

COUPLAGES FERROMAGNÉTIQUES-ANTIFERROMAGNÉTIQUES : ÉTUDE DES CONTRACTIONS DE CYCLES D'HYSTÉRÉSIS A L'AIDE D'UN TRACEUR DE CYCLE TRÈS BASSES FRÉQUENCES

Par Mme C. SCHLENKER et D. PACCARD,

Laboratoire d'Électrostatique et Physique du Métal, B.P. 319, Grenoble.

Résumé. — On a réalisé, à l'aide d'une balance de torsion, un traceur de cycle TBF destiné à enregistrer les cycles d'hystérésis de systèmes présentant des propriétés de couplages ferro-magnétiques-antiferromagnétiques. On a pu observer sur trois systèmes Co-CoO, FeNi-FeNiMn, FeNi-Cr₂O₃, que les cycles d'hystérésis décrits successivement se contractent. Cette nouvelle propriété de contraction des cycles d'hystérésis semble être liée à l'hystérésis de rotation et être caractéristique des couplages ferro-antiferromagnétiques.

Abstract. — Using a magnetic torque balance, we have constructed a low frequency hysteresis loop tracer, in order to record the hysteresis loop of systems exhibiting ferromagnetic-antiferromagnetic coupling. On three systems, Co-CoO, NiFe-NiFeMn, NiFe-Cr₂O₃, we have observed a contraction of the hysteresis loop with increasing numbers of cycles traced. This new property seems to be related to the rotational hysteresis and to be characteristic of ferro-magnetic-antiferromagnetic coupling.

Introduction et rappels. — Les couplages ferro-magnétiques-antiferromagnétiques ont été mis en évidence en 1956 sur des grains fins de cobalt partiellement oxydés [1]. Des phénomènes analogues ont été observés depuis sur de nombreux systèmes constitués d'un matériau ferromagnétique et d'un matériau antiferromagnétique en contact, ou comprenant simultanément une phase ferromagnétique et une phase antiferromagnétique [1]. Lorsqu'on refroidit un tel système à partir d'une température T_1 inférieure au point de Néel T_N de l'antiferromagnétique, mais supérieure à une température T_2 inférieure à T_N , en présence d'un champ suffisant pour saturer le ferromagnétique, on observe généralement à la température T_2 les trois propriétés suivantes :

— Le cycle d'hystérésis que l'on obtient en appliquant un champ magnétique parallèlement à la direction imposée à l'aimantation du ferromagnétique pendant le refroidissement est dissymétrique par rapport à l'axe des aimantations, il est « décalé » le long de l'axe des champs.

— Si l'on applique à l'échantillon maintenu fixe un champ magnétique beaucoup plus grand que le champ d'anisotropie du matériau ferromagnétique et tournant dans un plan passant par la direction privilégiée lors du refroidissement, il apparaît un couple magnétique Γ . La courbe $\Gamma(\theta)$, où θ est l'angle que fait le champ avec cette direction privilégiée, comprend une composante de Fourier $K_0 \sin \theta$. K_0 est la constante

d'anisotropie unidirectionnelle rapportée à l'unité de volume du ferromagnétique. L'échantillon n'a donc plus, en présence d'un champ, qu'une position d'équilibre stable : celle pour laquelle le champ extérieur est parallèle au champ appliqué pendant le refroidissement et de même sens que lui. Un échantillon uniaxe, au contraire, a deux positions d'équilibre stable en présence d'un champ.

— Les pertes d'énergie en champ tournant ou « hystérésis de rotation » ne diminuent pas et ne s'annulent pas lorsqu'on augmente le champ bien au-delà du champ d'anisotropie du ferromagnétique, contrairement à ce qu'on observe dans les matériaux ferromagnétiques ordinaires.

Les deux premières propriétés constituent l'anisotropie unidirectionnelle ou « anisotropie d'échange ». Elle est liée à l'interaction d'échange qui existe à l'interface ferro-antiferromagnétique. Lors du refroidissement du système au-dessous du point de transition T_N , les moments magnétiques de l'antiferromagnétique s'orientent en fonction de leur interaction avec ceux du ferromagnétique; si l'anisotropie de l'antiferromagnétique est très forte à la température T_2 , ils vont rester bloqués dans la direction qui était privilégiée pendant le refroidissement, quel que soit l'état magnétique du ferromagnétique. Si l'on appelle H_0 l'amplitude du décalage du cycle d'hystérésis, M_s l'aimantation spontanée rapportée à l'unité de volume du ferromagnétique, on s'attend à ce que la relation $H_0 = K_0/M_s$ soit vérifiée [1].

On ne peut interpréter l'hystérésis de rotation au moyen du modèle précédent; en effet, elle est liée à des réorientations discontinues des moments dans l'antiferromagnétique dont on ne tient pas compte dans le blocage invoqué pour interpréter l'anisotropie unidirectionnelle.

Nous avons entrepris l'étude des couplages ferro-antiferromagnétiques sur des couches minces préparées par évaporation sous un vide de 10^{-6} Torr. Les couches ferromagnétiques sont toujours déposées en présence d'un champ magnétique destiné à créer une anisotropie uniaxiale. Nous avons étudié les trois systèmes suivants :

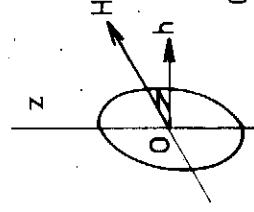
— Co-CoO, obtenu par oxydation superficielle d'une couche de cobalt; l'oxyde CoO est antiferromagnétique et a un point de Néel de 18°C [2].

— FeNi-FeNiMn, obtenu par évaporation d'une couche de FeNi sur une couche de manganèse [2], [3]. Le matériau antiferromagnétique est constitué d'une série d'alliages du type $\text{Fe}_x\text{Ni}_y\text{Mn}_z$ à points de Néel compris entre 150°C et 250°C .

— FeNi-Cr₂O₃, obtenu en oxydant complètement une couche de chrome et en déposant ensuite une couche de FeNi [2]. L'oxyde de chrome Cr₂O₃ est antiferromagnétique et a un point de Néel de 35°C .

Nous avons mis en évidence sur ces trois systèmes toutes les propriétés caractéristiques des couplages ferro-antiferromagnétiques. Les cycles d'hystérésis étaient étudiés par des méthodes dynamiques à la fréquence de 50 Hz ou de 1 000 Hz et les courbes de couple au moyen d'une balance magnétique de torsion [4]. Les valeurs expérimentales de H_0 et de K_e/M_s étant le plus souvent assez différentes, nous avons été amenés à étudier les cycles d'hystérésis par une méthode quasi statique.

Traceur de cycle automatique à très basses fréquences. — Cet appareil est réalisé au moyen d'une balance magnétique de torsion asservie et de sensibi-



Oz axe de torsion

FIG. 1. — Traceur de cycle TBF. Position de l'échantillon.

lité 5×10^{-5} dynes.cm. La couche mince est placée dans un plan vertical par lequel passe l'axe de torsion de la balance [5]. On dispose de deux paires de bobines d'Helmholtz d'axes horizontaux et perpendiculaires entre eux (fig. 1). L'une d'elles crée un champ alternatif très basse fréquence H , parallèle au plan du film et destiné à faire basculer l'aimantation ferromagnétique M . La deuxième paire crée un champ continu très petit, h (quelques oersteds), constant et perpendiculaire au plan de la couche; ce champ est assez petit pour ne pas perturber l'aimantation ferromagnétique; par contre, il exerce sur cette aimantation un couple $M \wedge h$, mesurable par la balance et proportionnel à M . Le relevé de ce couple en fonction du champ H nous permet donc d'obtenir le cycle d'hystérésis de l'échantillon.

L'asservissement de la balance introduit un déphasage par l'intermédiaire du réseau correcteur assurant la stabilité du système et limite par conséquent la fréquence à des valeurs inférieures ou égales à 10^{-2} cycles/s.

L'étude des couplages ferro-antiferromagnétiques, en particulier sur le système Co-CoO, exige pour le champ H une amplitude de plusieurs centaines d'oersteds et par conséquent une source de puissance de plusieurs centaines de watts. Cette source est constituée d'alimentations de puissance pilotées par un générateur TBF (fig. 2). Ce dispositif nous permet

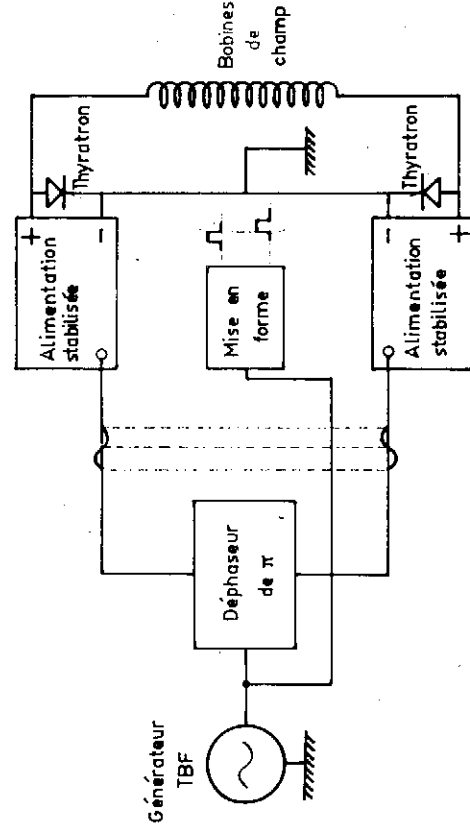


FIG. 2. — Schéma synoptique de la source de puissance TBF.

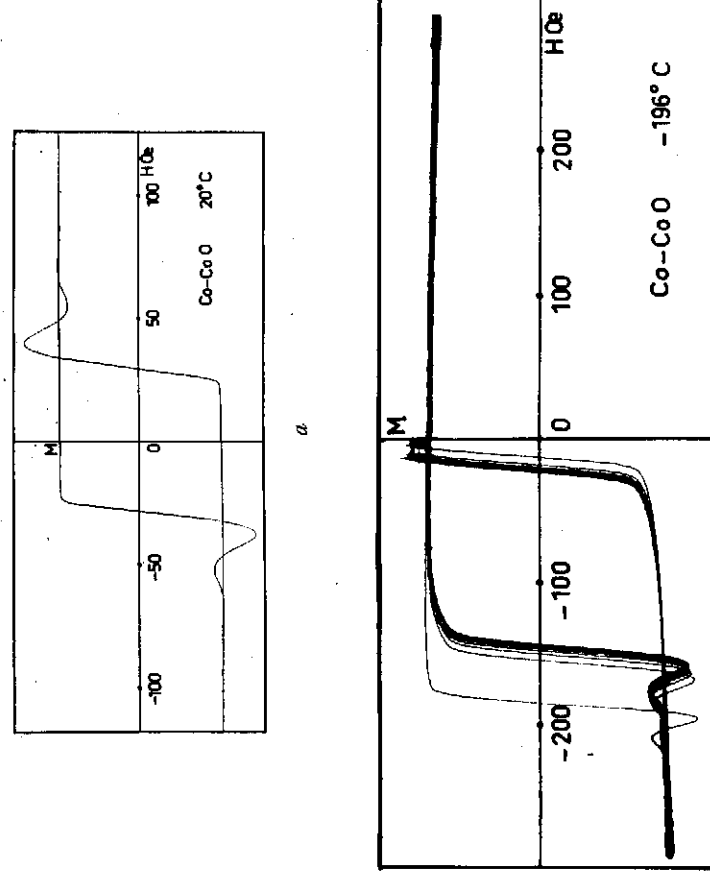


FIG. 3. — Cycles d'hystérésis de couches Co-CoO relevées à 5×10^{-3} Hz. Les oscillations proviennent de l'appareil de mesure.

d'obtenir un champ de 400 oersteds d'amplitude, à des fréquences comprises entre 5×10^{-4} cycles/s et 10^{-2} cycles/s.

Résultats expérimentaux. — Les matériaux sont refroidis à partir d'une température supérieure ou voisine du point de Néel, le ferromagnétique étant maintenu saturé par un champ magnétique parallèle à l'axe d'anisotropie uniaxiale. Les deux anisotropies uniaxiale et unidirectionnelle ont donc même axe. On étudie ensuite les cycles d'hystérésis en appliquant le champ parallèlement à cet axe.

L'appareillage décrit ci-dessus nous a permis d'observer une propriété nouvelle sur les cycles d'hystérésis. Lorsqu'il y a couplage ferro-antiferromagnétique, donc décalage du cycle d'hystérésis, les cycles décrits successivement ne se superposent pas : on observe une contraction du cycle correspondant à une diminution de sa largeur et du décalage (fig. 3 et 4). Les variations diminuent rapidement avec l'ordre du cycle, l'écart entre le premier et le second cycle étant beaucoup plus important que les suivants.

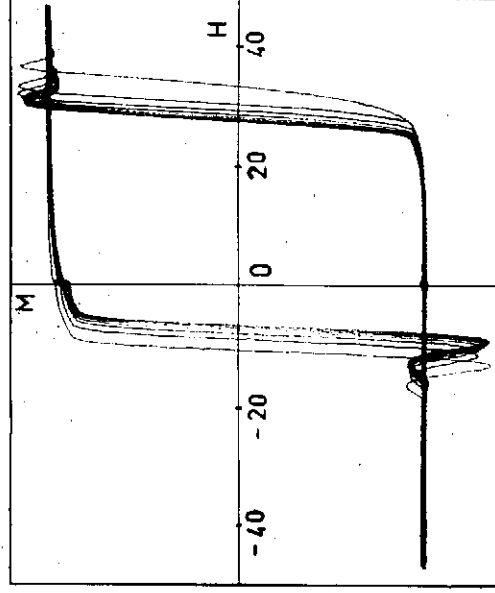
Si l'on fait exception du premier cycle, ces contractions suivent dans tous les cas, pour les cycles d'ordre inférieur à environ 50, les lois suivantes :

$$H\alpha_n - H\alpha_\infty = A/\sqrt{n} \quad H\beta_n - H\beta_\infty = B/\sqrt{n}$$

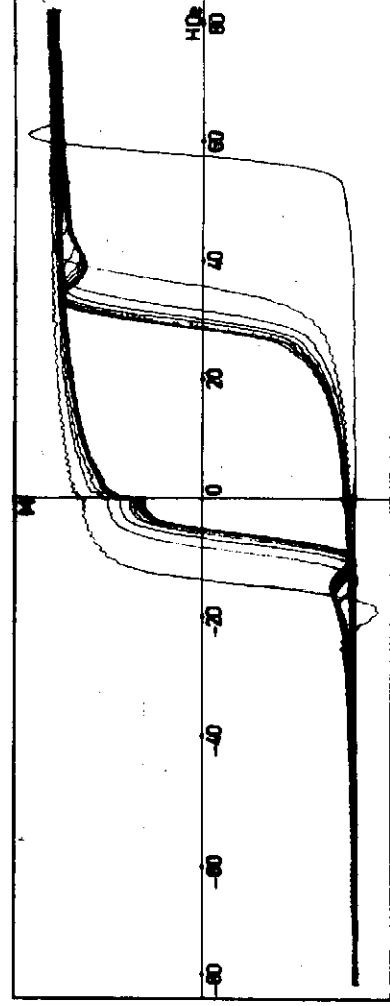
$H\alpha$ et $H\beta$ sont les deux champs coercitifs ($H\alpha > H\beta$), n l'ordre du cycle décrit, A et B des constantes expérimentales (fig. 5, 6 et 7).

Pour revenir à l'état initial précédant le premier cycle décrit, on peut réchauffer l'échantillon jusqu'à une température supérieure ou voisine du point de Néel et renouveler le même processus de refroidissement. Mais on obtient le même résultat à température constante, en saturant le ferromagnétique dans le plan de la couche dans la direction perpendiculaire à l'axe commun des anisotropies.

On a pu montrer que l'amplitude des contractions de cycle est liée à l'amplitude de l'hystérésis de rotation. Ainsi, pour le système FeNi-FeNiMn où les mesures ont été faites à 20 °C et à -196 °C, on constate que les contractions de cycle et l'hystérésis de rotation sont beaucoup plus fortes à -196 °C qu'à 20 °C, alors que les constantes d'anisotropie mesurées à ces deux températures sont très voisines (tableau I). La figure 8 donne les résultats obtenus sur une série de couches Co-CoO. On en conclut que l'hystérésis de rotation et les contractions de cycles d'hystérésis ont, au moins en très grande partie, la même origine.



a) A 20 °C.



b) A — 196 °C.

FIG. 4. — Cycles d'hystérésis de couches FeNi-FeNiMn.

TABLEAU I

FeNi-FeNiMn		
$(H_{e1} - H_{e\infty})$ Oe	$(H_{e1} - H_{e\infty})$ Oe	$10^{-5} W_r$ ergs/cm ³
20 °C	8,1	0,39
— 196 °C	21,3	1,40

Dans le tableau I, H_e et H_e sont respectivement la sur les droites $H(1/\sqrt{n})$. W_r est l'énergie perdue demi-largeur et le décalage du cycle d'hystérésis. par l'hystérésis de rotation par unité de volume du H_{e1} et $H_{e\infty}$ sont les valeurs expérimentales pour $n = 1$, ferromagnétique. $H_{e\infty}$ et $H_{e\infty}$ sont les valeurs extrapolées pour n infini

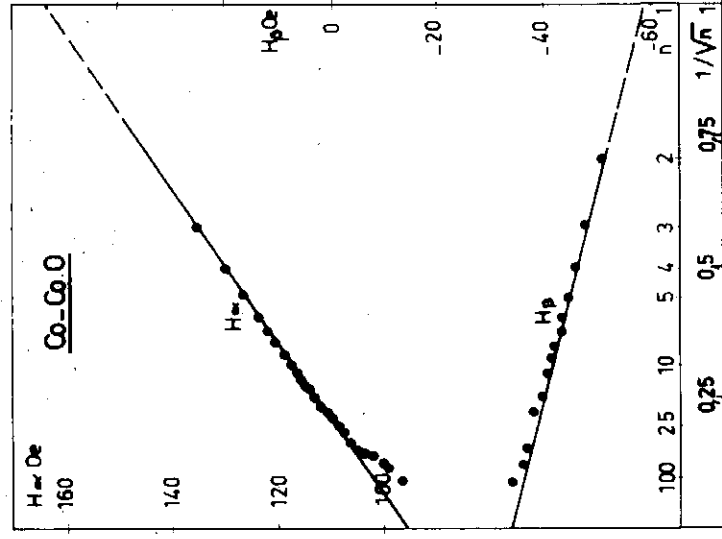


FIG. 5. — Champs coercitifs H_{α} et H_{β} en fonction de $1/\sqrt{n}$ pour un échantillon Co-CoO.

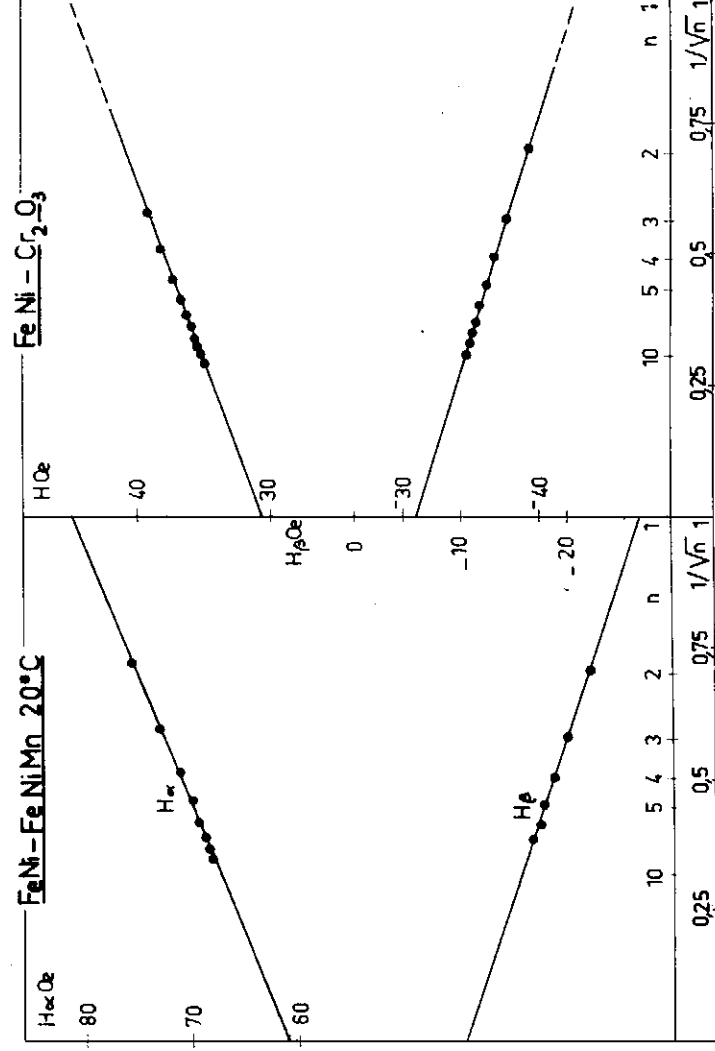


FIG. 6. — Champs coercitifs H_{α} et H_{β} en fonction de $1/\sqrt{n}$ pour une couche FeNi-FeNiMn.

FIG. 7. — Champs coercitifs H_{α} et H_{β} en fonction de $1/\sqrt{n}$ pour une couche FeNi-Cr₂O₃.

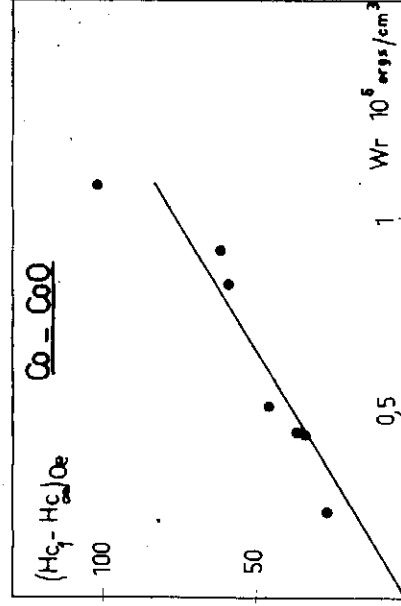


FIG. 8.

On attribue ce nouveau phénomène de variation des cycles d'hystérésis à des fluctuations dans l'intensité du couplage ferro-antiferromagnétique d'un point à

l'autre de l'interface des deux matériaux. Chaque basculement de l'aimantation du ferromagnétique entraîne des réorientations irréversibles des moments de l'antiferromagnétique dans certaines régions, et par conséquent des variations de l'énergie globale de couplage. En champ tournant, des réorientations analogues sont à l'origine de l'hystérésis de rotation. Le mécanisme de ces réorientations demande encore à être précisé.

Conclusion. — Nous pensons que la nouvelle propriété de contraction des cycles d'hystérésis mise en évidence sur plusieurs systèmes en même temps que les propriétés liées aux couplages ferro-antiferromagnétiques est caractéristique de ces couplages.

Elle semble pouvoir contribuer à une meilleure compréhension de ces phénomènes et peut permettre de trouver un modèle reliant l'hystérésis de rotation à l'anisotropie unidirectionnelle.

Manuscrit reçu le 25 juin 1966.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] MEIKLEJOHN (W. H.), BEAN (C. P.), *Phys. Rev.*, 1956, **102**, 1413 ; 1957, **105**, 904.
 MEIKLEJOHN (W. H.), *J. Appl. Physics*, Suppl., 1962, **33**, 1328.
- [2] PACCARD (D.), SCHLENKER (C.), MASSENET (O.), MONTMORY (R.) et YELON (A.), *Phys. Status Sol.*, 1966, **16**, 301.
- [3] MASSENET (O.), MONTMORY (R.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1964, **258**, 1752.
 MASSENET (O.), MONTMORY (R.), NÉEL (L.), *I.E.E. Trans. Magnetics MAG*, 1965, **63**, 1.
- [4] PACCARD (D.), *J. Physique*, à paraître.
- [5] TOROK (E. J.), AGOURIDIS (D. G.), OLSON (A. L.), OREDSON (H. N.), *Rev. Sci. Instr.*, 1964, **35**, 1039.