu, \sigma\rangle$ due à l'interaction Coulombienne.

7-3.3. Choix des paramètres et résultats

Les paramètres de Slater-Koster, entre premiers et seconds voisins, ont été calculés à l'aide de la théorie de Harrison (1980). Bien qu'il s'agisse de paramètres calculés pour l'état massif, ils constituent une approximation raisonnable pour des plans monoatomiques, l'essentiel des effets de surface pouvant être attribué à l'absence de certains des premiers voisins. Outre les électrons 3d, j'ai inclus dans ce calcul les électrons 4s, dont la bande recouvre celle des électrons 3d. Contrairement aux calculs antérieurs (Bennett et Cooper, 1971; Takayama et col., 1976), l'hybridation a été pleinement prise en compte. Les positions respectives des bandes 3d et 4s ont été

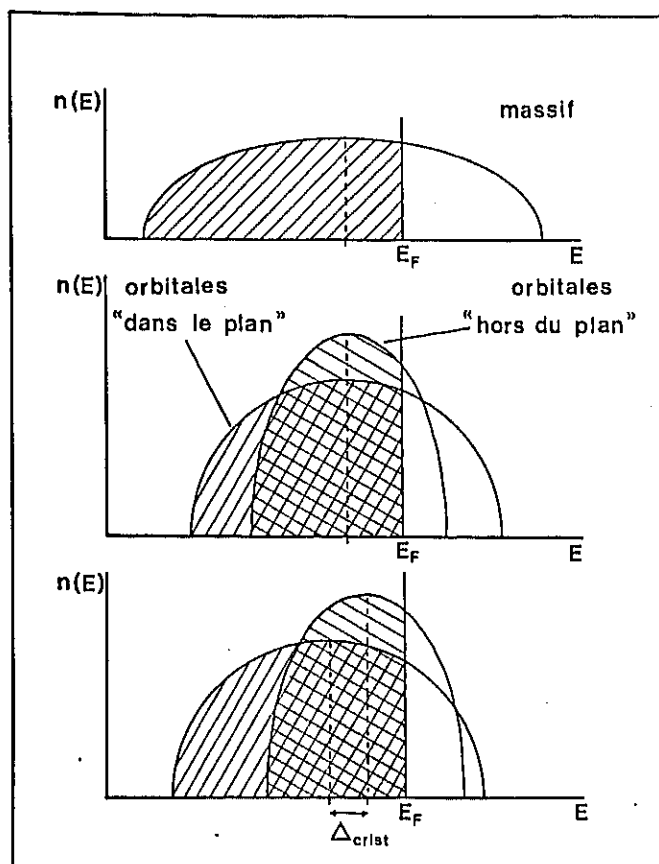


Figure 7-1: (a): densité d'états de la bande 3d, pour un métal massif; (b): dans le cas d'un plan monoatomique, le rétrécissement est différent pour les orbitales "dans le plan" et pour les orbitales "hors du plan", induisant un transfert d'électrons des premières vers les secondes; (c): sous l'effet de l'interaction Coulombienne, déplacement des orbitales tendant à réduire le déséquilibre de population.

ajustées de façon à obtenir les nombres d'occupation de l'état massif, les calculs *ab initio* de Noffke et Fritsche (1981), et de Wimmer et col. (1984) ayant montré qu'ils sont inchangés pour une surface ou un plan monoatomique. Pour l'énergie effective d'interaction U_{eff} , j'ai choisi la valeur 1 eV, qui rend compte convenablement de la polarisation de spin pour le fer, le cobalt et le nickel. Le calcul de cette dernière est effectué par itérations, jusqu'à obtention d'une solution autocohérente.

Un paramètre important du problème est la séparation d'énergie entre les différentes orbitales, due au champ cristallin. Dans les matériaux massifs,

elle est très faible, l'environnement électronique étant quasi-sphérique. Il n'en n'est pas de même pour une surface: la séparation de champ cristallin peut alors être beaucoup plus grande. C'est une grandeur qui dépend essentiellement des interactions Coulombiennes entre électrons; elle doit donc être calculée de façon autocohérente, ce qui est hors de notre propos. On peut néanmoins s'en faire une idée qualitative à l'aide du raisonnement suivant (schématisé sur la figure 7-1):

- (i) dans un film monoatomique, à cause de l'absence d'atomes premiers voisins, la bande 3d subit un rétrécissement;
- (ii) les orbitales qui pointent vers l'extérieur du film ($yz, zx, 3z^2-r^2$) sont plus affectées par ce rétrécissement que celles qui sont dans le plan (xy, x^2-y^2);
- (iii) la bande 3d étant plus qu'à demi remplie, ce rétrécissement anisotrope donne lieu à un transfert d'électrons des bandes xy, x^2-y^2 vers les bandes $yz, zx, 3z^2-r^2$;
- (iv) l'énergie d'interaction Coulombienne étant plus importante entre électrons appartenant à une même orbitale qu'entre électrons d'orbitales différentes (à cause d'un plus fort recouvrement spatial), ce transfert d'électrons cause un accroissement d'énergie coulombienne; ceci se traduit par une séparation des niveaux (dite *de champ cristallin*)

$$\Delta_{crist} = E(yz, zx, 3z^2-r^2) - E(xy, x^2-y^2) \quad (7-36)$$

qui tend à égaliser les populations des différentes sous-bandes 3d.

Je fais l'hypothèse que la différence d'énergie entre les niveaux yz, zx et $3z^2-r^2$, d'une part, et entre les niveaux xy et x^2-y^2 , d'autre part, peut être négligée devant Δ_{crist} . En comparant (cf figure 7-2) la dispersion des bandes d'énergie et la forme de la densité d'états avec les résultats des calculs autocohérents de Wimmer (1984), pour un film cfc (111) monoatomique de cobalt paramagnétique, j'ai estimé qu'une séparation de champ cristallin $\Delta_{crist} = 0,5$ eV constitue une valeur raisonnable.

Les tableaux 7-3 et 7-4 rassemblent les paramètres (exprimés en eV) utilisés par la suite pour le fer, le cobalt et le nickel.

J'ai réalisé la diagonalisation du Hamiltonien en utilisant la méthode de Jacobi. Les calculs de densité d'états ont été effectués par la méthode d'intégration linéaire triangulaire (Jepsen et col., 1978), dans laquelle la zone de Brillouin à deux dimension est divisée en éléments triangulaires sur lesquels les surfaces d'énergie constante sont remplacées par des portions de plan. J'ai pris 400 triangles sur la zone de Brillouin réduite, la préci-

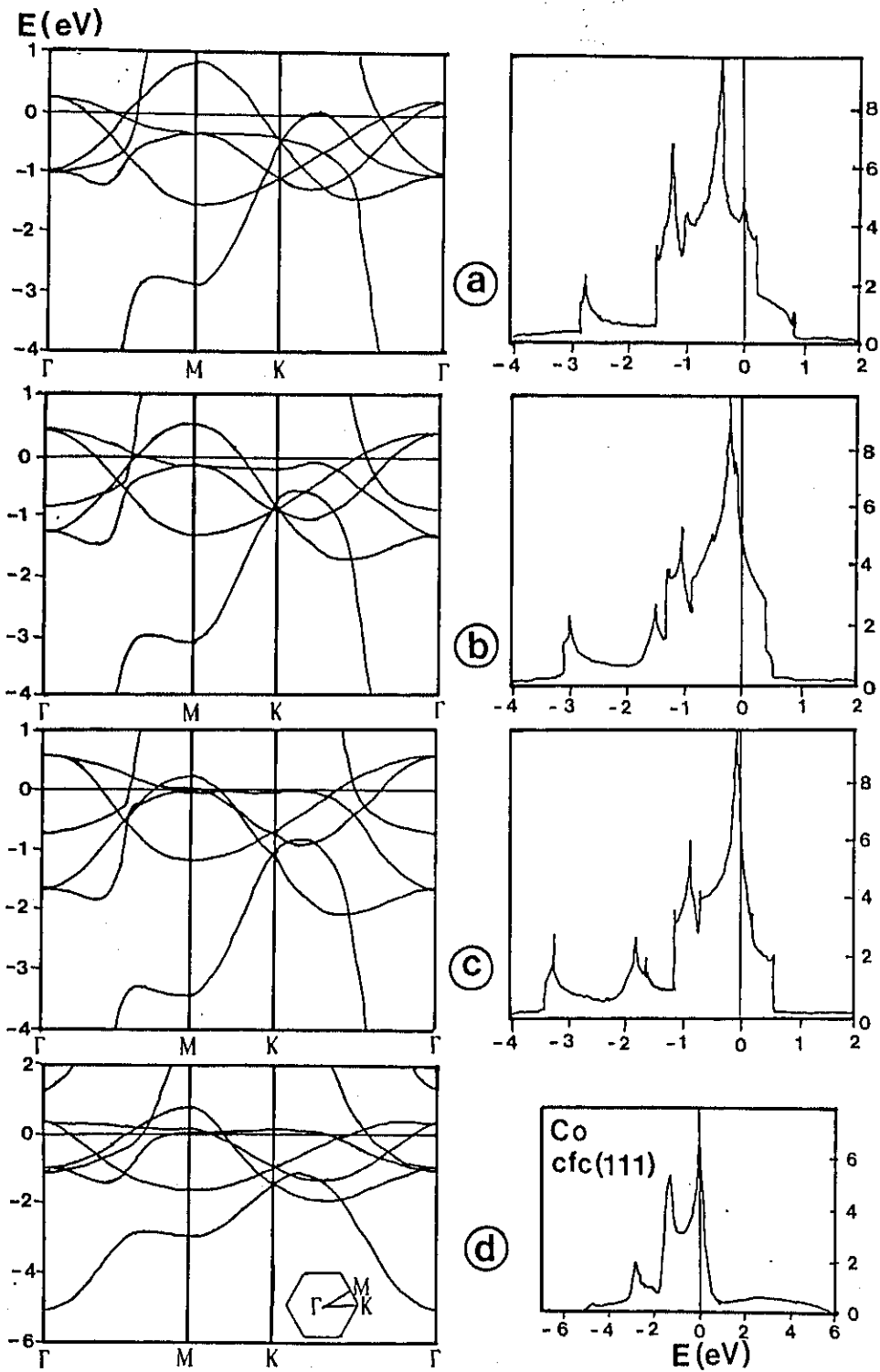


Figure 7-2: Structures de bandes et densités d'états d'un film cfc (111) de Co paramagnétique, calculées avec $\Delta_{crist} = 0$ (a), $\Delta_{crist} = 0,5$ eV (b), $\Delta_{crist} = 1,0$ eV (c), comparées aux résultats des calculs *ab initio* de Wimmer (1984) (d).

Tableau 7-3

	$E_{4s} - E_{3d}$	$(ss\sigma)_1$	$(sd\sigma)_1$	$(dd\sigma)_1$	$(dd\pi)_1$	$(dd\delta)_1$
Fe	1,0	-1,63	-0,72	-0,67	0,36	0,00
Co	1,0	-1,69	-0,63	-0,54	0,29	0,00
Ni	1,0	-1,71	-0,59	-0,46	0,25	0,00

Tableau 7-4

	$(ss\sigma)_2$	$(sd\sigma)_2$	$(dd\sigma)_2$	$(dd\pi)_2$	$(dd\delta)_2$
Fe	0,00	0,00	-0,12	0,06	0,00
Co	0,00	0,00	-0,10	0,05	0,00
Ni	0,00	0,00	-0,08	0,04	0,00

sion ainsi obtenue étant suffisante.

Les figures 7-3 et 7-4 montrent la structure de bandes et les densités d'états projetées en spin obtenues pour des films monoatomiques cfc (001) et (111) de cobalt ferromagnétique. Les moments magnétiques de spin calculés pour des films monoatomiques cfc (001) et (111) de fer cobalt et nickel sont représentés sur la figure 7-5, comparés à ceux des matériaux massifs et à ceux calculés *ab initio* par d'autres auteurs; on constate un accroissement progressif du moment magnétique lorsque la coordination diminue, dû au rétrécissement de la bande 3d, lequel se traduit par une augmentation de la densité d'états au niveau de Fermi. Les résultats obtenus sont en bon accord avec ceux des calculs *ab initio*.

7-4. Anisotropie magnétocristalline dans les films monoatomiques de métaux de transition

Je présente ici, en les discutant, les résultats des calculs d'anisotropie magnétocristalline obtenus sur la base de la théorie perturbative du paragraphe 7-2, et des structures de bandes calculées ci-dessus.

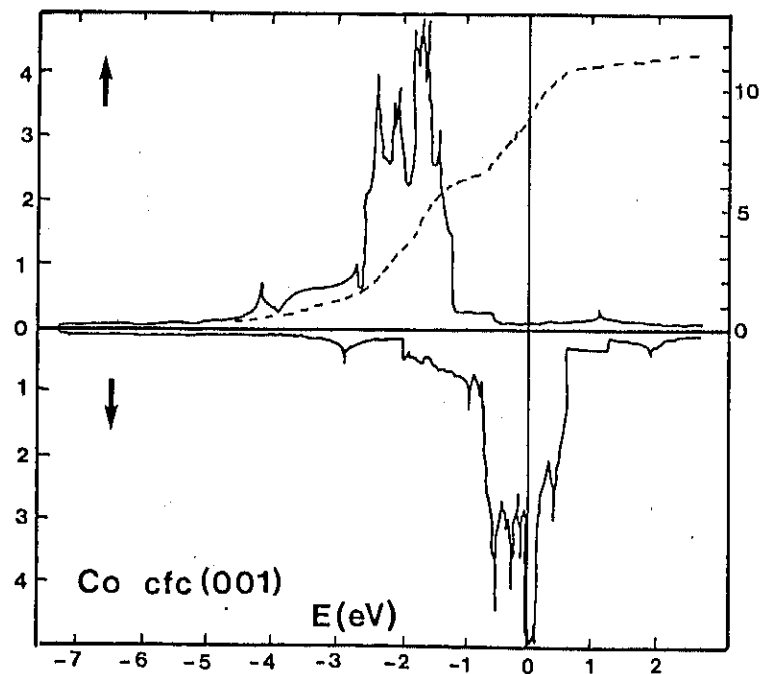
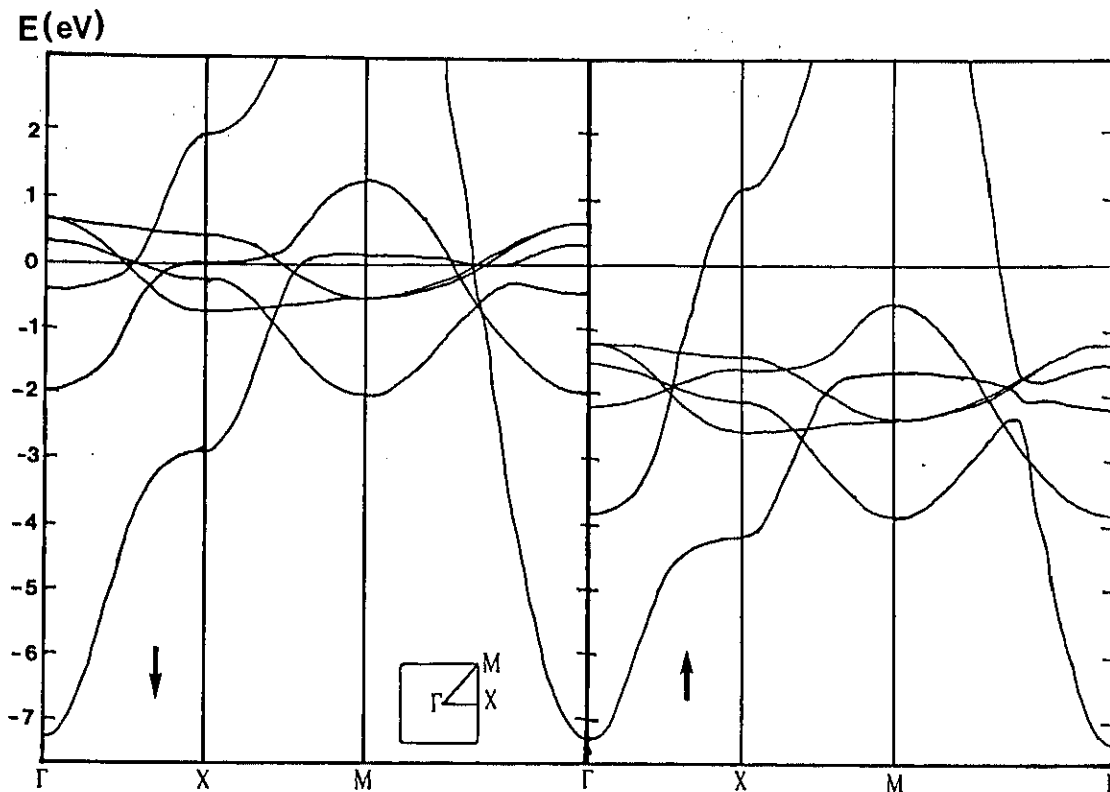


Figure 7-3: Structure de bandes et densité d'états projetée en spin, pour un film monoatomique cfc (001) de Co ferromagnétique (\uparrow : spin majoritaire; \downarrow : spin minoritaire). La courbe en pointillés représente l'intégrale de la densité totale d'électrons.

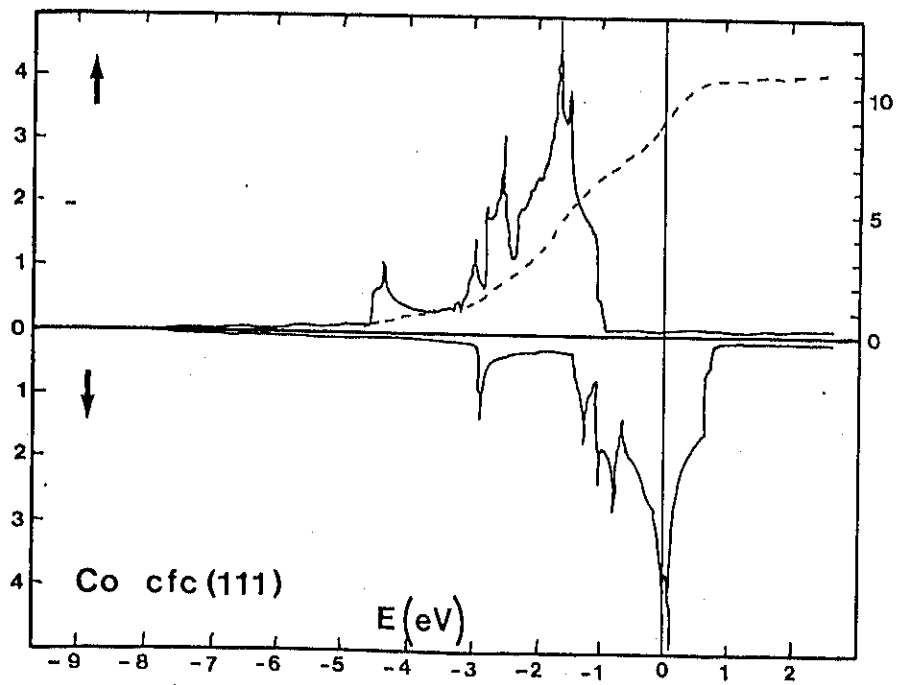
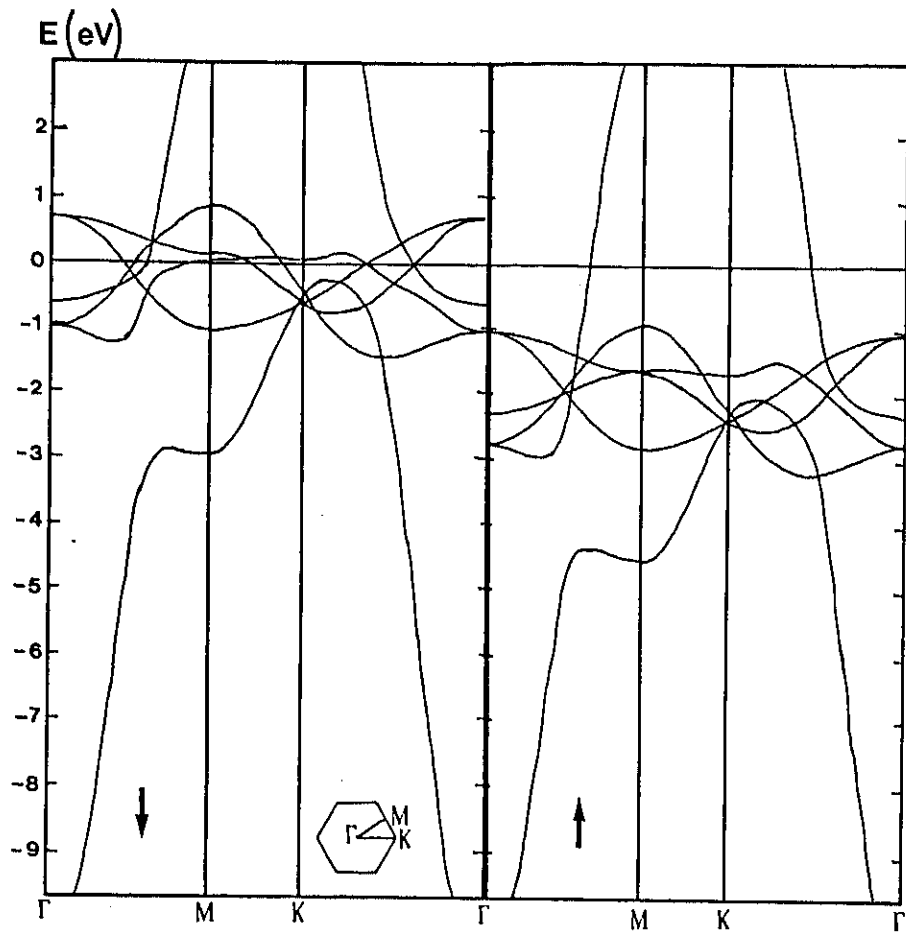


Figure 7-4: *Idem* fig. 7-4, pour un film monoatomique fcc (111).

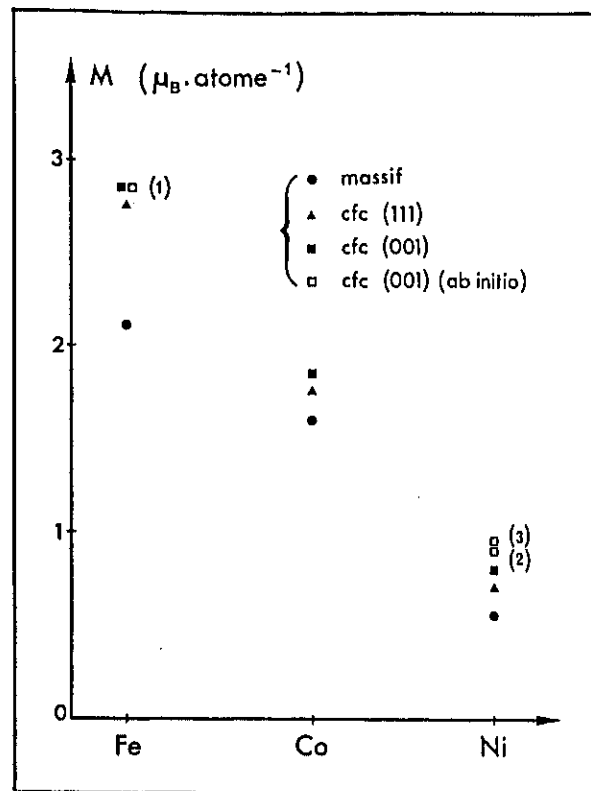


Figure 7-5: Moments magnétiques calculés pour des films monoatomiques cfc (001) et (111) de Fe, Co et Ni, comparés à ceux des matériaux massifs, et à ceux calculés *ab initio* par d'autres auteurs: (1) Fu et col. (1985), (2) Jepsen et col. (1982), (3) Noffke et Fritsche (1981).

La valeur attribuée à la constante de couplage spin-orbite varie d'un auteur à l'autre; j'ai donc choisi une valeur moyenne: $\xi=0,05$ eV. La méthode d'intégration linéaire triangulaire ne pouvant être utilisée simplement pour les calculs d'anisotropie, j'ai effectué les intégrations dans l'espace des \vec{k} par une méthode de tirage aléatoire. A cause de la différence d'énergie $\epsilon'-\epsilon$ figurant au dénominateur dans l'équation (7-21), l'intégration converge très lentement (cf figure 7-6), et il faut prendre plus de 5000 points sur la zone de Brillouin réduite; par ailleurs, j'ai imposé à $\epsilon'-\epsilon$ une limite inférieure (10^{-3} eV), correspondant à la précision à laquelle sont calculées les valeurs propres de l'énergie; le calcul sur PC dure environ 40 minutes.

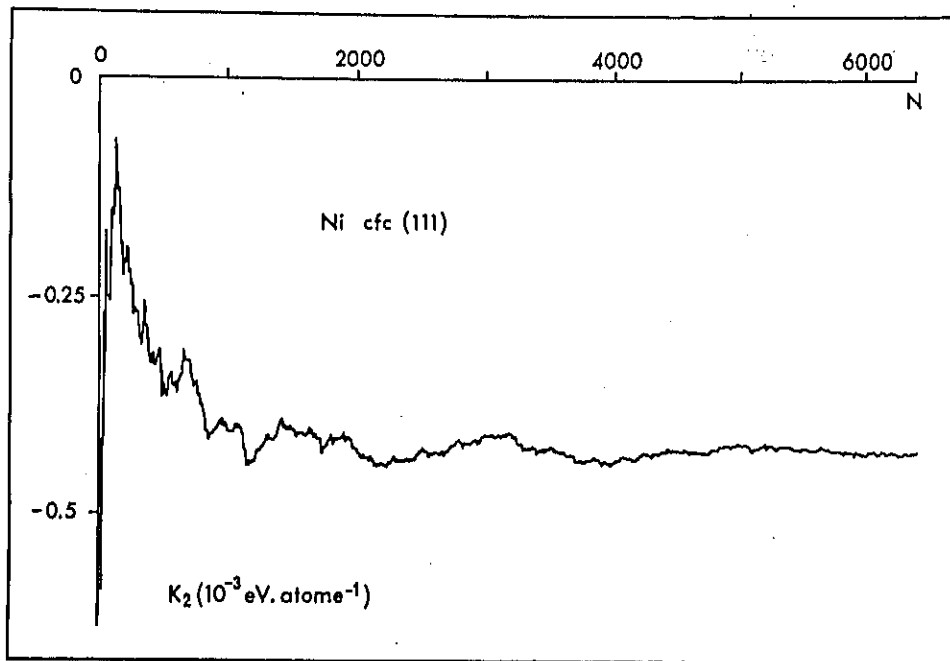


Figure 7-6: Evolution de l'anisotropie K_2 calculée pour un film monoatomique cfc (111) de Ni, en fonction du nombre de points d'intégration dans la zone de Brillouin.

7-4.1. Importance du champ cristallin

La séparation d'énergie due au champ cristallin est une grandeur difficile à évaluer dans un film monoatomique, ainsi que je l'ai montré au paragraphe précédent. J'en ai donc fixé l'ordre de grandeur probable, à l'aide d'arguments qualitatifs. Il importe maintenant d'étudier l'influence de ce paramètre sur l'anisotropie magnétocristalline, afin d'évaluer l'erreur possible due à la méconnaissance du champ cristallin.

Le tableau 7-5 montre la variation en fonction de Δ_{crist} de la constante d'anisotropie K_2 calculée pour des films monoatomiques de cobalt et de nickel cfc (001). On constate que

- (i) les valeurs d'anisotropie sont de l'ordre de 10^{-4} à 2×10^{-3} eV/atome (10^{-3} eV/atome correspond à peu près à 1 erg/cm^2), en accord avec les résultats de Gay et Richter (1986, 1987) et de Karas et col. (1988);
- (ii) l'anisotropie magnétocristalline dépend très fortement du champ cristallin.

Tableau 7-5

Δ_{crist} (eV)	-0,5	0,0	0,5	1,0
Co cfc (001) K_2 (10^{-3} eV/atome)	-0,47	-1,34	-1,98	-2,12
Ni cfc (001) K_2 (10^{-3} eV/atome)	0,12	-0,16	-0,86	-1,14

Ce dernier point indique que l'on ne pourra espérer obtenir un résultat réaliste pour l'anisotropie magnétocristalline que lorsque l'on aura une connaissance détaillée du champ cristallin. La méthode qui donne actuellement les meilleurs résultats pour le calcul des propriétés électroniques des métaux est basée sur la *fonctionnelle de la densité locale de spin* (c'est celle qu'ont utilisée Gay et Richter (1986, 1987) et Karas et col. (1988)); elle prédit de façon remarquable les paramètres de maille, moment magnétique, énergie de cohésion, des métaux cubiques. Par contre, elle rend compte assez mal de la répartition des électrons au sein de la bande 3d, ainsi que l'ont montré Oles et Fulde (1984); notamment, elle sous-estime l'anisotropie de distribution de charge à la surface, et donc surestime la séparation d'énergie de champ cristallin.

Une conséquence importante de cette sensibilité de l'anisotropie magnétocristalline au champ cristallin est que l'on doit observer d'importantes différences selon que l'on a affaire à une surface libre ou une interface; en effet, dans le premier cas les orbitales peuvent s'échapper librement vers le vide, alors que dans le cas d'une interface, elles sont soumises au champ cristallin créé par les atomes du substrat.

Par ces considérations, je souhaite attirer l'attention sur les limites probables de la méthode de la *fonctionnelle de la densité locale de spin*, et illustrer comment des modèles simples, comme celui de Oles et Fulde (1984) ou celui que je présente dans ce chapitre, peuvent contribuer à la compréhension des phénomènes. Si des méthodes de calcul *ab initio* autocohérentes, comme celle de la *fonctionnelle de la densité locale de spin*, sont sans conteste les plus efficaces pour obtenir des résultats quantitatifs réalistes, des méthodes semi-empiriques comme celle des *liaisons fortes*, utilisant

un nombre restreint de paramètres dont la signification physique est transparente, me semblent plus aptes à interpréter physiquement ces résultats. Ces différentes approches sont complémentaires les unes des autres.

7-4.2. Influence du remplissage de la bande de valence

Je prendrais désormais $\Delta_{crist} = 0,5$ eV. A la lecture des tableaux 7-3 et 7-4, il apparaît clairement que les divers métaux de transition (Fe, Co, Ni) sont décrits à l'aide de paramètres très voisins. L'essentiel de la différence entre les propriétés de ces métaux peut donc être attribué au remplissage de la bande de valence. J'ai calculé l'anisotropie magnétocristalline de films monoatomiques cfc (001) et (111), pour des nombres N_v d'électrons de valence allant de 7 (Mn) à 10 (Ni). Afin d'étudier un peu plus finement l'effet du remplissage, j'ai inclus dans ce calcul des matériaux fictifs ayant des nombres d'électrons intermédiaires. Il est à noter que le manganèse est antiferromagnétique, alors que nous n'étudions ici que l'état ferromagnétique. Le tableau 7-6 rassemble les résultats.

Tableau 7-6

N_v	7 (Mn)	7,5	8 (Fe)	8,5	9 (Co)	9,5	10 (Ni)
cfc (001) K_2 (10^{-3} eV/atome)	0,98	1,10	0,00	-1,38	-1,98	-2,11	-0,86
cfc (111) K_2 (10^{-3} eV/atome)	1,37	0,80	-0,61	-1,12	-2,47	-1,13	-0,43

On constate que l'anisotropie magnétocristalline dépend fortement du remplissage de la bande de valence. Ce fait s'explique assez simplement: dans l'équation (7-21), à cause de la présence au dénominateur de la différence d'énergie $\epsilon' - \epsilon$ entre états situés de part et d'autre de ϵ_F , l'anisotropie dépend essentiellement du voisinage du niveau de Fermi. Elle peut donc varier sensiblement lorsque ϵ_F se déplace par suite du remplissage de la bande de valence.

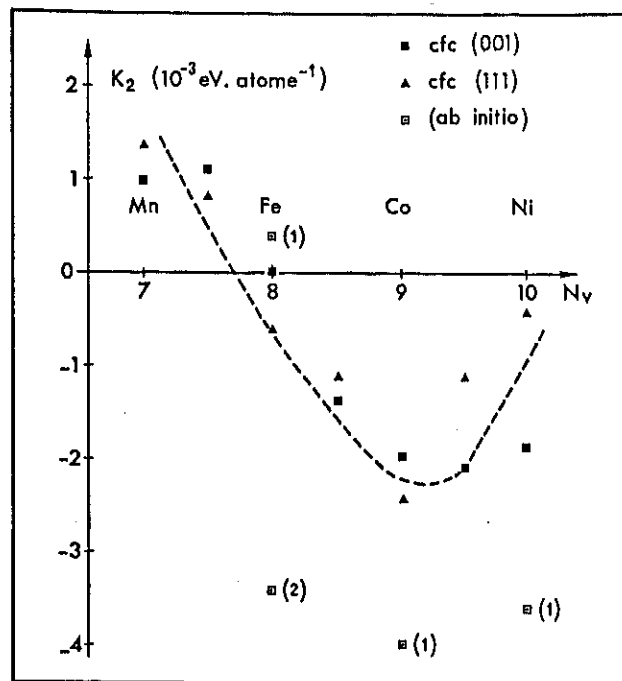


Figure 7-7: Constante d'anisotropie K_2 calculée, pour des films monoatomiques cfc (001) et (111), en fonction du nombre N_v d'électrons de valence, et résultats de calculs *ab initio*: (1) Gay et Richter (1986, 1987), (2) Karas et col. (1988).

Peut-on aller plus loin, et tenter de dégager des lois générales pour l'anisotropie? J'ai représenté sur la figure 7-7, la variation de l'anisotropie magnétocristalline, en fonction du nombre d'électrons de valence, ainsi que les résultats obtenus par d'autres auteurs.

- (i) bien que les valeurs numériques ne soient pas exactement les mêmes, l'énergie d'anisotropie pour les orientations (001) et (111) a essentiellement la même dépendance par rapport au remplissage de la bande de valence (courbe en pointillés sur la figure 7-7); une forme de variation similaire est obtenue par Desjonquères et col. (1988). Ceci suggère que l'anisotropie dépend d'une façon systématique du remplissage de la bande de valence, les détails de la structure de bande n'ayant qu'une importance secondaire.
- (ii) les résultats obtenus par Gay et Richter (1987) pour le cobalt et le nickel sont du même signe que les nôtres, leurs valeurs numériques étant plus grandes;

(iii) par contre, pour le fer, les anisotropies calculées par Gay et Richter (1987) et par Karas et col. (1988) sont de signes opposés; ceci provient peut-être du fait que le fer correspond environ à la valeur du remplissage pour laquelle l'anisotropie s'annule sur notre courbe, rendant ainsi le calcul plus sensible aux détails.

En ce qui concerne le cobalt, on trouve une anisotropie magnétocristalline négative, c'est-à-dire favorisant l'aimantation dans le plan. Ceci est en contradiction flagrante avec les résultats expérimentaux. Toutefois, il faut bien garder à l'esprit que le système étudié ici est fort éloigné de la situation expérimentale:

- (i) on n'a pas tenu compte de la présence d'un substrat; la modification de la structure électronique, notamment du champ cristallin, par ce dernier peut affecter profondément l'anisotropie magnétocristalline.
- (ii) d'autres mécanismes d'anisotropie peuvent coexister et entrer en compétition avec celui de l'*anisotropie magnétocristalline de surface*, étudié dans ce chapitre (cf chapitre 8).

7-5. Moment orbital dans des films monoatomiques de métaux de transition

Ainsi que je l'ai signalé au début de ce chapitre, le moment magnétique orbital des films ultraminces ferromagnétiques n'a jamais été calculé jusqu'à maintenant, les auteurs ayant probablement été rebutés par l'apparente difficulté du calcul. L'utilisation de la théorie des perturbations permet pourtant de l'obtenir pour ainsi dire gratuitement, moyennant l'ajout d'une ligne dans le programme de calcul de l'énergie d'anisotropie.

7-5.1. Arguments qualitatifs en faveur d'une anisotropie du moment magnétique

L'idée qui se trouve à l'origine de cette étude du moment orbital procède des considérations suivantes:

- (i) l'énergie d'anisotropie et le déblocage du moment orbital trouvent tous deux leur origine dans le couplage spin-orbite;
- (ii) dans un matériau cubique massif, à cause de la haute symétrie de l'environnement cristallin, l'énergie d'anisotropie est très faible (de

l'ordre de 10^{-6} à 10^{-5} eV/atome) et, corrélativement, il en est de même pour l'anisotropie du moment orbital (de l'ordre de 10^{-4} μ_B /atome);
 (iii) dans un film monoatomique, ou à une surface, à cause de la symétrie réduite, l'énergie d'anisotropie peut devenir considérablement plus grande (jusqu'à 10^{-3} eV/atome); dès lors, ne doit-on pas s'attendre à ce que l'anisotropie du moment orbital soit elle aussi beaucoup plus importante dans un film ultramince que dans un matériau massif?

J'ai effectué le calcul de perturbation au paragraphe 7-2, de façon à mettre clairement en évidence la profonde corrélation formelle entre l'énergie d'anisotropie et le moment orbital. Il apparaît des équations (7-20) à (7-22) que leur dépendance angulaire est la même; de plus, l'ordre de grandeur auquel on peut s'attendre est le même pour $G(\mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4)$ (éq. (7-21)) et $H(\mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4)$ (éq. (7-22)). En ordre de grandeur, l'énergie d'anisotropie ΔE et l'anisotropie ΔM du moment magnétique doivent donc vérifier

$$\frac{\Delta E}{\Delta M} \approx \frac{\xi}{4\mu_B} \quad (7-37)$$

Avec une énergie d'anisotropie de l'ordre de 10^{-3} eV/atome et une constante de couplage spin-orbite de l'ordre de 0,05 eV, on peut ainsi s'attendre à une anisotropie du moment magnétique allant jusqu'à 0,1 μ_B /atome.

Remarquons que la même règle s'applique pour les matériaux massifs, puisque pour le fer et le nickel, aussi bien théoriquement qu'expérimentalement, on a $\Delta E/\Delta M \approx 0,02$ à $0,12$ eV/ $\mu_B \approx \xi/\mu_B$ (Fritsche et col., 1987). On pourrait l'établir d'une façon analogue, à l'aide d'un calcul de perturbation au quatrième ordre.

7-5.2. Résultats des calculs de moment orbital

Le tableau 7-7 donne la valeur moyenne $(M_L^{\parallel} + M_L^{\perp})/2$ et l'anisotropie $(M_L^{\parallel} - M_L^{\perp})$ du moment magnétique orbital calculées pour des films monoatomiques cfc (001) et (111) ayant différents nombres d'électrons de valence, ainsi que la valeur expérimentale du moment orbital du matériau massif correspondant (Wohlfarth, 1980).

La valeur moyenne du moment magnétique orbital est en accord avec celle du métal massif correspondant, tant pour le signe, que pour l'allure de la variation en fonction du nombre d'électrons de valence; ceci est dû au fait

Tableau 7-7

N_v		8 (Fe)	8,5	9 (Co)	9,5	10 (Ni)
$\frac{1}{2}(M_L^{\parallel} + M_L^{\perp})$ (μ_B /atome)	cfc (001)	0,15	0,19	0,23	0,20	0,11
	cfc (111)	0,15	0,16	0,20	0,13	0,07
	massif	0,09		0,15		0,05
$(M_L^{\parallel} - M_L^{\perp})$ (μ_B /atome)	cfc (001)	0,03	0,14	0,20	0,21	0,08
	cfc (111)	0,09	0,13	0,24	0,10	0,04

que la contribution isotrope au moment orbital est peu sensible à la symétrie du site cristallographique, et aux détails de la structure de bandes. Le signe positif correspond au fait que la bande 3d est plus qu'à demi remplie.

Le point important est que l'on obtient effectivement une anisotropie du moment magnétique, valant en moyenne $0,1 \mu_B$ /atome, ce qui est précisément ce que j'avais estimé à l'aide d'arguments qualitatifs au paragraphe 7-5.1. La variation de l'anisotropie du moment magnétique par rapport au nombre d'électrons de valence a une allure similaire pour les orientations (001) et (111). On a probablement, ici aussi, une dépendance systématique par rapport au remplissage de la bande de valence.

La prédiction d'une anisotropie importante (par rapport au cas du matériau massif) du moment magnétique constitue un résultat nouveau. Je me suis efforcé de le mettre en évidence avant tout à l'aide d'arguments de symétrie et d'ordres de grandeur, plutôt que par les calculs numériques auxquels peut être reproché leur caractère semi-empirique. Quoiqu'il en soit, il me semble important que ce résultat soit confirmé par d'autres auteurs, si possible par des calculs de type *ab initio*. Certes, de tels calculs sont beaucoup plus difficiles que ceux que j'ai présenté ici; néanmoins ils ne le sont pas plus que ceux de l'énergie d'anisotropie, puisque, comme je l'ai montré, ce sont essentiellement les mêmes. On peut donc raisonnablement espérer que dans un avenir proche, des publications théoriques viendront confirmer l'existence d'une anisotropie du moment magnétique dans les films ferromagnétiques ultraminces.

7-5.3. L'anisotropie du moment magnétique peut-elle être observée expérimentalement?

Il peut paraître quelque peu stérile ou académique de prévoir théoriquement des effets trop petits pour être mis en évidence expérimentalement. Il importe donc de discuter la mesurabilité de cette anisotropie du moment magnétique.

J'ai évalué cette dernière à environ $0,1 \mu_B$ /atome. La surface typique d'un échantillon étant de 1 cm^2 , et la surface occupée par un atome de l'ordre de 5 \AA^2 , l'anisotropie de moment magnétique à mesurer se monte environ à 2×10^{-6} uem cgs.

La sensibilité en moment magnétique des magnétomètres les plus sensibles (magnétomètre à SQUID, Piezomagnétomètre) est de quelques 10^{-8} uem cgs. Néanmoins, on n'a pas une telle précision pour l'aimantation spontanée; en effet, ainsi que nous l'avons vu au chapitre 4, la mesure de cette dernière est affectée sérieusement par le problème de la soustraction de la contribution du support, et par la nécessité de faire une extrapolation à champ nul de mesures faites sous des champs de plusieurs dizaines de kOe. Dans des conditions favorables, et en travaillant très minutieusement, il me semble possible d'obtenir avec ces appareils une précision de quelques 10^{-7} uem cgs pour l'aimantation spontanée, ce qui rendrait mesurable l'effet prévu.

CHAPITRE 8

ANISOTROPIE INDUITE PAR
LES DEFORMATIONS INTERFACIALES

Lorsque les paramètres de maille du film magnétique et du substrat diffèrent, comme c'est le cas pour les films de cobalt sur or, il apparaît des déformations du réseau cristallin, lesquelles, par le biais du couplage magnétoélastique, donnent lieu à une anisotropie magnétique. Dans ce chapitre, j'étudie cette anisotropie due au désaccord de pas de réseau, son ordre de grandeur, et sa dépendance par rapport à l'épaisseur du film magnétique (Chappert et Bruno, 1988; Bruno et Seiden, 1988).

Je montre ainsi que, en première approximation, l'anisotropie induite par les déformations interfaciales se comporte comme une anisotropie de surface effective, qualitativement différente quant à son origine et ses conséquences physiques de l'*anisotropie magnétocristalline de surface* introduite par Néel, et que j'appellerai *anisotropie magnétoélastique de surface*. L'estimation de son ordre de grandeur suggère que ce mécanisme intervient pour une part importante sinon prépondérante dans l'anisotropie de surface observée expérimentalement dans les films Au/Co/Au.

8-1. Un modèle phénoménologique simple des déformations interfaciales

Le désaccord $\eta = (a_f - a_s) / a_s$ entre le pas de réseau a_s du substrat, et celui a_f du film magnétique induirait une énergie d'interface importante si chacun des matériaux en contact gardait rigidement son paramètre cristallin propre. Ce désaccord de maille peut être accommodé de deux façon différentes:

- (i) par une déformation homogène planaire du film, de manière à adopter le pas de réseau du substrat;
- (ii) par l'introduction de dislocations d'interfaces. Dans le cas simple représenté sur la figure 8-1 (deux réseaux cubiques simples (001)), ce sont des dislocations-coin, situées dans le plan de l'interface; le vecteur de Burgers est perpendiculaire à la ligne de dislocation, et parallèle au plan.

La configuration adoptée par le système résulte de la compétition énergétique entre les deux mécanismes (Frank et van der Merwe, 1949a,b). Le problème

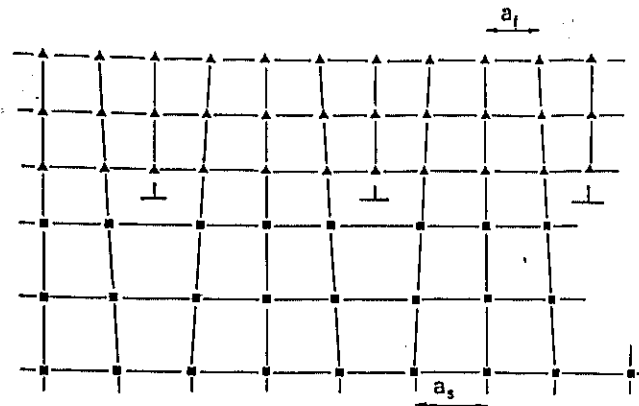


Figure 8-1: Schéma représentant les dislocations interfaciales; (■): atomes du substrat; (▲): atomes du film magnétique.

très complexe de la détermination de l'état d'équilibre, de la structure et de l'énergie des dislocations interfaciales a été abordé par de nombreux auteurs (Frank et van der Merwe, 1949a,b; van der Merwe, 1963a,b; van der Merwe, 1970; Snyman et van der Merwe, 1974a,b; Snyman et Snyman, 1981; Milchev et Markov, 1984; Markov et Milchev, 1984a,b).

Je propose ici un modèle phénoménologique expliquant très simplement l'ensemble des phénomènes observés. L'hypothèse sur laquelle est fondé ce modèle est que l'énergie associée aux dislocations d'interface peut être prise en compte sous la forme d'une tension de ligne de dislocation μ . Ceci revient à négliger l'interaction entre dislocations, et avec la surface libre. Cette approximation se justifie par le fait que l'énergie de la dislocation dépend surtout du champ de déformation en son coeur.

Sous l'effet d'une déformation homogène ϵ , le paramètre de réseau du film devient

$$a = a_f (1 + \epsilon), \tag{8-1}$$

et l'énergie élastique associée vaut, à l'approximation de Hooke,

$$E_{el} = V \frac{1}{2} C \epsilon^2, \tag{8-2}$$

où V est le volume du film et C une constante d'élasticité.

La distance moyenne d entre dislocations est donnée par la période de

vernier

$$\frac{1}{d} = \left| \frac{1}{a} - \frac{1}{a_s} \right| \approx \frac{1}{a_f} |\epsilon + \eta|, \quad (8-3)$$

et l'énergie due aux dislocations vaut

$$E_{dis} = S \mu \frac{\alpha}{d} \approx S \mu \alpha \frac{1}{a_f} |\epsilon + \eta|, \quad (9-4)$$

où α est un facteur numérique dépendant de l'arrangement géométrique des dislocations (α vaut 2 dans le cas simple où elles forment un grillage à maille carrée).

L'état d'équilibre s'obtient en minimisant l'énergie totale $E_e + E_{dis}$ par rapport à ϵ . Nous obtenons alors très simplement le résultat suivant:

(i) lorsque l'épaisseur est inférieure à une épaisseur critique

$$e_c \approx \frac{\alpha \mu}{a_f C |\eta|}, \quad (8-5)$$

il y a pseudomorphisme total, et la densité de dislocation est nulle.

(ii) pour des épaisseurs supérieures à e_c , il y a coexistence d'un pseudomorphisme partiel et de dislocations interfaciales; la déformation vaut

$$\epsilon \approx -\eta \frac{e_c}{e}, \quad (8-6)$$

et la densité de dislocations

$$\frac{1}{d} \approx \frac{|\eta|}{a_f} \left(1 - \frac{e_c}{e} \right). \quad (8-7)$$

(iii) lorsque $|\eta|$ est trop grand, e_c est inférieure à l'épaisseur d'un plan atomique; cela signifie qu'il n'y a alors jamais pseudomorphisme total; e_c perd bien sûr sa signification d'épaisseur critique, mais les formules (8-6) et (8-7) restent valables.

La figure 8-2 montre la variation par rapport à l'épaisseur de la déformation ϵ et de la densité de dislocations $1/d$. Ce comportement s'interprète

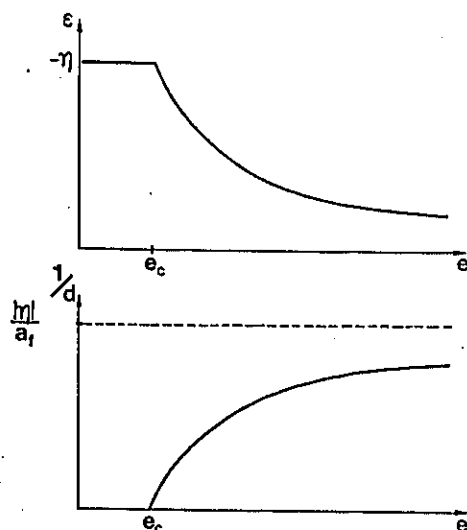


Figure 8-2: Variation par rapport à l'épaisseur de la déformation ϵ et de la densité de dislocations $1/d$.

simplement: l'énergie élastique est proportionnelle au volume total du film, et dépend quadratiquement de la déformation ϵ , alors que l'énergie associée aux dislocations est proportionnelle à l'aire du film, et dépend linéairement de ϵ ; il en résulte que le pseudomorphisme est favorisé pour de faibles épaisseurs, et de faibles valeurs de $|\eta|$, tandis que, pour des valeurs importantes de $|\eta|$ et de l'épaisseur, l'accomodation du désaccord par les dislocations interfaciales est énergétiquement plus favorable. Le changement de régime à l'épaisseur critique provient du fait que la densité de dislocations s'exprime comme une valeur absolue $|\epsilon + \eta|$.

Ordres de grandeur:

- pour le cobalt, l'énergie élastique par unité de volume s'écrit

$$\begin{aligned} \frac{E_{el}}{V} = & \frac{1}{2} c_{11} (\epsilon_{11}^2 + \epsilon_{22}^2) + c_{12} \epsilon_{11} \epsilon_{22} + \frac{1}{2} c_{33} \epsilon_{33}^2 + c_{13} (\epsilon_{11} + \epsilon_{22}) \epsilon_{33} \\ & + \frac{1}{2} c_{44} (\epsilon_{13}^2 + \epsilon_{23}^2) + (c_{11} - c_{12}) \epsilon_{12}^2; \end{aligned} \quad (8-8)$$

la déformation ϵ étant planaire isotrope, nous avons $\epsilon_{11} = \epsilon_{22} = \epsilon$ et $\epsilon_{12} = \epsilon_{13} = \epsilon_{23} = 0$. Par ailleurs, il n'y a pas de contrainte normalement au plan et le film est libre de se déformer verticalement pour minimiser son énergie

élastique; la déformation correspondante est

$$\epsilon_{33} = - \frac{2c_{13}}{c_{33}} \epsilon \quad (8-9)$$

L'énergie élastique s'exprime alors en fonction de la déformation planaire ϵ

$$\frac{E_{el}}{V} = \frac{1}{2} 2 \left(c_{11} + c_{12} - \frac{2c_{13}^2}{c_{33}} \right) \epsilon^2 = \frac{1}{2} C \epsilon^2, \quad (8-10)$$

et en utilisant les valeurs des constantes d'élasticité mesurées par Mac Skimin (1953), nous obtenons $C=8,2 \times 10^{12} \text{erg.cm}^{-2}$;

- l'ordre de grandeur de la tension de dislocation est $\mu \approx 4 \times 10^{-4} \text{erg.cm}^{-1}$ (Kittel, 1983);

- sachant que le désaccord de maille entre l'or (111) et le cobalt (0001) est $\eta=-14\%$, nous pouvons évaluer l'épaisseur critique pour du cobalt sur or à $e_c \approx 3\text{Å}$.

Les résultats prédits par ce modèle simple sont comparés sur la figure 8-3 à ceux obtenus expérimentalement par Renard et col. (1989), pour les films de cobalt sur or. Compte tenu de la dispersion des résultats expérimentaux, l'accord peut être considéré comme satisfaisant, sauf pour le premier plan atomique, pour lequel le modèle prévoit une structure pseudomorphique, en contradiction avec l'expérience; ce dernier point n'est pas très étonnant, car aux très faibles épaisseurs, l'approximation consistant à négliger l'interaction des dislocations avec la surface est très grossière.

Un accord meilleur est obtenu dans le cas de films de nickel (001) sur cuivre (001), pour lequel le désaccord paramétrique est beaucoup plus faible; les résultats des mesures de Matthews et Crawford (1970) sont comparés à la courbe théorique sur la figure 8-4.

Les résultats ci-dessus montrent que ce modèle, en dépit de son extrême simplicité, décrit de façon tout à fait satisfaisante l'essentiel des phénomènes physiques associés au désaccord de maille interfacial. Je ne me suis intéressé ici qu'à l'état d'énergie minimale, de sorte que tous les problèmes de métastabilité liés à l'activation énergétique des dislocations interfaciales ont été négligés dans cette approche. Une telle étude m'éloignerait trop de mon propos.

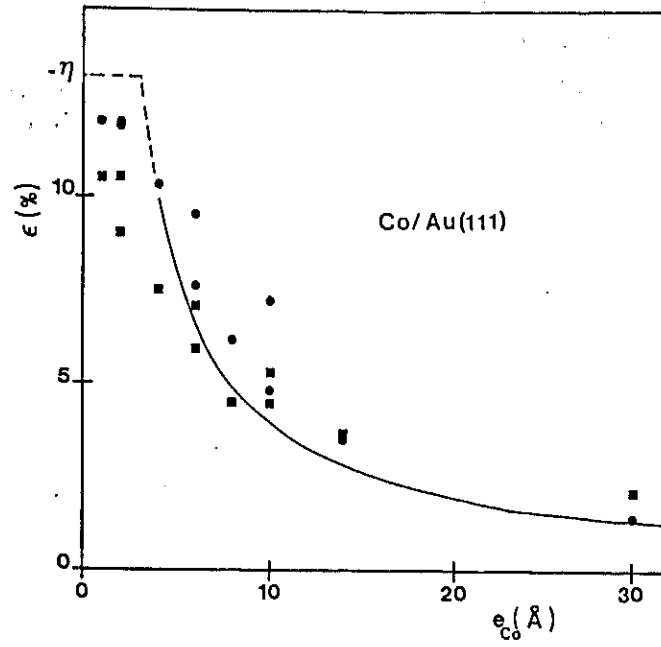


Figure 8-3: Variation de la déformation d'un films de cobalt sur or, en fonction de l'épaisseur de cobalt: courbe théorique, et résultats expérimentaux de Renard et col. (1989).

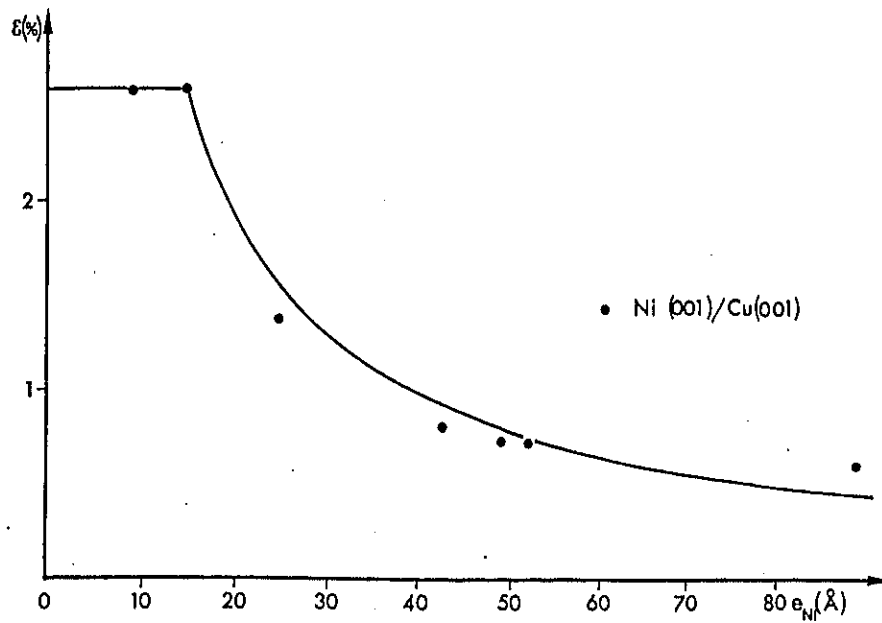


Figure 8-4: Variation calculée théoriquement de la déformation d'un film de Ni (001) sur Cu (001) en fonction de l'épaisseur de Ni, comparée avec les résultats expérimentaux de Matthews et Crawford (1970).

8-2. Anisotropie due aux déformations interfaciales: un mécanisme d'anisotropie de surface alternatif à celui de Néel

Nous savons que, par le biais du couplage magnétoélastique, toute déformation entraîne l'apparition d'une énergie d'anisotropie magnétique. Dans le cas d'une déformation planaire homogène du film, l'anisotropie induite est uniaxiale, d'axe perpendiculaire au plan du film. L'énergie magnétoélastique due aux déformations interfaciales est

$$E_{ME} = V B \epsilon \sin^2 \theta, \quad (8-11)$$

où B est une constante magnétoélastique du matériau, et θ l'angle polaire entre l'aimantation et la normale au plan. Les déformations dues aux dislocations d'interface ont une contribution nulle, car leur valeur moyenne est zéro.

Pour des épaisseurs supérieures à l'épaisseur critique de pseudomorphisme, ϵ étant inversement proportionnelle à l'épaisseur, nous obtenons ainsi une énergie d'anisotropie proportionnelle à la surface du film:

$$E_{ME} = S B (-\eta) e_c \sin^2 \theta = S K_S^{ME} \sin^2 \theta, \quad (8-12)$$

où K_S^{ME} est une constante d'anisotropie de surface. Je n'ai considéré jusqu'ici que le cas d'un film en contact avec un substrat et présentant une surface libre; on peut se convaincre très simplement que, le résultat s'étend au cas d'un film recouvert, si l'épaisseur de couverture est grande devant celle du film; les anisotropies magnétoélastiques dues aux déformations des deux interfaces sont alors additives. Ceci est vrai dans le cadre strict du modèle, et suppose, en particulier, que les deux interfaces soient identiques; dans la situation réelle, il peut en aller autrement, bien sûr, mais ceci ne peut pas être pris en compte par un modèle aussi simple.

L'anisotropie de surface due à ce mécanisme, que j'appellerai dorénavant *anisotropie magnétoélastique de surface* est fort différente de celle due au mécanisme proposée par Néel, ou *anisotropie magnétocristalline de surface* (afin d'abréger, dans la suite du texte, j'appellerai ces deux mécanismes respectivement *magnétoélastique* et *magnétocristallin*).

En effet, je rappelle que dans le mécanisme *magnétocristallin*, l'anisotropie de surface provient du fait que les atomes situés à la surface, ayant un environnement cristallin dissymétrique, ont une énergie d'anisotropie très

grande, celle des atomes situés à l'intérieur du film étant en revanche comparativement négligeable; on peut donc dire que l'énergie d'anisotropie est localisée au voisinage des faces du film, indépendamment de l'épaisseur.

Par contre, dans le cas du mécanisme *magnétoélastique*, l'anisotropie, étant due à une déformation *homogène* du film, est répartie uniformément dans l'épaisseur; et c'est la variation inversement proportionnelle à l'épaisseur de cette déformation homogène qui donne lieu au caractère *de surface* de cette anisotropie.

Les deux mécanismes diffèrent donc par leur origine physique, et par la distribution spatiale de l'énergie d'anisotropie; ceci doit donner lieu à des conséquences physiques différentes pour les deux mécanismes.

En effet, pour des épaisseurs importantes, la grande anisotropie d'un atome de surface dans le cas du mécanisme *magnétocristallin* cause un ancrage de l'aimantation à la surface; dans le cas du mécanisme *magnétoélastique*, cet ancrage n'a pas lieu. De l'existence d'un ancrage superficiel de l'aimantation dans un cas et pas dans l'autre, il résulte des spectres de modes propres d'excitation différents, pour des vecteurs d'onde k_z non nuls (c'est-à-dire pour des modes non homogènes en z): l'ancrage favorise la présence d'un noeud de vibration à l'interface, alors que l'absence d'ancrage favorise la présence d'un ventre de vibration; le profil d'aimantation dans le film à température non nulle doit donc être différent pour les deux mécanismes.

La présence ou l'absence d'ancrage superficiel, devrait pouvoir être testée par résonance d'ondes de spins, ce qui permettrait de discerner le mécanisme *magnétocristallin* du mécanisme *magnétoélastique*.

Une autre différence entre ces deux mécanismes est l'existence d'un plateau de l'anisotropie pour des épaisseurs inférieures à l'épaisseur critique de pseudomorphisme. Cette épaisseur est en général très faible (quand elle existe), et non accessible par des mesures de résonance ferromagnétique.

8-3. Comparaison avec les résultats expérimentaux

Dans le cas du cobalt (0001), l'énergie magnétoélastique par unité de volume s'écrit

$$\frac{E_{ME}}{V} = B \epsilon \sin^2 \theta = \left[\frac{(2c_{13}^2 - (c_{11} + c_{12})c_{33})}{c_{33}} (\lambda_A + \lambda_B) \right] \epsilon \sin^2 \theta; \quad (8-13)$$

en utilisant les valeurs des c et des λ mesurées respectivement par Mac Skimin (1953), et par Hubert et col. (1969), nous obtenons $B=6,5 \times 10^8 \text{ erg.cm}^{-3}$. A partir des résultats expérimentaux de Renard et col. (1989), nous pouvons alors évaluer la constante d'anisotropie magnétoélastique de surface des films Au/Co/Au:

$$K_s^{ME} = 1 \text{ à } 2 \text{ erg.cm}^{-2}. \quad (8-14)$$

En comparant ce résultat à la valeur mesurée expérimentalement par résonance ferromagnétique, $K_s^{exp} = 0,5 \text{ erg.cm}^{-2}$, à température ambiante, nous pouvons conclure que le mécanisme *magnétoélastique* contribue pour une part importante à l'anisotropie de surface observée expérimentalement. La valeur obtenue théoriquement est nettement plus grande que celle observée expérimentalement; ceci est peut-être lié au fait que, comme je l'ai montré au chapitre précédent, la contribution du mécanisme *magnétocristallin* semble être négative pour le cobalt. Nous pouvons donc conjecturer que l'anisotropie de surface observée expérimentalement est la somme d'une contribution négative due au mécanisme *magnétocristallin* et d'une contribution positive due au mécanisme *magnétoélastique*, cette dernière étant prépondérante.

En tous cas, cette étude montre que l'interprétation des résultats expérimentaux est rendue extrêmement hasardeuse, du fait de la présence compétitive de plusieurs mécanismes, et qu'il faut prendre soin d'étudier l'ordre de grandeur possible de chacun de ces mécanismes avant de se prononcer.

CHAPITRE 9

EFFETS DE LA RUGOSITE SUR L'ANISOTROPIE
MAGNETIQUE DES FILMS ULTRAMINCES

Les films ultraminces étudiés expérimentalement présentent inévitablement une certaine rugosité, alors que les études théoriques concernent généralement des systèmes parfaitement plans. Dès lors, la comparaison des résultats théoriques et expérimentaux devient problématique, et il est nécessaire d'évaluer l'ordre de grandeur des effets associés à la rugosité. C'est ce que je me propose de faire dans ce chapitre.

Plus particulièrement, je m'intéresserai à la modification par la rugosité de l'anisotropie dipolaire de forme (Bruno, 1988b), d'une part, et de l'anisotropie magnétocristalline de surface (Bruno, 1988a), d'autre part.

9-1. Modélisation de la rugosité

La connaissance expérimentale que nous avons de la rugosité des films ultraminces est très sommaire, et de caractère statistique. Il importe donc, dans la description théorique, de la caractériser à l'aide d'un nombre de paramètres aussi restreint que possible.

Si l'on définit $z(x,y)$ comme étant la cote d'une surface (ou interface), et \bar{z} sa valeur moyenne, $\delta z(x,y) = z(x,y) - \bar{z}$ représente l'écart à la planéité. On appelle *amplitude de rugosité* σ la racine carrée de la valeur quadratique moyenne de δz , soit

$$\sigma = \sqrt{(\delta z)^2}, \quad (9-1)$$

et *longueur de corrélation de rugosité* ξ , la longueur caractérisant l'extension latérale des zones planes. σ et ξ sont représentés sur la figure 9-1. Je suppose qu'il n'y a pas de corrélation entre les rugosités des deux interfaces.

Pour les films Au/Co/Au, d'après les études de caractérisation (cf chapitre 2), nous avons $\sigma \approx 2 \text{ \AA}$ et $\xi \approx 300 \text{ \AA}$, pour la première interface (il

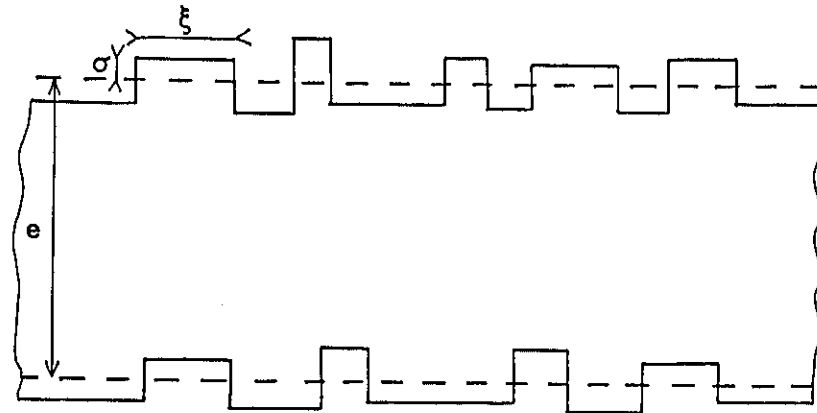


Figure 9-1: Représentation schématique d'un film présentant de la rugosité, montrant la signification de l'amplitude de rugosité σ et de la longueur de corrélation ξ .

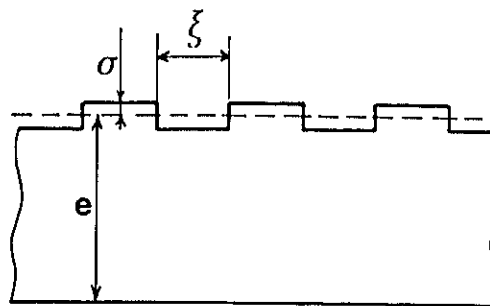


Figure 9-2: Modélisation de la rugosité.

est à noter que si de nombreuses techniques permettent d'obtenir une estimation de σ , il n'en est pas de même pour ξ ; à cet égard, la technique de microscopie électronique en champ sombre utilisée par D. Renard pour mesurer la taille des terrasses atomiquement planes sur la surface d'or est tout à fait intéressante). Pour la seconde interface, il est plus difficile d'être quantitatif; $\sigma \approx 4 \text{ \AA}$ et $\xi \approx 100 \text{ \AA}$ semblent être des valeurs raisonnables. Pour les calculs, je prendrais des valeurs moyennes pour les deux interfaces, soit: $\sigma \approx 3 \text{ \AA}$ et $\xi \approx 200 \text{ \AA}$.

Afin de rendre les calculs plus aisés, je supposerai que la surface est constituée d'un réseau carré de terrasses et de cratères de côté ξ et ayant

respectivement pour hauteur et pour profondeur σ , comme le montre la figure 9-2. Cette approximation permet de mener les calculs de façon entièrement analytique; elle est basée sur l'hypothèse que l'effet de la rugosité dépend seulement de σ et ξ , et pas des détails de la rugosité.

9-2. Effet de la rugosité sur l'anisotropie dipolaire de forme

J'étudie ici l'effet de la rugosité sur l'anisotropie dipolaire (due à l'interaction magnétostatique entre spins). Je fais tout d'abord l'hypothèse que l'aimantation est uniforme *en grandeur* dans tout l'échantillon. Je suppose ensuite que la *direction* de l'aimantation est uniforme; pour un film rugueux, ceci n'est vrai que si l'on applique un champ statique suffisamment grand, ce qui correspond à la situation expérimentale d'une mesure d'anisotropie. Pour obtenir l'anisotropie dipolaire, il nous faut calculer l'énergie magnétostatique en fonction de la direction de l'aimantation. Je ferai cette étude dans le cadre de l'électrodynamique macroscopique (approximation du milieu continu), c'est-à-dire que je négligerai les effets dus à la nature discrète de la répartition atomique. Il faut malgré tout garder présent à l'esprit que l'électrodynamique macroscopique fait intervenir des moyennes spatiales sur des distances grandes devant la distance interatomique, et qu'elle n'est, en toute rigueur, pas applicable pour des films ultraminces.

L'énergie dipolaire s'écrit

$$E_{dip} = \int_V -\frac{1}{2} \vec{M} \cdot \vec{H} dV, \quad (9-2)$$

où l'intégrale est étendue au volume V de l'échantillon, et \vec{H} est le champ créé par la divergence de l'aimantation \vec{M} , (champ démagnétisant); il vérifie les équations de Maxwell:

$$\text{rot } \vec{H} = \vec{0}, \quad (9-3)$$

$$\text{div } \vec{H} = -4\pi \text{div } \vec{M}, \quad (9-4)$$

de sorte que l'on peut considérer \vec{H} comme un champ de gradient dont le potentiel est produit par la densité de pseudo-charges $\rho = -\text{div } \vec{M}$.

Dans un film aux faces parfaitement planes, la composante perpendiculaire de l'aimantation produit sur les faces du film des pseudo-charges magnéti-

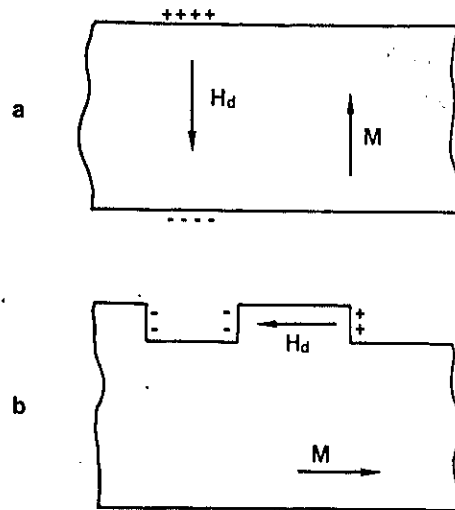


Figure 9-3: Pseudo-charges magnétiques et champ démagnétisant, (a) dans le cas d'un film parfait, (b) dans le cas d'un film rugueux.

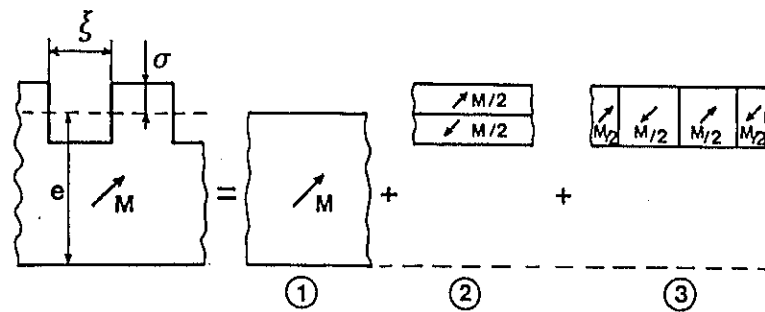


Figure 9-4: Schéma représentant la décomposition du film rugueux en la superposition de 3 distributions d'aimantation.

ques, induisant un champ qui lui est opposé (figure 9-3a); l'énergie magnétostatique est nulle quand l'aimantation est dans le plan, et vaut $2\pi M^2 V$ lorsque l'aimantation est perpendiculaire; l'énergie d'anisotropie dipolaire associée est bien connue, elle vaut

$$E_a^{dip} = \left(E_{dip}^{\parallel} - E_{dip}^{\perp} \right) \sin^2 \theta = V (-2\pi M^2) \sin^2 \theta. \quad (9-5)$$

Cette anisotropie dipolaire de forme est proportionnelle au volume de l'échantillon; elle contribue donc à la constante d'anisotropie de volume mesu-

rée expérimentalement.

Lorsque la surface du film est rugueuse, les pseudo-charges apparaissant sur les bords des terrasses créent champ démagnétisant parallèle au plan du film (figure 9-3b). Nous avons alors une énergie magnétostatique non nulle lorsque l'aimantation est dans le plan, et dont l'effet est de diminuer l'anisotropie dipolaire, car l'énergie magnétostatique satisfait à la règle de somme (Yafet et col. 1986b)

$$E_{dip}^x + E_{dip}^y + E_{dip}^z = 2E_{dip}^{\parallel} + E_{dip}^{\perp} = 2\pi M^2 V. \quad (9-6)$$

Avant d'effectuer le calcul proprement dit, faisons un petit raisonnement qualitatif: le champ démagnétisant parallèle au plan existe essentiellement dans les rugosités, donc l'énergie magnétostatique associée est proportionnelle à l'amplitude de rugosité, et non à l'épaisseur du film; nous obtenons donc une énergie d'anisotropie proportionnelle à la surface du film; par ailleurs, ce doit être une fonction croissante du rapport d'aspect σ/ξ de la rugosité.

Pour calculer l'énergie magnétostatique E_{dip}^{\perp} du film rugueux, je considère la densité d'aimantation \vec{M} comme étant la superposition de trois densités $\vec{M}_1, \vec{M}_2, \vec{M}_3$; cette décomposition est représentée sur la figure 9-4. Les densités d'aimantation \vec{M}_1, \vec{M}_2 et \vec{M}_3 induisent respectivement des champs \vec{H}_1, \vec{H}_2 et \vec{H}_3 ; le champ \vec{H} est la somme de ces trois champs. L'énergie magnétostatique est donnée par la formule (9-2), qui devient ici

$$\begin{aligned} E_{mag}^{\perp} = & \int -\frac{1}{2} \vec{M}_1 \cdot \vec{H}_1 dV + \int -\frac{1}{2} \vec{M}_2 \cdot \vec{H}_2 dV + \int -\frac{1}{2} \vec{M}_3 \cdot \vec{H}_3 dV \\ & + \int -\frac{1}{2} (\vec{M}_1 \cdot \vec{H}_2 + \vec{M}_2 \cdot \vec{H}_1) dV + \int -\frac{1}{2} (\vec{M}_2 \cdot \vec{H}_3 + \vec{M}_3 \cdot \vec{H}_2) dV \\ & + \int -\frac{1}{2} (\vec{M}_3 \cdot \vec{H}_1 + \vec{M}_1 \cdot \vec{H}_3) dV. \end{aligned} \quad (9-7)$$

Les deux premiers termes se calculent aisément, et valent respectivement

$$\int -\frac{1}{2} \vec{M}_1 \cdot \vec{H}_1 dV = eS 2\pi M^2, \text{ et} \quad (9-8)$$

$$\int -\frac{1}{2} \vec{M}_2 \cdot \vec{H}_2 dV = 2\sigma S 2\pi \left(\frac{M}{2}\right)^2. \quad (9-9)$$

Nous obtenons facilement les trois derniers termes en remarquant que

$$\int -\frac{1}{2} \vec{M}_i \cdot \vec{H}_j dV = \int \frac{1}{8\pi} \vec{H}_i \cdot \vec{H}_j dV = \int -\frac{1}{2} \vec{M}_j \cdot \vec{H}_i dV; \quad (9-10)$$

étant donné que \vec{H}_1 et \vec{H}_2 sont uniformes et \vec{M}_3 alterné, nous obtenons

$$\int -\frac{1}{2} (\vec{M}_1 \cdot \vec{H}_3 + \vec{M}_3 \cdot \vec{H}_1) dV = \int -\vec{M}_3 \cdot \vec{H}_1 dV = 0, \quad (9-11)$$

$$\int -\frac{1}{2} (\vec{M}_2 \cdot \vec{H}_3 + \vec{M}_3 \cdot \vec{H}_2) dV = \int -\vec{M}_3 \cdot \vec{H}_2 dV = 0, \quad (9-12)$$

et

$$\int -\frac{1}{2} (\vec{M}_1 \cdot \vec{H}_2 + \vec{M}_2 \cdot \vec{H}_1) dV = -\sigma S 4\pi M \left(\frac{M}{2}\right). \quad (9-13)$$

Seul le calcul du troisième terme est un peu délicat; il est présenté dans l'Appendice 4. Nous obtenons finalement

$$\int -\frac{1}{2} \vec{M}_3 \cdot \vec{H}_3 dV = 2\sigma S 2\pi \left(\frac{M}{2}\right)^2 f\left(\frac{\sigma}{\xi}\right), \text{ avec} \quad (9-14)$$

$$f(x) = \frac{4^3}{x\pi^4} \sum_{n=0}^{+\infty} \sum_{m=0}^{+\infty} \frac{1 - \exp\left(-x\sqrt{(2n+1)^2 + (2m+1)^2}\right)}{(2n+1)^2 (2m+1)^2 \sqrt{(2n+1)^2 + (2m+1)^2}}. \quad (9-15)$$

La fonction f est représentée sur la figure 9-5. Dans le cas où les deux faces du film sont rugueuses mais décorréelées, nous pouvons ajouter les énergies magnétostatiques correspondantes.

En utilisant la règle de somme (9-6), nous trouvons donc l'expression de l'énergie d'anisotropie dipolaire:

$$E_a^{dip} = \left(E_{dip}^{\parallel} - E_{dip}^{\perp} \right) \sin^2 \theta = \left(V K_V^{dip} + 2S K_S^{dip} \right) \sin^2 \theta, \quad (9-16)$$

avec

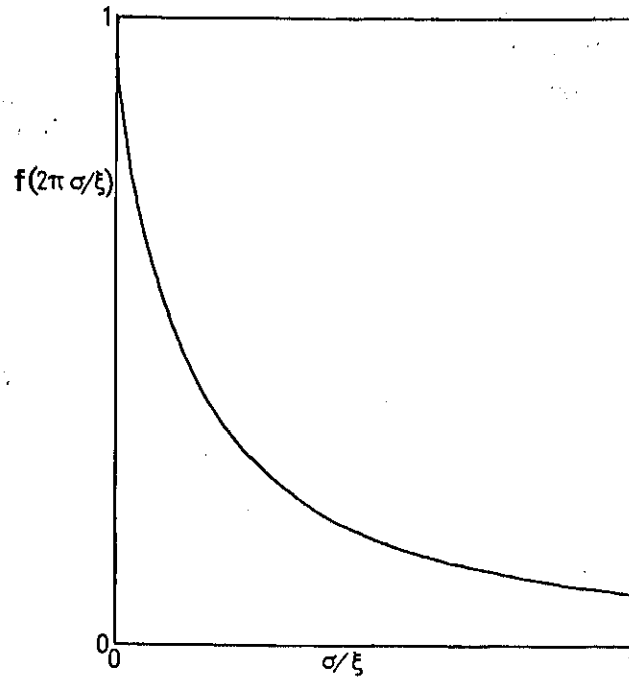


Figure 9-5: Représentation graphique de la fonction $f(2\pi\sigma/\xi)$.

$$\left. \begin{aligned} K_v^{dip} &= -2\pi M^2, \\ K_s^{dip} &= \frac{3\sigma}{4} 2\pi M^2 \left[1 - f\left(2\pi \frac{\sigma}{\xi}\right) \right]. \end{aligned} \right\} \quad (9-17)$$

La dépendance en $\sin^2\theta$ dans l'équation (9-16) se justifie sans calcul, simplement à partir du fait que les interactions dipolaires ne peuvent donner que des harmoniques sphériques d'ordre 2.

L'anisotropie dipolaire se décompose donc en deux termes

- (i) un terme de volume qui n'est autre que l'anisotropie démagnétisante d'un film parfait;
- (ii) le terme de rugosité, lequel est un terme de surface, comme nous l'avions vu à l'aide d'un raisonnement qualitatif; ce terme est proportionnel à l'amplitude de rugosité σ , et est une fonction croissante du rapport d'aspect σ/ξ de la rugosité.

Pour nos films de cobalt, avec $\sigma \approx 3 \text{ \AA}$ et $\xi \approx 200 \text{ \AA}$, nous obtenons $K_s^{dip} \approx 0,03 \text{ erg.cm}^{-2}$. Ceci est beaucoup plus faible que la valeur mesurée expérimentalement $K_s^{exp} = 0,5 \text{ erg.cm}^{-2}$. L'effet de la rugosité sur l'anisotropie dipolaire de forme est donc négligeable pour des films de faible ru-

gosité; par contre, elle peut devenir très importante pour des films de forte rugosité, la situation extrême étant celle des films à structure colonnaire, pour lesquels une étude analogue a été effectuée par Yafet et col. (1986b).

9-3. Effet de la rugosité sur l'anisotropie magnétocristalline de surface

Aux chapitres 6 et 7, nous avons étudié l'anisotropie due à la rupture de symétrie de l'environnement cristallin d'un atome de surface, respectivement dans le cadre de la théorie de Néel, et dans celui du ferromagnétisme itinérant. Qu'advient-il de cette anisotropie lorsque la surface est rugueuse? Il est difficile d'étudier ce problème dans le cadre de la théorie des bandes, car cette dernière, étant basée sur le théorème de Bloch, fait largement appel à l'invariance par translation (dans le plan) du système, laquelle est brisée par la rugosité.

Pour ces raisons, j'étudierai l'effet de la rugosité sur l'anisotropie magnétocristalline de surface dans le cadre du modèle phénoménologique de Néel, dont la signification physique est transparente. Afin de simplifier les expressions, je ferai cette étude pour une surface cs (001); Les résultats seront immédiatement généralisables à un autre type de surface.

Je rappelle que dans la théorie de Néel (cf. chapitre 6), l'énergie d'anisotropie par atome vaut

$$w_A = \frac{1}{2} I \left(\tilde{S}_{11} \beta_1^2 + \tilde{S}_{22} \beta_2^2 + \tilde{S}_{33} \beta_3^2 \right), \quad (9-18)$$

avec les notations introduites au chapitre 6. Pour un atome situé dans la masse du matériau, $\tilde{S}_{11} = \tilde{S}_{22} = \tilde{S}_{33} = 2$, de sorte que l'anisotropie est nulle. Pour un atome de surface, à cause de la rupture de symétrie, $\tilde{S}_{11} = \tilde{S}_{22} = 2$ et $\tilde{S}_{33} = 1$, d'où une énergie d'anisotropie $w_A = \frac{1}{2} I \sin^2 \theta$. Mais, en présence de rugosité, les atomes situés sur des marches ont un environnement différent de ceux situés sur une terrasse ou un cratère; pour de tels atomes nous avons $\tilde{S}_{11} = 2$ et $\tilde{S}_{22} = \tilde{S}_{33} = 1$ ou bien $\tilde{S}_{22} = 2$ et $\tilde{S}_{11} = \tilde{S}_{33} = 1$; l'anisotropie moyenne par atome de marche vaut

$$w_A = \frac{1}{2} \left[\frac{1}{2} (\tilde{S}_{11} + \tilde{S}_{22}) - \tilde{S}_{33} \right] \sin^2 \theta = \frac{1}{4} \sin^2 \theta. \quad (9-19)$$

Chaque atome de marche contribue donc à une réduction de $\frac{1}{4} \sin^2 \theta$ par rapport à une surface parfaitement plane. La variation relative de la constante d'anisotropie de surface est donc

$$\frac{\Delta K_s}{K_s} = - \frac{1}{2} \frac{(\text{nombre d'atomes situés sur des marches})}{(\text{nombre d'atomes de surface})}, \quad \text{soit}$$

$$\frac{\Delta K_s}{K_s} = - \frac{2\sigma}{\xi}. \quad (9-20)$$

Ce résultat simple est physiquement transparent; il exprime que la rugosité induit une *réduction* de la constante d'*anisotropie magnétocristalline de surface*, quel que soit son signe. Cette réduction est proportionnelle au rapport d'aspect σ/ξ de la rugosité. Dans le cas de nos films Au/Co/Au, la réduction est négligeable. Mais pour des films très rugueux (plus précisément ayant un rapport σ/ξ non négligeable devant 1), par exemple s'il y a interdiffusion, l'anisotropie doit être fortement abaissée par la rugosité.

9-4. Comparaison avec des résultats expérimentaux

Dans les paragraphes ci-dessus, nous avons étudié l'effet de la rugosité sur l'anisotropie dipolaire et l'*anisotropie magnétocristalline de surface*. En revanche, il me semble plus difficile d'étudier l'effet de la rugosité sur l'anisotropie de surface issue du mécanisme *magnétoélastique* (cf chapitre 8). Nous pouvons néanmoins donner quelques arguments qualitatifs:

- (i) l'*anisotropie magnétoélastique de surface* est due à la déformation induite par le substrat;
- (ii) on conçoit aisément que la contrainte imposée par le substrat sera plus efficace si celui-ci est parfaitement plan que s'il présente des irrégularités, lesquelles favoriseront plutôt une adaptation du désaccord de maille par des défauts comme les dislocations, que par une déformation uniforme.

Pour résumer, nous pouvons dire que la rugosité abaisse l'anisotropie magnétique des films ultraminces, quelqu'en soit l'origine. Qu'en est-il du point

de vue expérimental?

La prédiction de l'influence de la rugosité sur l'anisotropie a été confirmée par des résultats expérimentaux de den Broeder et col. (1988): des multicouches Au/Co préparées par pulvérisation présentent des interfaces diffuses, et une anisotropie de surface faible ($K_s=0,1 \text{ erg.cm}^{-2}$); après recuit à 250°C, l'étude des pics de surstructure en diffraction X montrent une forte amélioration de la planéité des interfaces, et, corrélativement, une augmentation importante de l'anisotropie de surface ($K_s=0,45 \text{ erg.cm}^{-2}$) est observée. Des résultats analogues ont été obtenus par Renard et Renard (1989) sur des films simples Au/Co/Au.

CONCLUSION

J'ai abordé dans cette thèse l'étude expérimentale et théorique des propriétés magnétiques de films ultraminces de cobalt.

L'étude des spectres de résonance ferromagnétique et des cycles d'hystérésis a montré la présence d'une forte anisotropie à l'interface entre l'or et le cobalt. Cette anisotropie s'oppose au champ démagnétisant, et est responsable du basculement perpendiculairement au plan du film, de la direction de facile aimantation, pour des épaisseurs de cobalt inférieures à 11 Å.

J'ai observé, à basse température, une forte augmentation du champ coercitif, et à température ambiante, un important trainage de l'aimantation. L'interprétation de ces phénomènes, basée sur l'hypothèse de l'existence de parois et domaines, met en évidence le rôle crucial joué par la rugosité interfaciale, illustrant ainsi l'une des idées maîtresses de ce travail, à savoir l'influence considérable des caractéristiques structurales sur les propriétés magnétiques.

L'un des objectifs de ce travail était d'expliquer l'origine physique de la grande anisotropie d'interface observée expérimentalement dans les films de cobalt sur or. J'ai envisagé essentiellement deux mécanismes:

- (i) l'anisotropie magnétocristalline de surface suggérée par Néel, que j'ai étudiée à la fois dans le modèle de Néel, et dans le cadre de la théorie du magnétisme itinérant;
- (ii) l'anisotropie associée aux déformations induites par le désaccord paramétrique interfacial; un modèle phénoménologique m'a permis de montrer que ce mécanisme (que j'appelle mécanisme *magnétoélastique* pour le distinguer de celui de Néel) donne lieu également à une dépendance en $1/e$ de l'anisotropie totale, et est susceptible d'expliquer les observations pour les films de cobalt sur or.

J'ajouterai quelques remarques d'ordre général sur les propriétés des films ultraminces associées au couplage spin-orbite, que j'ai étudiées en théorie des bandes: anisotropie magnétocristalline, et moment magnétique orbital. L'ordre de grandeur obtenu pour l'anisotropie magnétocristalline est, en accord avec les résultats d'autres auteurs, beaucoup plus grand que dans les matériaux massifs. L'étude du moment orbital m'a permis de prédire un

effet nouveau: une anisotropie du moment magnétique orbital, très supérieure à celle des matériaux massifs. Ces effets sont associés à l'abaissement de la symétrie du système par rapport aux matériaux cubiques massifs. En raison de la haute symétrie de ces derniers, les anisotropies d'énergie magnéto-cristalline et de moment orbital n'apparaissent qu'au quatrième ordre, alors que dans les films ultraminces, les anisotropies d'ordre deux sont permises. Ceci explique que ces propriétés puissent être modifiées par plusieurs ordres de grandeur, à l'inverse de propriétés non assujetties à la symétrie, comme par exemple les composantes isotropes du moment magnétique et de l'intégrale d'échange, lesquelles varient au plus d'environ 20%. On remarquera que dans le cas du cobalt hexagonal, la symétrie autorise les anisotropies d'ordre deux, même à l'état massif; en fait, comme l'a montré l'étude effectuée dans le cadre du modèle de Néel, l'effet de basse symétrie est très fortement affaibli par la compacité de la structure cristalline de l'état massif.

La méthode semi-empirique (liaisons fortes) utilisée pour ces études n'a certes pas le pouvoir de prédiction quantitative des méthodes de calcul *ab initio* autocohérentes. En revanche elle permet, par une modélisation très simplifiée du problème ne conservant que les ingrédients essentiels, de mieux comprendre le phénomène étudié (ici les effets du couplage spin-orbite). Par exemple, en faisant varier les différents paramètres du modèle, nous pouvons appréhender leurs influences respectives sur la propriété étudiée. L'anisotropie magnétocristalline des films ultraminces, et même des matériaux massifs, est encore mal comprise; j'entends par là qu'il n'est pas possible d'en justifier ne serait-ce que le signe, en fonction de grandeurs fondamentales telles que la largeur de la bande 3d, son remplissage, la séparation d'échange. Les études basées sur des modèles de liaisons fortes devraient permettre d'avancer en direction d'une telle compréhension qualitative de l'anisotropie magnétocristalline, tout comme les modèles de Heisenberg, Ising, ou Hubbard ont joué (et jouent encore) un rôle important dans la compréhension du ferromagnétisme.

Les travaux présentés dans ce mémoire ouvrent des perspectives dans diverses directions:

- (i) il me semble important d'approfondir l'étude, commencée dans cette thèse, du lien entre les caractéristiques structurales et les propriétés magnétiques des échantillons; en particulier, l'étude comparative des propriétés d'hystérésis de films de rugosité interfaciale différen-

te devrait permettre de préciser le rôle joué par ce paramètre. Dans les études publiées précédemment sur le magnétisme des films ultraminces, les auteurs ont toujours considéré l'aimantation, le champ coercitif, etc... comme des grandeurs statiques; l'observation d'un trainage important ouvre une brèche conceptuelle dans cette vision statique des phénomènes, et montre que le facteur temps doit *a priori* être pris en compte, dès que l'on travaille à une température suffisamment élevée. De plus, l'étude quantitative du comportement dynamique de l'aimantation procure des informations intéressantes sur la distribution des énergies d'activation.

- (ii) à l'aide du magnétomètre à SQUID en champ fort (80 kOe) récemment mis au point au laboratoire par P. Beauvillain, C. Chappert, et P. Veillet, nous sommes actuellement en train de tester expérimentalement la prédiction d'une anisotropie importante du moment magnétique par atome dans les films ultraminces.
- (iii) sur le plan théorique, après avoir étudié l'anisotropie magnéto-cristalline de films monoatomiques isolés, il est intéressant de considérer des films plus épais, afin d'étudier la variation de l'anisotropie en fonction de l'épaisseur, et de la comparer à une loi en $1/e$, et également d'étudier l'influence d'un substrat, etc... Enfin, il est possible d'étudier d'autres effets liés au couplage spin-orbite, effets magnétooptiques (Kerr, Faraday), et effet Hall anormal, dont l'utilisation pour l'étude du magnétisme des films ultraminces se développe rapidement, et pour lesquels des effets spectaculaires peuvent être attendus à l'échelle du plan atomique.

APPENDICES

APPENDICE 1

DEPLACEMENTS D'UNE PAROI
DANS UN MATERIAU INHOMOGENE
ET THEORIE DU TRAINAGE MAGNETIQUE

A1-1. Déplacements de parois dans un matériau inhomogène

Je présente ici, les détails du calcul effectué au paragraphe 4-4.1, concernant la propagation d'une paroi dans un film mince présentant des fluctuations spatiales de tension de paroi. Les notations sont celles introduites au paragraphe 4-4.1. Ce calcul s'inspire de celui proposé par Néel (1946a), dans le cas d'un matériau massif.

Notre point de départ est l'expression (4-4) de l'énergie de la paroi, développée au second ordre en ΔX et $\Delta \gamma$:

$$E_p = eL\gamma_0 + e \int_0^L \gamma_0 \frac{1}{2} \left(\frac{d\Delta X}{dy} \right)^2 dy + e \int_0^L \frac{\partial \Delta \gamma(X_0, y)}{\partial x} \Delta X(y) dy. \quad (A1-1)$$

Introduisons alors les transformées de Fourier:

$$\widetilde{\Delta \gamma}(k_x, k_y) = \frac{1}{L^2} \int_0^L dx \int_0^L dy \exp[-i(k_x x + k_y y)] \Delta \gamma(x, y), \quad (A1-2)$$

et

$$\widetilde{\Delta X}(k_y) = \frac{1}{L} \int_0^L dy \exp(-ik_y y) \Delta X(y). \quad (A1-3)$$

$\Delta \gamma(x, y)$ et $\Delta X(y)$ sont données par les transformées de Fourier inverses:

$$\Delta \gamma(x, y) = \sum_{k_x, k_y} \exp[i(k_x x + k_y y)] \widetilde{\Delta \gamma}(k_x, k_y), \quad (A1-4)$$

et

$$\Delta X(y) = \sum_{k_y} \exp(ik_y y) \widehat{\Delta X}(k_y) . \quad (\text{A1-5})$$

Par ailleurs, $\Delta \gamma(x, y)$ et $\Delta X(y)$ étant réels, nous avons les relations

$$\left. \begin{aligned} \widehat{\Delta \gamma}(-k_x, -k_y) &= \widehat{\Delta \gamma}^*(k_x, k_y) , \\ \widehat{\Delta X}(-k_y) &= \widehat{\Delta X}^*(k_y) . \end{aligned} \right\} \quad (\text{A1-6})$$

En fonction des composantes de Fourier, l'énergie de la paroi s'écrit

$$E_p = eL\gamma_0 + eL \frac{\gamma_0}{2} \sum_{k_y} k_y^2 \left| \widehat{\Delta X}(k_y) \right|^2 + eL \sum_{k_x, k_y} ik_x \exp(ik_x x) \widehat{\Delta \gamma}(k_x, k_y) \widehat{\Delta X}(-k_y) \quad (\text{A1-7})$$

La configuration d'équilibre de la paroi est obtenue en minimisant son énergie par rapport aux composantes de Fourier de la déformation ΔX , soit

$$\frac{\partial E_p}{\partial \widehat{\Delta X}(k_y)} = 0 . \quad (\text{A1-8})$$

Nous obtenons finalement:

$$\widehat{\Delta X}(k_y) = \frac{- \sum_{k_x} ik_x \exp(ik_x X_0) \widehat{\Delta \gamma}(k_x, k_y)}{\gamma_0 k_y^2} . \quad (\text{A1-9})$$

En reportant le résultat (A1-9) dans E_p , nous obtenons une énergie de paroi $E_p^{eff}(X_0)$ ne dépendant que de la position moyenne X_0 de celle-ci. Le problème (complexe) des mouvements d'une paroi déformable dans un matériau inhomogène, se réduit alors à celle d'une paroi *plane rigide fictive* se déplaçant dans un *potentiel effectif unidimensionnel*.

Il est important de remarquer que la réduction du problème à celui des déplacements d'une paroi plane équivalente, trop souvent admise sans justification, n'est possible que si le problème peut être linéarisé, c'est-à-

dire si $\overline{\Delta\gamma} \ll \gamma_0$. Dans le cas contraire, pour une position moyenne donnée X_0 de la paroi, il existe en général plusieurs configurations de paroi minimisant l'énergie E_p , et il n'est plus possible de définir de façon univoque la fonction $E_p^{eff}(X_0)$ sur laquelle est basée le modèle unidimensionnel des mouvements de parois.

L'expression explicite de l'énergie potentielle effective $E_p^{eff}(X_0)$ est

$$E_p^{eff}(X_0) = eL\gamma_0 + eL \sum_{k_{x1}, k_{x2}, k_y} \frac{k_{x1}^2 k_{x2}^2}{(k_{x1} + k_{x2})^2 k_y^2} \frac{\widetilde{\Delta\gamma}(k_{x1}, k_y) \widetilde{\Delta\gamma}(k_{x2}, -k_y)}{\gamma_0} \exp[i(k_{x1} + k_{x2})X_0] \quad (A1-10)$$

Dans l'expression (A1-10), le premier terme représente l'énergie de la paroi non déformée, et le second le gain d'énergie dû à la déformation. Cette expression peut être réarrangée sous la forme suivante:

$$E_p^{eff}(X_0) = eL\gamma_0 \left(1 + \left(\frac{\overline{\Delta\gamma}}{\gamma_0} \right)^2 f(X_0/\xi, \xi/L) \right), \quad (A1-11)$$

où $f(X_0/\xi, \xi/L)$ est une fonction sans dimension dépendant des fréquences spatiales de la rugosité, et caractérisant le gain énergétique dû à la déformation des parois. Cette fonction sans dimension ne doit dépendre que des grandeurs sans dimension X_0/ξ et ξ/L .

A1-2. Théorie du trainage magnétique

Ce paragraphe traite de la variation temporelle de l'aimantation, dans le cas d'une distribution d'énergies d'activation de largeur ΔE_a .

Soit $M(t)$ l'aimantation à l'instant t , et $M(\infty)$ l'aimantation dans l'état d'équilibre thermodynamique; définissons l'aimantation réduite $m(t)$ par

$$m(t) = \frac{M(t) - M(\infty)}{M(t=0) - M(\infty)}; \quad (A1-12)$$

si l'on a une seule énergie d'activation E_a , $m(t)$ décroît exponentiellement:

$$m(t) = \exp(-t/\tau) , \quad (\text{A1-13})$$

où le temps de relaxation τ vérifie une loi d'Arrhenius:

$$\tau = \tau_0 \exp(E_a/k_B T) . \quad (\text{A1-14})$$

S'il y a une distribution $f(E_a)$ d'énergies d'activation, telle que la probabilité d'avoir une énergie d'activation comprise entre E_a et E_a+dE_a soit égale à $f(E_a)dE_a$, la distribution $g(\tau)$ des temps de relaxation (où $g(\tau)d\tau$ est la probabilité d'avoir un temps de relaxation compris entre τ et $\tau+d\tau$) est donnée par

$$g(\tau) d\tau = f(E_a) dE_a , \quad (\text{A1-15})$$

soit

$$g(\tau) = \frac{k_B T}{\tau} f(k_B T \ln(\tau/\tau_0)) . \quad (\text{A1-16})$$

L'aimantation réduite vaut alors

$$m(t) = \int_0^{+\infty} g(\tau) \exp(-t/\tau) d\tau . \quad (\text{A1-17})$$

La façon la plus simple de modéliser la distribution d'énergies d'activation (Richter, 1937), est de prendre une distribution rectangulaire de largeur ΔE_a centrée sur $\overline{E_a}$:

$$\left. \begin{aligned} f(E) &= \frac{1}{\Delta E_a} , \text{ si } \overline{E_a} - \frac{\Delta E_a}{2} < E < \overline{E_a} + \frac{\Delta E_a}{2} , \\ &\text{et } f(E) = 0 \text{ sinon.} \end{aligned} \right\} \quad (\text{A1-18})$$

La distribution de temps de relaxation est alors donnée par:

$$g(\tau) = \frac{1}{\tau \ln(\tau_M/\tau_m)}, \text{ si } \tau_m < \tau < \tau_M, \left. \vphantom{g(\tau)} \right\} \quad (\text{A1-19})$$

$$\text{et } g(\tau) = 0 \text{ sinon,}$$

où τ_m et τ_M correspondent respectivement à $\bar{E}_a - \Delta E_a/2$ et $\bar{E}_a + \Delta E_a/2$.

A1-2.1. Cas d'une distribution d'énergies d'activation étroite

Ce cas correspond à $\Delta E_a/k_B T = \ln(\tau_M/\tau_m) \ll 1$. L'expression de l'aimantation réduite $m(t)$ s'obtient à partir des équations (A1-17) et (A1-19):

$$m(t) = \frac{1}{\ln(\tau_M/\tau_m)} \int_{t/\tau_M}^{t/\tau_m} \frac{\exp(-u)}{u} du. \quad (\text{A1-20})$$

Introduisant $\bar{\tau} = (\tau_m + \tau_M)/2$ et $\Delta\tau = \tau_M - \tau_m$, nous pouvons intégrer l'équation (A1-19), en effectuant un développement limité en $\Delta\tau/\bar{\tau}$:

$$m(t) = \exp(-t/\bar{\tau}) \left(1 - \frac{\Delta\tau}{2\bar{\tau}} \left(1 + \frac{t}{\bar{\tau}} \right) \right). \quad (\text{A1-21})$$

A1-2.2. Cas d'une distribution d'énergies d'activation large

Ce cas correspond à $\Delta E_a/k_B T = \ln(\tau_M/\tau_m) \gg 1$. Je suivrai le traitement donné par Herpin (1964). L'équation (A1-17) peut s'écrire:

$$m(t) = \frac{1}{\ln(\tau_M/\tau_m)} (\text{Ei}(-t/\tau_m) - \text{Ei}(-t/\tau_M)), \quad (\text{A1-22})$$

où $\text{Ei}(x)$ représente la fonction exponentielle intégrale, définie par:

$$\text{Ei}(x) = - \int_{-x}^{+\infty} \frac{\exp(-u)}{u} du, \text{ pour } x < 0. \quad (\text{A1-23})$$

La fonction exponentielle intégrale vérifie les relations suivantes (Gradsh-

teyn et Ryzhik, 1965):

$$\left. \begin{aligned} \text{Ei}(-1) &= -0,219\dots \\ \text{Ei}(-x) &= 0,577\dots + \ln(x) - x + \frac{1}{2} \frac{x^2}{2!} - \frac{1}{3} \frac{x^3}{3!} + \dots, \text{ pour } 0 < x \ll 1, \\ \text{Ei}(-x) &= -\frac{\exp(-x)}{x} \left(1 - \frac{1!}{x} + \frac{2!}{x^2} - \frac{3!}{x^3} + \dots \right), \text{ pour } 1 \ll x. \end{aligned} \right\} \text{(A1-24)}$$

Dans le cas où $\tau_m \ll \tau_M$, nous obtenons pour $m(t)$:

$$m(t) = 1 - \frac{t}{\tau_m \ln(\tau_M/\tau_m)}, \text{ si } 0 \ll t \ll \tau_m, \quad \text{(A1-25a)}$$

$$m(\tau_m) = 1 - \frac{0,796\dots}{\ln(\tau_M/\tau_m)}, \quad \text{(A1-25b)}$$

$$m(t) = \frac{1}{\ln(\tau_M/\tau_m)} (-0,577\dots - \ln(t/\tau_M)), \text{ si } \tau_m \ll t \ll \tau_M, \quad \text{(A1-25c)}$$

$$m(\tau_M) = \frac{0,219\dots}{\ln(\tau_M/\tau_m)}, \quad \text{(A1-25d)}$$

$$m(t) = \frac{\tau_M}{t} \exp(-t/\tau_M), \text{ si } \tau_M \ll t. \quad \text{(A1-25e)}$$

A1-2.3. Méthode de détermination de τ_m et τ_M

Je présente ici une méthode permettant la détermination des temps τ_m et τ_M caractérisant la distribution des temps de relaxation.

Considérons la courbe représentant $m(t)$ en fonction de $\ln(t)$; cette courbe a pour asymptotes, $m=1$ et $m=0$, respectivement en $\ln(t)=-\infty$ et en $\ln(t)=+\infty$. Entre les deux, la dérivée passe par un maximum (en valeur absolue). Calculons la position et la valeur de ce maximum. La dérivée vaut:

$$\frac{dm(t)}{d[\ln(t)]} = t \frac{dm(t)}{dt} = -\frac{\exp(-t/\tau_M) - \exp(-t/\tau_m)}{\ln(\tau_M/\tau_m)}. \quad \text{(A1-26)}$$

Le maximum (en valeur absolue) est obtenu pour le temps t^* donné par

$$\frac{1}{\tau_M} \exp(-t^*/\tau_M) = \frac{1}{\tau_m} \exp(-t^*/\tau_m), \quad (\text{A1-27})$$

it

$$t^* = \frac{\tau_m}{1 - \tau_m/\tau_M} \ln(\tau_M/\tau_m). \quad (\text{A1-28})$$

valeur du maximum est

$$\left. \frac{dm(t)}{d[\ln(t)]} \right|_{\text{Max}} = \frac{\exp\left(-\frac{\tau_m}{\tau_M(1-\tau_m/\tau_M)} \ln(\tau_M/\tau_m)\right) - \exp\left(-\frac{\ln(\tau_M/\tau_m)}{(1-\tau_m/\tau_M)}\right)}{\ln(\tau_M/\tau_m)}; \quad (\text{A1-29})$$

s'agit d'une fonction monotone du rapport τ_M/τ_m ; la résolution numérique l'équation (A1-29) permet la détermination du rapport τ_M/τ_m .

Lorsque ce rapport est grand devant 1, l'équation (A1-29) prend la forme particulièrement simple suivante:

$$\left(- \frac{dm(t)}{d[\ln(t)]} \right) = \frac{1}{\ln(\tau_M/\tau_m)} = \frac{k_B T}{\Delta E_a}. \quad (\text{A1-30})$$

nsi, la valeur de la pente maximum permet d'obtenir la largeur de la distribution d'énergies d'activation; le temps pour lequel est obtenue cette pente maximum est $\tau_m \ln(\tau_M/\tau_m)$, qui est également le temps de relaxation initial (cf. éq. (A1-25a)). Ceci justifie la méthode d'exploitation des mesures qui consiste à mesurer le temps de relaxation initial.

APPENDICE 2

THEORIE DE NEEL
DU COUPLAGE MAGNETOCRISTALLIN

Je présente ici des calculs se rapportant au modèle de Néel de l'anisotropie magnétocristalline de surface (chapitre 6). Les notations sont celles introduites au chapitre 6.

A2-1. Calcul de la magnétostriction des cristaux cubiques (Néel, 1954)

En présence d'une déformation de tenseur $\epsilon_{\mu\nu}$, l'énergie magnétocristalline par atome s'écrit

$$E_{MC} = \frac{1}{2} \sum_{\mu, \nu} \left[1 \delta(\cos^2 \varphi) + m \delta r \left(\cos^2 \varphi - \frac{1}{3} \right) \right] \quad (\text{A2-1})$$

avec

$$\left. \begin{aligned} \delta r &= r_0 \sum_{\mu, \nu} \epsilon_{\mu\nu} \alpha_\mu \alpha_\nu \\ \cos^2 \varphi &= \sum_{\mu, \nu} \alpha_\mu \alpha_\nu \beta_\mu \beta_\nu \\ \delta(\cos^2 \varphi) &= 2 \sum_{\mu, \nu, \eta} \alpha_\mu \alpha_\nu \beta_\mu \beta_\nu \epsilon_{\nu\eta} - 2 \sum_{\mu, \nu, \eta, \zeta} \alpha_\mu \alpha_\nu \alpha_\eta \alpha_\zeta \beta_\mu \beta_\zeta \epsilon_{\nu\eta} \end{aligned} \right\} \quad (\text{A2-2})$$

Il vient donc

$$\begin{aligned} w_{MC} &= 1 \left(\sum_{\mu, \nu, \eta} \beta_\mu \beta_\nu \tilde{S}_{\mu\eta} \epsilon_{\nu\eta} - \sum_{\mu, \nu, \eta, \zeta} \beta_\mu \beta_\zeta \tilde{S}_{\mu\nu\eta\zeta} \epsilon_{\nu\eta} \right) \\ &+ \frac{m r}{2} \left(\sum_{\mu, \nu, \eta, \zeta} \beta_\mu \beta_\zeta \tilde{S}_{\mu\nu\eta\zeta} \epsilon_{\nu\eta} - \frac{1}{3} \sum_{\mu, \nu} \epsilon_{\mu\nu} \tilde{S}_{\mu\nu} \right) \end{aligned} \quad (\text{A2-3})$$

où l'on a introduit la notation symbolique

$$\tilde{S}_{\mu\nu\eta\dots} = \sum_{\mu} \alpha_{\mu} \alpha_{\nu} \alpha_{\eta} \dots \quad (\text{A2-4})$$

Pour un cristal cfc, les seuls $\tilde{S}_{\mu\nu\dots}$ non nuls sont: $\tilde{S}_{\mu\mu}=4$, $\tilde{S}_{\mu\mu\mu\mu}=2$ et $\tilde{S}_{\mu\mu\nu\nu}=1$ pour $\mu \neq \nu$. L'énergie magnétocristalline par unité de volume vaut alors

$$E_{MC} = B_1 \sum_{\mu} \epsilon_{\mu\mu} \beta_{\mu}^2 + B_2 \sum_{\mu \neq \nu} \epsilon_{\mu\nu} \beta_{\mu} \beta_{\nu} + B_3 \sum_{\mu} \epsilon_{\mu\mu} \quad (\text{A2-5})$$

où, n_v étant le nombre d'atomes par unité de volume

$$\left. \begin{aligned} B_1 &= \frac{n_v}{2} \left[2I \left(\tilde{S}_{1122} + \tilde{S}_{11} - \tilde{S}_{1111} \right) + mr_0 \left(\tilde{S}_{1111} - \tilde{S}_{1122} \right) \right], \\ B_2 &= \frac{n_v}{2} \left[2I \left(\tilde{S}_{11} - 2\tilde{S}_{1122} \right) + 2mr_0 \tilde{S}_{1122} \right], \\ B_3 &= \frac{n_v}{2} (mr_0 - 2I) \tilde{S}_{1122}, \end{aligned} \right\} \quad (\text{A2-6})$$

sont les constantes magnétoélastiques du matériau. Le terme en B_3 correspond à une dilatation homogène isotrope que l'on peut inclure dans l'état de référence (cristal désaimanté).

L'énergie élastique de déformation par unité de volume s'écrit

$$E_{E1} = \frac{c_1}{2} \left(\sum_{\mu} \epsilon_{\mu\mu} \right)^2 + c_2 \sum_{\mu} \epsilon_{\mu\mu}^2 + c_3 \sum_{\mu \neq \nu} \epsilon_{\mu\nu} \quad (\text{A2-7})$$

où c_1, c_2, c_3 sont les constantes élastiques.

La magnétostriction $\lambda(\gamma_1, \gamma_2, \gamma_3)$ (dilatation relative suivant l'axe de cosinus directeurs γ_{μ}) s'obtient en minimisant $E_{MC} + E_{E1}$ par rapport aux $\epsilon_{\mu\nu}$; nous trouvons

$$\lambda(\gamma_1, \gamma_2, \gamma_3) = \frac{3}{2} \lambda_{100} \left(\sum_{\mu} \beta_{\mu}^2 \gamma_{\mu}^2 - \frac{1}{3} \right) + \frac{3}{2} \lambda_{111} \sum_{\mu \neq \nu} \beta_{\mu} \beta_{\nu} \gamma_{\mu} \gamma_{\nu} \quad (\text{A2-8})$$

avec

$$\lambda_{100} = -\frac{B_1}{3c_2}, \quad \lambda_{111} = -\frac{B_2}{3c_3}. \quad (\text{A2-9})$$

A2-2. Calcul de la magnétostriction d'un cristal hexagonal compact

Jusqu'à l'équation (A2-4), les calculs sont les mêmes que dans le cas cubique. Les seuls \tilde{S} non nuls sont

$$\left. \begin{aligned} \tilde{S}_{11} = \tilde{S}_{22} = 4, \quad \tilde{S}_{33} = 4, \\ \tilde{S}_{1111} = \tilde{S}_{2222} = 3 \tilde{S}_{1122} = \frac{5}{2}, \quad \tilde{S}_{2233} = \frac{2}{3}, \quad \tilde{S}_{3333} = \frac{8}{3}. \end{aligned} \right\} \quad (\text{A2-10})$$

L'énergie magnétocristalline par unité de volume peut alors s'écrire

$$\begin{aligned} E_{MC} = & B_1 \left(\beta_1^2 \epsilon_{11} + 2\beta_1 \beta_2 \epsilon_{12} + \beta_2^2 \epsilon_{22} \right) + B_2 \left(1 - \beta_3^2 \right) \epsilon_{33} \\ & + B_3 \left(1 - \beta_3^2 \right) (\epsilon_{11} + \epsilon_{22}) + B_4 (\beta_2 \beta_3 \epsilon_{23} + \beta_1 \beta_3 \epsilon_{13}) + B_5 (\epsilon_{11} + \epsilon_{22}), \end{aligned} \quad (\text{A2-11})$$

avec

$$\left. \begin{aligned} B_1 = & n_V I \left(\tilde{S}_{11} - 2\tilde{S}_{1122} \right) + n_V r_0 m \tilde{S}_{1122}, \\ B_2 = & n_V I \left(\tilde{S}_{3333} - \tilde{S}_{33} - \tilde{S}_{1133} \right) + \frac{1}{2} n_V r_0 m \left(\tilde{S}_{1133} - \tilde{S}_{3333} \right), \\ B_3 = & \left(n_V I - \frac{1}{2} n_V r_0 m \right) \left(\tilde{S}_{1133} - \tilde{S}_{1122} \right), \\ B_4 = & n_V I \left(\tilde{S}_{11} + \tilde{S}_{33} - 4\tilde{S}_{1133} \right) + 2 n_V r_0 m \tilde{S}_{1133}, \\ B_5 = & -\frac{1}{3} n_V I \tilde{S}_{1133} + \frac{1}{6} n_V r_0 m \left(\tilde{S}_{1133} - \tilde{S}_{1111} \right). \end{aligned} \right\} \quad (\text{A2-12})$$

De même que pour le terme en B_3 dans le cas cubique, on peut laisser le terme en B_5 ; nous retrouvons alors l'expression obtenue à partir d'arguments de symétrie par Mason (1954).

L'énergie élastique par unité de volume vaut (Landau et Lifschitz, 1972)

$$E_{FI} = \frac{1}{2} c_{11} (\epsilon_{11}^2 + \epsilon_{22}^2) + c_{12} \epsilon_{11} \epsilon_{22} + \frac{1}{2} c_{33} \epsilon_{33}^2 + c_{13} (\epsilon_{11} + \epsilon_{22}) \epsilon_{33} + \frac{1}{2} c_{44} (\epsilon_{13}^2 + \epsilon_{23}^2) + (c_{11} - c_{12}) \epsilon_{12}^2. \quad (A2-13)$$

De même que dans le cas cubique, en minimisant l'énergie totale, nous obtenons

$$\lambda(\gamma_1, \gamma_2, \gamma_3) = \lambda_A \left[(\beta_1 \gamma_1 + \beta_2 \gamma_2)^2 - (\beta_1 \gamma_1 + \beta_2 \gamma_2) \beta_3 \gamma_3 \right] + \lambda_B \left[(1 - \beta_3^2) (1 - \gamma_3^2) - (\beta_1 \gamma_1 + \beta_2 \gamma_2)^2 \right] + \lambda_C \left[(1 - \beta_3^2) \gamma_3^2 - (\beta_1 \gamma_1 + \beta_2 \gamma_2) \beta_3 \gamma_3 \right] + \lambda_D (\beta_1 \gamma_1 + \beta_2 \gamma_2) \beta_3 \gamma_3, \quad (A2-14)$$

où λ_A , λ_B , λ_C et λ_D , les constantes usuelles de magnétostriction (Mason, 1954; Hubert et coll., 1969) sont données par

$$\left. \begin{aligned} \lambda_A &= - \frac{B_1}{2(c_{11} - c_{12})} + \frac{B_2 c_{13} - \left(B_3 + \frac{B_1}{2} \right) c_{33}}{c_{33} (c_{11} + c_{12}) - 2c_{13}^2}, \\ \lambda_B &= \frac{B_2 c_{13} - \left(B_3 + \frac{B_1}{2} \right) c_{33}}{c_{33} (c_{11} + c_{12}) - 2c_{13}^2} + \frac{B_1}{2(c_{11} - c_{12})}, \\ \lambda_C &= \frac{(c_{11} + c_{12}) B_2 - c_{13} (2B_3 + B_1)}{2c_{13}^2 - (c_{11} + c_{12}) c_{33}}, \\ \lambda_D &= \frac{(2B_3 + B_1) (c_{33} - c_{13}) + B_2 (c_{11} + c_{12} - 2c_{13})}{4 \left[2c_{13}^2 - (c_{11} + c_{12}) c_{33} \right]} - \frac{B_4}{4c_{44}}. \end{aligned} \right\} \quad (A2-15)$$

A2-3. Résolution d'un système d'équations linéaires surdéterminé par la méthode des moindres carrés

Soit \mathcal{A}_j , une matrice à n lignes et m colonnes ($n > m$), et \mathcal{Y}_j une matrice à n lignes et 1 colonne; on cherche une matrice \mathcal{X}_j à m lignes et 1 colonne, telle que

$$\sum_{j=1}^m a_{i,j} x_j = y_i, \quad \text{pour } i \text{ allant de } 1 \text{ à } n. \quad (\text{A2-16})$$

Un tel système n'a en général pas de solution. Nous pouvons en rechercher une solution approchée par la méthode des moindres carrés; la condition à laquelle doivent satisfaire les x_j est alors que

$$\sum_{i=1}^n \left(y_i - \sum_{j=1}^m a_{i,j} x_j \right)^2 \quad \text{soit minimum.} \quad (\text{A2-17})$$

En annulant la dérivée partielle de cette expression par rapport à chacun des x_j , nous obtenons le système linéaire de m équations à m inconnues suivant:

$$\sum_{i=1}^n \sum_{k=1}^m a_{i,k} a_{i,j} x_k = \sum_{i=1}^n a_{i,j} y_i, \quad j \text{ allant de } 1 \text{ à } m, \quad (\text{A2-18})$$

que l'on résoud simplement.

APPENDICE 3

ANISOTROPIE MAGNETOCRISTALLINE
ET MOMENT MAGNETIQUE ORBITAL
EN THEORIE DES BANDES

Cet appendice présente les détails de certains calculs du chapitre 7. Les notations utilisées sont celles introduites au chapitre 7.

A3-1. Le moment orbital

Le composante du moment orbital parallèle au spin est donnée par l'opérateur à un électron, diagonal en \vec{k} et en spin

$$\begin{aligned}
 L_z &= \sum_{\vec{k}, \mu_1, \mu_2, \sigma} \langle \vec{k}, \mu_1, \sigma | L_z | \vec{k}, \mu_2, \sigma \rangle c_{\vec{k}, \mu_1, \sigma}^\dagger c_{\vec{k}, \mu_2, \sigma} \\
 &= \sum_{\mu_1, \mu_2, \sigma} \langle \mu_1, \sigma | L_z | \mu_2, \sigma \rangle \sum_{\vec{k}} c_{\vec{k}, \mu_1, \sigma}^\dagger c_{\vec{k}, \mu_2, \sigma} \quad (A3-1)
 \end{aligned}$$

car, ceux-ci étant orthonormés, L_z ne couple pas des états de base centrés sur des sites différents. On démontre facilement que les éléments de matrice de L_z vérifient l'égalité (7-15); en effet

$$\vec{L} \cdot \vec{S} = L_z S_z + \frac{1}{2} (L_+ S_- + L_- S_+) \quad (A3-2)$$

$$\text{et } \langle \mu_1, \sigma | L_+ S_- | \mu_2, \sigma \rangle = \langle \mu_1, \sigma | L_- S_+ | \mu_2, \sigma \rangle = 0 \quad (A3-3)$$

$$\text{d'où } \langle \mu_1, \sigma | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_2, \sigma \rangle = \langle \mu_1, \sigma | L_z S_z | \mu_2, \sigma \rangle = \frac{\sigma}{2} \langle \mu_1, \sigma | L_z | \mu_2, \sigma \rangle. \quad (A3-4)$$

A3-2. Détails du calcul de perturbation

En développant les équations (7-16), (7-18) et (7-19) suivant les fonctions de base, et en utilisant la relation (7-15) nous obtenons

$$\delta E = -\xi^2 \sum_{\substack{\mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4 \\ \sigma_1, \sigma_2}} \langle \mu_1, \sigma_1 | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_2, \sigma_2 \rangle \langle \mu_3, \sigma_2 | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_4, \sigma_1 \rangle \times \\ \times G(\mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4; \sigma_1, \sigma_2), \quad \text{avec} \quad (\text{A3-5})$$

$$G(\mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4; \sigma_1, \sigma_2) = \sum_{\vec{k}} \int_{\epsilon < \epsilon_F} d\epsilon \int_{\epsilon_F < \epsilon'} d\epsilon' \times \\ \times \frac{\mathcal{N}_{\mu_1, \mu_4, \sigma_1}(\vec{k}, \epsilon) \mathcal{N}_{\mu_3, \mu_2, \sigma_2}(\vec{k}, \epsilon')}{\epsilon' - \epsilon}, \quad (\text{A3-6})$$

et

$$\langle L_z \rangle = -\xi \sum_{\substack{\mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4 \\ \sigma}} \langle \mu_1, \uparrow | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_2, \uparrow \rangle \langle \mu_3, \sigma | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_4, \sigma \rangle \times \\ \times H(\mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4; \sigma), \quad \text{avec} \quad (\text{A3-7})$$

$$H(\mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4; \sigma) = 2 \sum_{\vec{k}} \int_{\epsilon < \epsilon_F} d\epsilon \int_{\epsilon_F < \epsilon'} d\epsilon' \times \\ \times \frac{\mathcal{N}_{\mu_1, \mu_4, \sigma}(\vec{k}, \epsilon) \mathcal{N}_{\mu_3, \mu_2, \sigma}(\vec{k}, \epsilon')}{\epsilon' - \epsilon}. \quad (\text{A3-8})$$

A partir des équations (A3-7) et (A3-8), et en utilisant la relation (7-14a), on montre très simplement que $\langle L_z \rangle$ est donné par les relations (7-20) et (7-22).

Le calcul de δE est un peu plus délicat. Compte tenu de l'invariance par renversement du temps, δE doit être invariant par rapport à l'opération $\vec{M} \rightarrow -\vec{M}$, ou ce qui est équivalent: $\mathcal{N}_\sigma \rightarrow \mathcal{N}_{-\sigma}$. Nous pouvons donc remplacer

$$\langle \mu_1, \sigma_1 | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_2, \sigma_2 \rangle \langle \mu_3, \sigma_2 | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_4, \sigma_1 \rangle$$

dans l'équation (A3-5) par

$$\langle \mu_1, -\sigma_1 | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_2, -\sigma_2 \rangle \langle \mu_3, -\sigma_2 | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_4, -\sigma_1 \rangle$$

qui est son complexe conjugué. L'équation (A3-5) devient alors

$$\delta E = -\xi^2 \sum_{\substack{\mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4 \\ \sigma_1, \sigma_2}} \operatorname{Re} \left[\langle \mu_1, \sigma_1 | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_2, \sigma_2 \rangle \langle \mu_3, \sigma_2 | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_4, \sigma_1 \rangle \right] \times \\ \times G(\mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4; \sigma_1, \sigma_2). \quad (\text{A3-9})$$

A l'aide des tableaux 7-1 et 7-2, et des relations (7-14), nous pouvons vérifier que

$$\langle \mu_1, \uparrow | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_2, \uparrow \rangle \langle \mu_3, \uparrow | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_4, \uparrow \rangle \\ = \langle \mu_1, \downarrow | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_2, \downarrow \rangle \langle \mu_3, \downarrow | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_4, \downarrow \rangle \quad \text{est réel, et que} \quad (\text{A3-10})$$

$$\operatorname{Re} \left[\langle \mu_1, \uparrow | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_2, \downarrow \rangle \langle \mu_3, \downarrow | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_4, \uparrow \rangle \right] \\ = \operatorname{Re} \left[\langle \mu_1, \downarrow | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_2, \uparrow \rangle \langle \mu_3, \uparrow | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_4, \downarrow \rangle \right] \\ = \text{constante} - \langle \mu_1, \uparrow | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_2, \uparrow \rangle \langle \mu_3, \uparrow | \vec{L} \cdot \vec{S} | \mu_4, \uparrow \rangle. \quad (\text{A3-11})$$

Nous pouvons négliger le terme constant, car il ne contribue pas à l'anisotropie. A partir des équations (A3-8) à (A3-11), nous démontrons alors aisément que δE est donné par la relation (7-20).

On obtient ensuite les relations (7-23) à (7-28), en regroupant les termes à l'aide des égalités (7-14) et de la relation

$$G(\mu_4, \mu_3, \mu_2, \mu_1) = G(\mu_1, \mu_2, \mu_3, \mu_4)^*, \quad (\text{A3-12})$$

valable également pour H .

A3-3. Éléments de matrice de Slater-Koster pour des films monoatomiques dans diverses orientations.

A3-3-1. Réseau cfc (001)

Ce réseau est représenté sur la figure A3-1, ainsi que sa première zone de Brillouin; les axes sont tournés de $\pi/4$ par rapport aux axes cubiques. Les orbitales symétriques par rapport au plan (s , xy , $x^2 - y^2$, $3z^2 - r^2$) ne sont pas couplées à celles qui sont antisymétriques (yz , zx). Les éléments de ma-

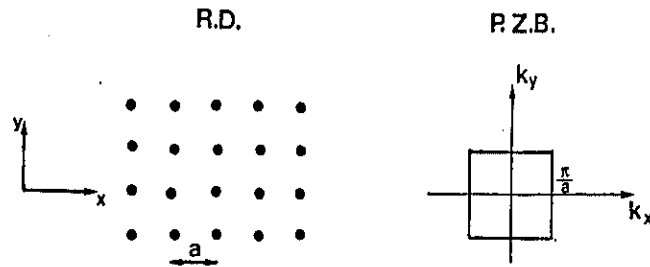


Figure A3-1: Réseau plan cfc (001) (R.D.: réseau direct), et représentation de la première zone de Brillouin correspondante (P.Z.B.).

Tableau A3-1

	s	xy	$x^2 - y^2$	$3z^2 - r^2$
s	$2ss\sigma_1 \times (\cos X + \cos Y)$	0	$\sqrt{3}sd\sigma_1 \times (\cos X - \cos Y)$	$-sd\sigma_1 \times (\cos X + \cos Y)$
xy		$2dd\pi_1 \times (\cos X + \cos Y)$	0	0
$x^2 - y^2$			$\frac{3}{2}(-dd\sigma_1 + \frac{1}{2}dd\delta_1) \times (\cos X + \cos Y)$	$\frac{\sqrt{3}}{2}(dd\delta_1 - dd\delta_1) \times (\cos X - \cos Y)$
$3z^2 - r^2$				$\frac{1}{2}(-dd\sigma_1 + \frac{3}{2}dd\delta_1) \times (\cos X + \cos Y)$

Tableau A3-2

	yz	zx
yz	$2dd\delta_1 \cos X + 2dd\pi_1 \cos Y$	0
zx		$2dd\pi_1 \cos X + 2dd\delta_1 \cos Y$

Tableau A3-3

	s	xy	$x^2 - y^2$	$3z^2 - r^2$
s	$4ss\sigma_2 \times$ $\times \cos X \cos Y$	$-2\sqrt{3}sd\sigma_2 \times$ $\times \sin X \sin Y$	0	$-2sd\sigma_2 \times$ $\times \cos X \cos Y$
xy		$(3dd\sigma_2 + dd\delta_2) \times$ $\times \cos X \cos Y$	0	$\sqrt{3}(dd\sigma_2 - dd\delta_2) \times$ $\times \sin X \sin Y$
$x^2 - y^2$			$4dd\pi_2 \times$ $\times \cos X \cos Y$	0
$3z^2 - r^2$				$(dd\sigma_2 + 3dd\delta_2) \times$ $\times \cos X \cos Y$

Tableau A3-4

	yz	zx
yz	$2(dd\pi_2 + dd\delta_2) \times$ $\times \cos X \cos Y$	$\frac{1}{2}(dd\delta_2 - dd\pi_2) \times$ $\times \sin X \sin Y$
zx		$2(dd\pi_2 + dd\delta_2) \times$ $\times \cos X \cos Y$

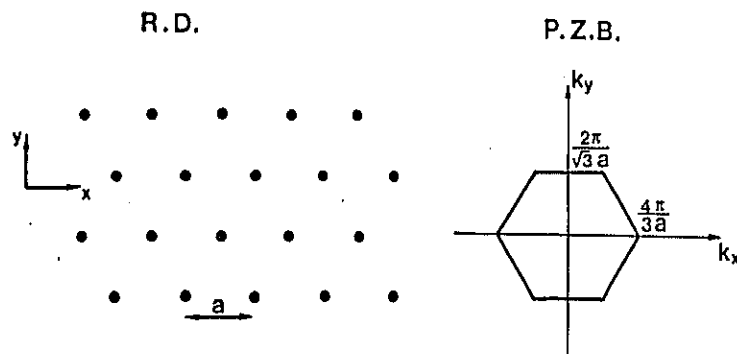


Figure A3-2: Réseau plan cfc (111) (ou hc (0001)) (R.D.: réseau direct), et représentation de la première zone de Brillouin correspondante (P.Z.B.).

trice entre premiers voisins sont donnés dans les tableaux A3-1 et A3-2, ceux entre seconds voisins dans les tableaux A3-3 et A3-4, avec $X=k_x a$ et $Y=k_y a$. Les éléments de matrice entre troisièmes voisins s'obtiennent à partir de ceux entre premiers voisins en changeant X en $2X$ et Y en $2Y$.

A3-3.2. Réseau cfc (111) ou hc (0001)

Ce réseau est représenté sur la figure A3-2. Les éléments de matrice entre premiers voisins sont donnés dans les tableaux A3-5 et A3-6, avec $X=\frac{1}{2}k_x a$

et $Y=\frac{\sqrt{3}}{2}k_y a$. On obtient les éléments de matrice entre seconds voisins en fai-

sant $X=\frac{3}{2}k_x a$ et $Y=\frac{\sqrt{3}}{2}k_y a$, et ceux entre troisièmes voisins en faisant $X=k_x a$ et

$Y=\sqrt{3}k_y a$.

Tableau A3-5

	s	xy	$x^2 - y^2$	$3z^2 - r^2$
s	$2ss\sigma_1 \times$ $\times(2\cos X \cos Y$ $+\cos 2X)$	$-3sd\sigma_1 \times$ $\times \sin X \sin Y$	$-\sqrt{3}sd\sigma_1 \times$ $\times(\cos X \cos Y - \cos 2X)$	$-sd\sigma_1$ $\times(2\cos X \cos Y$ $+\cos 2X)$
xy		$\frac{9}{4}(-dd\sigma_1 + dd\pi_1 + \frac{3}{4}dd\delta_1) \times$ $\times \cos X \cos Y$ $+2dd\pi_1 \cos 2X$	$\frac{\sqrt{3}}{4}(3dd\sigma_1 - 4dd\pi_1$ $+dd\delta_1) \times$ $\times \sin X \sin Y$	$\frac{3}{2}(dd\sigma_1 - dd\delta_1) \times$ $\times \sin X \sin Y$
$x^2 - y^2$			$\frac{3}{4}(-dd\sigma_1 + 3dd\pi_1 + \frac{1}{4}dd\delta_1) \times$ $\times \cos X \cos Y$ $+\frac{1}{2}(3dd\sigma_1 + dd\delta_1) \cos 2X$	$\frac{\sqrt{3}}{2}(dd\sigma_1 - dd\delta_1) \times$ $\times(\cos X \cos Y$ $-\cos 2X)$
$3z^2 - r^2$				$\frac{1}{2}(dd\sigma_1 + 3dd\delta_1) \times$ $\times(2\cos X \cos Y$ $+\cos 2X)$

Tableau A3-6

	<i>yz</i>	<i>zx</i>
<i>yz</i>	$(3dd\pi_1 + dd\delta_1) \times$ $\times \cos X \cos Y$ $+ 2dd\delta_1 \cos 2X$	$-\sqrt{3}(dd\pi_1 - dd\delta_1) \times$ $\times \sin X \sin Y$
<i>zx</i>		$(dd\pi_1 + 3dd\delta_1) \times$ $\times \cos X \cos Y$ $+ 2dd\pi_1 \cos 2X$

APPENDICE 4

EFFET DE LA RUGOSITE SUR
L'ANISOTROPIE DIPOLAIRE DE FORME

Je présente ici le calcul du champ magnétique et de l'énergie magnétostatique associés à la densité d'aimantation \vec{M}_3 (cf. chapitre 9), cette dernière étant perpendiculaire au plan; l'indice 3 sera omis dans la suite de cet appendice. Par ailleurs, z représentera ici l'écart à l'interface moyenne (appelé δz dans le chapitre 9).

L'aimantation peut être décomposée en série de Fourier à deux dimensions, soit

$$M(x, y) = \sum_{n=0}^{+\infty} \sum_{m=0}^{+\infty} M_{n, m} \sin(k_n x) \sin(k_m y), \quad (\text{A4-1})$$

avec

$$M_{n, m} = \frac{M_0}{2} \frac{1}{\pi (2n+1) (2m+1)}, \quad \text{et} \quad (\text{A4-2})$$

$$\left. \begin{aligned} k_n &= (2n+1) \frac{2\pi}{2\mathcal{E}}, \\ k_m &= (2m+1) \frac{2\pi}{2\mathcal{E}'}, \\ k_{n, m} &= (k_n^2 + k_m^2)^{1/2}. \end{aligned} \right\} \quad (\text{A4-3})$$

Comme nous l'avons vu au chapitre 9 (équations (9-3) et (9-4)), le champ \vec{H} dérive d'un potentiel, dont l'équation de Poisson se résoud aisément pour chaque composante de Fourier. Nous obtenons ainsi le champ correspondant à la composante de Fourier $M_{n, m}$:

$$\left. \begin{aligned} H_{n,m}^x &= -4\pi M_{n,m} \frac{k_n}{k_{n,m}} \exp(-k_{n,m} \sigma) \operatorname{sh}(k_{n,m} z) \cos(k_n x) \sin(k_m y), \\ H_{n,m}^y &= -4\pi M_{n,m} \frac{k_m}{k_{n,m}} \exp(-k_{n,m} \sigma) \operatorname{sh}(k_{n,m} z) \sin(k_n x) \cos(k_m y), \\ H_{n,m}^z &= -4\pi M_{n,m} \exp(-k_{n,m} \sigma) \operatorname{ch}(k_{n,m} z) \sin(k_n x) \sin(k_m y), \end{aligned} \right\} \quad (\text{A4-4})$$

pour $|z| < \sigma$.

L'énergie dipolaire s'écrit alors

$$E_{dip}^{\perp} = \sum_{n,m=0}^{+\infty} \int -\frac{1}{2} M_{n,m} H_{n,m}^z dV \quad (\text{A4-5})$$

(les termes croisés ne contribuent pas). Après intégration, nous obtenons finalement

$$E_{dip}^{\perp} = 2\sigma S 2\pi \left(\frac{M}{2}\right)^2 f\left(2\pi \frac{\sigma}{\xi}\right), \quad (\text{A4-6})$$

avec

$$f(x) = \frac{4^3}{x\pi^4} \sum_{n,m=0}^{+\infty} \frac{1 - \exp(-x \sqrt{(2n+1)^2 + (2m+1)^2})}{(2n+1)^2 (2m+1)^2 \sqrt{(2n+1)^2 + (2m+1)^2}}. \quad (\text{A4-7})$$

REFERENCES

- Ahmad B.S., Mathon J. et Phan M.S. (1988), *J. Physique* 49, C8-1639
- Akhiezer A.I., Bar'yakhtar V.G. et Peletminskii S.V. (1968), *Spin Waves*, North Holland, Amsterdam
- Alvarado S.F., Kisker E. et Campagna M. (1986), dans *Magnetic Properties of Low-Dimensional Systems*, 52 (éd. par L.M. Falicov et J.L. Moran-Lopez), Springer Verlag, Berlin
- Andersen O.K. (1975), *Phys. Rev. B* 12, 3060
- Bader S.D. et Moog E.R. (1987), *J. Appl. Phys.* 61, 3729
- Bader S.D., Moog E.R. et Grünberg P. (1986), dans *Magnetic Properties of Low-Dimensional Systems*, 70 (éd. par L.M. Falicov et J.L. Moran-Lopez), Springer Verlag, Berlin
- von Barth U. et Hedin L. (1972), *J. Phys. C* 5, 1629
- Baselgia L., Warden M., Waldner F., Hutton S.L., Drumheller J.E., He Y.-Q., Wigen P.E. et Marysko M. (1988), *Phys. Rev. B* 38, 2237
- Bayreuther G. (1983), *J. Magn. Magn. Mat.* 38, 273
- Bayreuther G. (1988), *Hyperfine Interactions* (sous presse)
- Bayreuther G., Bruno P., Lugert G. et Turtur C. (1989a), soumis à *Phys. Rev. Lett.*
- Bayreuther G., Bruno P., Lugert G., Renard D et Turtur C. (1989b), communication présentée à *2nd Int. Symp. TATF*, Regensburg, à paraître dans *Thin Sol. Films*
- Beauvillain P., Chappert C. et Renard J.P. (1985), *J. Phys. E: Sci. Instrum.* 18, 839
- Beauvillain P., Chappert C., Renard J.P., Marlière C. et Renard D. (1986), dans *Magnetic Thin Films*, 77 (éd. par R. Krishnan), Les Editions de Physique, Les Ulis
- Becker R. et Döring W. (1939), *Ferromagnetismus*, Springer Verlag, Berlin
- Becker W., Pfannes H.D. et Keune W. (1983), *J. Magn. Magn. Mat.* 35, 53
- Bergter E., Gradmann U. et Bergholz R. (1985), *Solid State Comm.* 53, 565
- Bennett A.J. et Cooper B.R. (1971), *Phys. Rev. B* 3, 1642
- Birss R.R. (1964), *Symmetry and Magnetism* (éd. par E.P. Wohlfarth), North Holland, Amsterdam
- Bissell P.R., Chantrell R.W., Lutke-Stetskamp H.J., Methfessel S., Sprett G.W.D. et Wohlfarth E.P. (1988), *J. Physique* (sous presse)
- Bitter F. (1931), *Phys. Rev.* 38, 1903

- Bloch F. (1930), *Z. Physik* 61, 206
- Bloch F. (1932), *Z. Phys.* 74, 295
- Bloch F. et Gentile G. (1931), *Z. Phys.* 70, 395
- Bozorth R.M. (1951), *Ferromagnetism*, D. van Nostrand Company, Toronto
- den Broeder F.J.A., Kuiper D., van de Mosselaer A.P. et Hoving W. (1988),
Phys. Rev. Lett. 60, 2769
- Brooks H. (1940), *Phys. Rev.* 58, 909
- Bruno P. (1988a), *J. Phys. F: Met. Phys.* 18, 1291
- Bruno P. (1988b), *J. Appl. Phys.* 64, 3153
- Bruno P. (1989), *Phys. Rev. B* 39, 865
- Bruno P. et Seiden J. (1988), *J. Physique*, 49, C8-1645
- Capellmann H. (1979), *Z. Phys. B* 34, 29
- Césari C., Faure J.P., Nihoul G., Le Dang K., Veillet P. et Renard D.
(1989), *J. Magn. Magn. Mat.* 78, 296
- Chappert C. (1985), *Thèse d'Etat*, Orsay (non publié)
- Chappert C. et Bruno P. (1988), *J. Appl. Phys.* 64, 5736
- Chappert C., Le Dang K., Beauvillain P., Hurdequint H. et Renard D. (1986),
Phys. Rev. B 34, 3192
- Chauvineau J.P. et Pariset C. (1973), *Surf. Sci.* 36, 155
- Cohen P.I., Pukite P.R. et Batra S. (1987), dans *Thin Film Growth Techniques
for Low-Dimensional Structures*, 69 (éd. par R.F.C. Farrow,
S.S.P. Parkin, P.J. Dobson, J.H. Neave et A.S. Arrott), Plenum Press,
New-York
- Corciovei A. (1963), *Phys. Rev.* 130, 2223
- Croce P. et Névot L. (1976), *Revue de Phys. Appl.* 11, 113
- Cyrot M. (1970), *Phys. Rev. Lett.* 25, 871
- Daalderop G.H.O., Kelly P.J., Schuurmans M.F.H. et Jansen H.J.F. (1988),
J. Physique, 49, C8-93
- Desjonquères M.C., Spanjaard D. et Trégliat G. (1988), communication
personnelle
- Döring W. (1961a), *Z. Naturforschg.* 16a, 1008
- Döring W. (1961b), *Z. Naturforschg.* 16a, 1146
- Döring W. (1966), dans *Handbuch der Physik, Vol. XVIII/2: Ferromagnetismus*,
341 (éd. par H.P.J. Wijn), Springer Verlag, Berlin
- Draaisma H.J.G. et de Jonge W.J.M. (1988), *J. Appl. Phys.* 64, 3610
- Dürr W., Taborelli M., Paul O., Germar R., Gudat W., Pescia D. et Landolt M.
(1988), *Phys. Rev. Lett.* 62, 206
- Dutcher J.R., Heinrich B., Cochran J.F., Steigelwald D.A. et Egelhoff W.F.

- Jr. (1988), *J. Appl. Phys.* 63, 3464
- Dyson F. (1956), *Phys. Rev.* 102, 1217 et 1230
- Elliott R.J. (1954), *Phys. Rev.* 96, 266
- Elmers H.J. et Gradmann U. (1988), *J. Appl. Phys.* 63, 3664
- Feder R. (1986), dans *Magnetic Properties of Low-Dimensional Systems*, 46 (éd. par L.M. Falicov et J.L. Moran-Lopez), Springer Verlag, Berlin
- Ferré J. (1989), communication personnelle
- Flanders P.J. (1988), *J. Appl. Phys.* 63, 3940
- Fletcher G.C. (1954), *Proc. Phys. Soc.* A67, 505
- Frank F.C. et van der Merwe J.H. (1949a), *Proc. Roy. Soc. (London)* A 64, 205
- Frank F.C. et van der Merwe J.H. (1949b), *Proc. Roy. Soc. (London)* A 64, 216
- Freeman A.J. (1983), *J. Magn. Magn. Mat.* 35, 31
- Freeman A.J. et Watson R.E. (1965), dans *Magnetism* vol. II A, 167 (éd. par G.T. Rado et H. Suhl), Academic Press, New York
- Friedel J. (1969), dans *The Physics of Metals, 1. Electrons*, 340 (éd. par J.M. Ziman), Cambridge U. P., Cambridge
- Fritsche L., Noffke J. et Eckardt H. (1987), *J. Phys. F: Met. Phys.* 17, 943
- Fu C.L., Freeman A.J. et Oguchi T. (1985), *Phys. Rev. Lett.* 54, 2700
- Fu C.L. et Freeman A.J. (1988), *J. Physique* 49, C8-1623
- Gautier F. (1982), dans *Magnetism of metals and alloys*, 1 (éd. par M. Cyrot), North Holland, Amsterdam
- Gay J.G. et Richter R. (1986), *Phys. Rev. Lett.* 56, 2287
- Gay J.G. et Richter R. (1987), *J. Appl. Phys.* 61, 3362
- Glass S.J. et Klein M.J. (1958), *Phys. Rev.* 109, 288
- Gonser U., Meechan C.J., Muir A.H. et Wiedersich H. (1963), *J. Appl. Phys.* 34, 2373
- Gonzales L., Miranda R., Salmeron M., Vergès J.A. et Yndurain F. (1981), *Phys. Rev. B* 34, 3284
- Gradmann U. (1974), *Appl. Phys.* 3, 161
- Gradmann U. (1986), *J. Magn. Magn. Mat.* 54-57, 733
- Gradmann U. et Bergholz R. (1984), *Phys. Rev. Lett.* 52, 771
- Gradmann U., Korecki J. et Waller G. (1986), *Appl. Phys.* A39, 101
- Gradmann U. et Müller J. (1968), *Phys. Stat. Sol.* 27, 313
- Gradmann U. et Müller J. (1970), *Z. Angew. Phys.* 30, 87
- Gradshteyn I.S. et Ryzhik I.M. (1965), *Table of Integrals, Series and Products*, Academic Press, New-York
- Grütter P., Meyer E., Heinzelmann H., Hidber H.R. et Güntherodt H.J. (1988), communication présentée à ICM88, à paraître dans *J. Physique*

- Halbauer R. et Gonser U. (1983), *J. Magn. Magn. Mat.* 35, 55
- Harrison W.A. (1980), *Electronic Structures and the Properties of Solids*, 476, W.H. Freeman, San Francisco
- Heisenberg W. (1928), *Z. Phys.* 49, 619
- Henkel O. (1964), *Phys. Stat. Sol.* 7, 919
- Herpin A. (1964), *Théorie du Magnétisme*, Presses Universitaires de France, Paris
- Herring C. (1966), dans *Magnetism*, vol. IV, 1 (éd. par G.T. Rado et H. Suhl), Academic Press, New-York
- Herring C. et Kittel C. (1951), *Phys. Rev.* 81, 869
- Hohenberg P. et Kohn W. (1964), *Phys. Rev.* 136, B864
- Hubbard J. (1963), *Proc. Roy. Soc. A* 276, 238
- Hubert A., Unger W. et Kranz J. (1969), *Z. Phys.* 224, 148
- Izuyama T., Kim D.J. et Kubo R. (1963), *J. Phys. Soc. Jap.* 18, 1025
- Jepsen O., Madsen J. et Andersen O.K. (1978), *Phys. Rev. B* 18, 605
- Jepsen O., Madsen J. et Andersen O.K. (1982), *Phys. Rev. B* 26, 2790
- Johanson G.J., McGirr M.B. et Wheeler D.A. (1970), *Phys. Rev. B* 1, 3208
- Karas W., Noffke J. et Fritsche L. (1988), *J. Physique* (sous presse)
- Kawakami M., Hihara T., Koi Y. et Wakiyama T. (1972), *J. Phys. Soc. Jap.* 33, 1591
- Keffer F. (1966), dans *Hanbuch der Physik, Band XVIII/2: Ferromagnetismus*, 1 (éd. par H.P.J. Wijn), Springer Verlag, Berlin
- Kersten M. (1943), *Phys. Z.* 44, 63
- Kittel C. (1983), *Physique de l'Etat Solide*, 557, Dunod, Paris
- Klebanoff L.E., Robey S.W., Liu G. et Shirley D.A. (1986), dans *Magnetic Properties of Low-Dimensional Systems*, 75 (éd. par L.M. Falicov et J.L. Moran-Lopez), Springer Verlag, Berlin
- Klein M.J. et Smith R.S. (1951), *Phys. Rev.* 81, 378
- Kléman M. (1982), dans *Magnetism of Metals and Alloys*, 535 (éd. par M. Cyrot), North Holland, Amsterdam
- Kneller E. (1962), *Ferromagnetismus*, Springer Verlag, Berlin
- Kohn W. et Sham L.J. (1965), *Phys. Rev.* 140, A1133
- Koi Y., Tsujimura A., Hihara T. et Kushida T. (1962), *J. Phys. Soc. Jap.* 17 Suppl. B1, 96
- Kondorskii E.I. (1974), *IEEE Trans. Magn.* 10, 132
- Kondorskii E.I. et Staube E. (1973), *Sov. Phys. JETP* 36, 188
- Korecki J. et Gradmann U. (1986), *Europhys. Lett.* 2, 651
- van Kranendonk J. et van Vleck J.H. (1958), *Rev. Mod. Phys.* 30, 1

- Kümmerle W. et Gradmann U. (1977), *Solid State Comm.* 24, 33
- Landau L. et Lifschitz E. (1935), *Phys. Z. Sowjet.* 8, 153
- Landau L. et Lifschitz E. (1972), *Théorie de l'Elasticité*, Editions Mir, Moscou
- Le Dang K., Veillet P., Chappert C., Beauvillain P. et Renard D. (1986), *J. Phys. F: Met. Phys.* 16, L109
- Liu C., Moog E.R. et Bader S.D. (1988), *J. Appl. Phys.* 64, 5325
- Loebich (1964), dans *Zahlenwerten und Funktionen aus Physik-Chemie-Astronomie-Geophysik und Technik, Band IV, Teil 2, Bandteil b*, 607 (éd. par Landolt et Börstein), Springer Verlag, Berlin
- Lowde R.D. (1956), *Proc. Roy. Soc. A* 235, 305
- Löwdin P.O. (1956), *Adv. in Phys.* 5, 1
- Lugert G. et Bayreuther G. (1988), *Phys. Rev. B* 38, 11068
- Lugert G. et Bayreuther G. (1989), communication personnelle
- Mac Skimin H.J. (1963), *J. Appl. Phys.* 26, 406
- Marcus P.M. et Moruzzi V.L. (1985), *Solid State Comm.* 55, 971
- Markov I. et Milchev A. (1984a), *Surf. Sc.* 136, 519
- Markov I. et Milchev A. (1984b), *Surf. Sc.* 145, 313
- Mason W.P. (1954), *Phys. Rev.* 96, 302
- Mathon J. (1983), *Phys. Rev. B* 27, 1916
- Mathon J. (1988), *Rep. Prog. Phys.* 51, 1
- Mathon J. et Ahmad B.S. (1988), *Phys. Rev. B* 37, 660
- Matthews J.W. et Crawford J.L. (1970), *Thin Sol. Films* 5, 187
- van der Merwe J.H. (1963a), *J. Appl. Phys.* 34, 117
- van der Merwe J.H. (1963b), *J. Appl. Phys.* 34, 123
- van der Merwe J.H. (1970), *J. Appl. Phys.* 41, 4725
- Mermin N.D. et Wagner H. (1966), *Phys. Rev. Lett.* 17, 1133
- Messiah A. (1964), *Mécanique Quantique*, tome 2, 662, Dunod, Paris
- Milchev A. et Markov I. (1984), *Surf. Sc.* 136, 503
- Mori N. (1969), *J. Phys. Soc. Jap.* 27, 307
- Mori N., Fukuda Y. et Ukai T. (1974a), *J. Phys. Soc. Jap.* 37, 1263
- Mori N., Ukai T. et Yoshida H. (1974b), *J. Phys. Soc. Jap.* 37, 1272
- Moriya T. (1985), *Spin Fluctuations in Itinerant Electron Magnetism*, Springer Verlag, Berlin
- Morrish A.H. (1965), *The Physical Principles of Magnetism*, John Wiley, New-York
- Moruzzi V.L., Janak J.F. et Williams A.R. (1978), *Calculated Electronic Properties of Metals*, Pergamon, New-York

- Moruzzi V.L., Marcus P.M., Schwarz K. et Mohn P. (1986), *Phys. Rev. B* 34, 1784
- Moruzzi V.L., Marcus P.M. et Kübler J. (1989), *Phys. Rev. B* 39, 6957
- Navarro R. et de Jongh L.J. (1979), *Physica* 98B, 1
- Néel L. (1942), *Cah. Phys.* 12, 1
- Néel L. (1944), *Cah. Phys.* 25, 21
- Néel L. (1946a), *Ann. Univ. Grenoble* 22, 299
- Néel L. (1946b), *C. R. Ac. Sc.* 223, 141
- Néel L. (1946c), *C. R. Ac. Sc.* 223, 198
- Néel L. (1949), *Ann. Géophys.* 5, 99
- Néel L. (1950), *J. Phys. Rad.* 11, 49
- Néel L. (1951), *J. Phys. Rad.* 12, 339
- Néel L. (1952), *J. Phys. Rad.* 13, 249
- Néel L. (1953), *C. R. Ac. Sc.* 237, 1468
- Néel L. (1954), *J. Phys. Rad.* 15, 376
- Nénot L. (1978), *Thèse d'Etat*, Orsay (non publié)
- Nénot L. et Croce P. (1975), *J. Appl. Cryst.* 8, 304
- Noffke J. et Fritsche L. (1981), *J. Phys. C: Solid State Phys.* 14, 89
- Oepen H.P. et Kirschner J. (1988), *J. Physique* 49, C8-1853
- Oguchi T. (1960), *Phys. Rev.* 117, 117
- Oles A.M. et Fulde P. (1984), *Phys. Rev. B* 30, 4259
- Onellion M.F., Fu C.L., Thompson M.A., Erskine J.L. et Freeman A.J. (1986), *Phys. Rev. B* 33, 7322
- Pardo B. (1977), *Thèse d'Etat*, Orsay (non publié)
- Pariset C. et Chauvineau J.P. (1976), *Surf. Sci.* 57, 363
- Pariset C. et Chauvineau J.P. (1978), *Surf. Sci.* 78, 478
- Pescia D., Stambanoni M., Bona G.L., Vaterlaus A., Willis R.F. et Meier F. (1987), *Phys. Rev. Lett.* 58, 2126
- Phillips T.G. et Rosenberg H.M. (1966), *Rep. Prog. Phys.* 29, 285
- Portis A.M. et Gossard A.C. (1960), *J. Appl. Phys.* 31, 2055
- Preisach F. (1935), *Z. f. Physik* 94, 277
- Prinz G., Rado G.T. et Krebs J.J. (1982), *J. Appl. Phys.* 53, 2087
- Purcell S.T., Heinrich B. et Arrott A.S. (1988), *J. Appl. Phys.* 64, 5337
- Rado G.T. (1982), *Phys. Rev. B* 26, 295
- Rado G.T. (1987), *J. Appl. Phys.* 61, 4262
- Renard D. et Nihoul G. (1987), *Phil. Mag. B* 55, 75
- Renard D. et Renard J.P. (1989), communication personnelle
- Renard D., Marlière C. et Chauvineau J.P. (1989), à paraître

- Renard J.P. et Beauvillain P. (1987), *Physica Scripta* T19, 405
- Richter G. (1937), *Ann. Physik* 29, 605
- Richter R., Gay J.G. et Smith J.R. (1985), *Phys. Rev. Lett.* 54, 2704
- Ricodeau J.A. (1972), *Phys. Rev. B* 7, 4950
- Robins J.L., Celotta R.J., Unguris J., Pierce D.T., Jonker B.T. et Prinz G.A. (1988), *Appl. Phys. Lett.* 52, 1918
- Rohrmann H. (1989), communication présentée à 2nd Int. Symp. TATF, Regensburg, à paraître dans *Thin Sol. Films*
- Seiden J. (1988), communication personnelle
- Slater J.C. et Koster G.F. (1954), *Phys. Rev.* 94, 1498
- Snoek J.L. (1938), *Physica* 5, 663
- Snyman J.A. et van der Merwe J.H. (1974a), *Surf. Sc.* 42, 190
- Snyman J.A. et van der Merwe J.H. (1974b), *Surf. Sc.* 45, 619
- Snyman J.A. et Snyman H.C. (1981), *Surf. Sc.* 105, 357
- Smit J. et Beljers H.G. (1955), *Philips Res. Rep.* 10, 113
- Stampanoni M., Vaterlaus A., Aeschlimann M., Meier F. et Pescia D. (1988), *J. Appl. Phys.* 64, 5321
- Stern G.P., Qui Z.O., Tang H. et Walker J.C. (1988), *Hyperfine Interactions* 41, 709
- Street R. et Wooley J.C. (1949), *Proc. Phys. Soc. A* 62, 562
- Takayama H., Bohnen K.P. et Fulde P. (1976), *Phys. Rev. B* 14, 2287
- Tersoff J. et Falicov L.M. (1982), *Phys. Rev. B* 26, 6186
- Uehara M. et Barbara B. (1986), *J. Physique* 47, 235
- Unguris J., G. Hembree, Celotta D.T. Pierce (1986), *J. Magn. Magn. Mat.* 54-57, 1629
- Urquhart K.B., Heinrich B., Cochran J.F., Arrott A.S. et Myrtle K. (1988), *J. Appl. Phys.* 64, 5334
- van Vleck J.H. (1937), *Phys. Rev.* 52, 1178
- Victora R.H. (1986), dans *Magnetic Properties of Low-Dimensional Systems*, 25 (éd. par L.M. Falicov et J.L. Moran-Lopez), Springer Verlag, Berlin
- Victora R.H. et Falicov L.M. (1983), *Phys. Rev. B* 28, 5232
- Walker L.R. (1963), dans *Magnetism, vol. I*, 299 (éd. par G.T. Rado et H. Suhl), Academic Press, New-York
- Wang C.S. et Callaway J. (1973), *Phys. Rev. B* 9, 4897
- Wang D.S., Freeman A.J. et Krakauer H. (1982), *Phys. Rev. B* 26, 1340
- Weinert M., Freeman A.J., Onishi S. et Davenport J.W. (1985), *J. Appl. Phys.* 57, 3641
- Weiss P. (1907a), *J. Phys. Rad.* 4, 469

- Weiss P. (1907b), *J. Physique* 6, 661
- Wimmer E. (1984), *J Phys F: Met. Phys.* 14, 2613
- Wimmer E., Freeman A.J. et Krakauer H. (1984), *Phys Rev B* 30, 3113
- Wohlfarth E.P. (1958), *J. Appl. Phys.* 29, 595
- Wohlfarth E.P. (1963), dans *Magnetism, Vol. 3*, 351 (éd. par G.T. Rado et H. Suhl), Academic Press, New-York
- Wohlfarth E.P. (1980), dans *Ferromagnetic Materials, Vol. 1*, 1 (éd. par E.P. Wohlfarth), North Holland, Amsterdam
- Yafet Y., Kwo J. et Gyorgy E.M. (1986a), *Phys. Rev. B* 33, 6519
- Yafet Y., Gyorgy E.M. et Walker L.R. (1986b), *J. Appl. Phys.* 60, 4236
- Yafet Y. et Gyorgy E.M. (1988), *Phys. Rev. B* 38, 9145
- Zhang L. et Rado G.T. (1987), *Phys. Rev. B* 36, 7071

ANISOTROPIE MAGNETIQUE ET HYSTERESIS DU COBALT
A L'ECHELLE DU PLAN ATOMIQUE: THEORIE ET EXPERIENCE

Résumé:

Cette thèse présente l'étude expérimentale et théorique des propriétés magnétiques de films ultraminces de cobalt épitaxiés sur substrats d'or polycristallins. Les mesures de cycles d'hystérésis confirment la présence (précédemment observée par résonance ferromagnétique) d'une forte anisotropie d'interface s'opposant au champ démagnétisant, et donnant lieu, pour des épaisseurs de cobalt inférieures à 6 plans atomiques, à un basculement de l'axe de facile aimantation perpendiculairement au plan de la couche. J'ai également mis en évidence deux phénomènes nouveaux: à basse température, le champ coercitif augmente considérablement aux faibles épaisseurs; à température ambiante, il existe un traînage important de l'aimantation. J'ai interprété ces phénomènes à l'aide d'un modèle de mouvements de parois de Bloch, montrant le rôle prépondérant joué par la rugosité interfaciale.

J'ai étudié théoriquement, par des calculs de structure électronique dans l'approximation des liaisons fortes, l'anisotropie magnétique de films monoatomiques de fer, cobalt et nickel. Ces calculs contribuent à une compréhension meilleure de ce phénomène. Par ailleurs, l'étude du moment magnétique orbital m'a permis de prédire un effet original dans ces films ultraminces: une anisotropie du moment magnétique d'environ 0,1 magnéton de Bohr, très supérieure à celle des matériaux massifs. Enfin, j'ai étudié, à l'aide de modèles phénoménologiques, l'effet des imperfections (rugosité, déformations interfaciales) sur l'anisotropie magnétique.

Mots clefs:

films ultraminces, cobalt, anisotropie, hystérésis, rugosité, structure de bandes, couplage spin-orbite, moment magnétique orbital.