CONTRIBUTION A L'ÉTUDE DE COUCHES MINCES DE FER ET DE NICKEL DÉPOSÉES SUR SUPPORT DE CUIVRE A TRÈS BASSE TEMPÉRATURE

Par R. CONTE et L. WEIL,
Université de Grenoble, France.

Résumé. — Des couches minces de fer et de nickel déposées sur du cuivre à 4,2 et 20 °K ont été étudiées au point de vue magnétique. Un recuit à la température ambiante amène une modification importante du champ coercitif et de l'aimantation rémanente, indice d'un réarrangement de la structure. Dans le cas de couches déposées à 14 °K des mesures effectuées à 20 °K indiquent qu'à cette température le réarrangement est déjà établi.

Abstract. — Some magnetic properties of thin iron and nickel films deposited on copper substrate at 4,2 and 20 °K have been studied. Annealing at room temperature produced important modifications of the coercive force and the remanent magnetization. This is interpreted as a sign of structural rearrangement during annealing. In the case of films deposited at 14 °K, measurements at 20 °K indicate that this rearrangement process has already occurred at the latter temperature.

Nous avons étudié les propriétés magnétiques de couches minces de fer et de nickel déposées à très basse température en vue d'examiner les conditions de restauration au-dessous de l'ambiante.

1. Confection des couches. Ces couches, ayant la forme d'une surface cylindrique, ont été obtenues par vaporisation sous vide et condensation sur un tube de cuivre de 2/10 mm d'épaisseur et de 6 mm de diamètre, plongeant dans l'hélium liquide ou l'hydrogène liquide. Elles ont des hauteurs de l'ordre de 1 cm.

Le filament de métal à vaporiser a été porté à très haute température. Le rapport de la masse de métal vaporisé (de la forme $w = c - 0,5 \log T - \frac{B}{T}$ [1]) à l'énergie rayonnée, ($\sim T^4$) croît en effet avec la température de vaporisation. Nous avons choisi 900 °C environ. Ainsi, avec des temps de vaporisation du métal de 5 minutes, soit une masse de l'ordre du 1/2 mg, on ne vaporisait qu'environ 250 cc d'hélium liquide.

La pression dans le tube de cuivre où a lieu la vaporisation était de 10^{-6} mm d'Hg dès avant le refroidissement, et baissait donc encore par la suite. Le tube a d'autre part été nettoyé, vidé pendant plusieurs jours, et chauffé afin de permettre un bon dégazage des parois.

Pour le recuit à l'ambiante on retire simplement le tube du vase Dewar.

2. Nature des couches réalisées. Les couches, d'aspect homogène, apparaissaient en général plus sombres que celles que l'on dépose à la température ambiante. Les grains constituant les dépôts à basse température sont beaucoup plus fins [2] et ne forment pas un « miroir ». Pour évaluer l'épais-

seur de ces couches, nous avons eu recours à leur dosage chimique [3].

Dans le cas de la couche de nickel II on a ainsi trouvé $0,00033 \pm 0,00001$ gr, ce qui correspond à une épaisseur moyenne de l'ordre de $0,20 \mu$ en admettant que la densité de la couche est celle du nickel massif.

3. Mesures. Des études de couches minces de métaux magnétiques déposés à basse température (-196 °C et -78 °C) ont déjà été faites par Griest, Libsh et Conard [2]. Ces auteurs ont étudié l'effet d'un champ magnétique durant le dépôt sur les propriétés magnétiques. Félici [4], Colombani [5] mesurèrent H_c et B_r mais les dépôts n'avaient pas lieu au-dessous de l'ambiante. Van Itterbeck [6] étudia la magnétorésistance de couches déposées à 77 °K. König [7] a mesuré l'effet Faraday de couches déposées à l'ambiante et à haute température et recherché l'effet d'un recuit.

Dans les expériences que nous allons décrire ci-dessous les couches ont été déposées à 4 °K (ou exceptionnellement 14 et 20 °K) ; elles ont subi un recuit à 300 °K ; les propriétés magnétiques ont été mesurées, *toujours à très basse température* avant et après le recuit. Les mesures magnétiques ont été faites par une méthode d'extraction dans des champs pouvant atteindre 3 000 Oersteds parallèles à l'axe des cylindres.

4. Résultats relatifs au fer. Les courbes d'aimantation de toutes ces couches ont la même allure. La figure 1 donne les cycles observés sur la couche II. Aucune ne donne une approche raisonnable à la saturation dans les champs observés. Il est toutefois intéressant de remarquer que des valeurs de σ_{3000} sont d'autant plus

FIG. 1. — Couche mince de fer (II) déposée à 4 °K.
 ——— immédiatement après dépôt ;
 - - - après recuit à 300 °K.

grandes que les couches sont plus épaisses, sans qu'il y ait proportionnalité : les dépôts plus épais sont relativement plus magnétiques que les plus minces.

L'allure des courbes suggère l'existence d'une fraction paramagnétique apparente [8] et d'une fraction « ferromagnétique » qui donne lieu à la rémanente. Les champs coercitifs observés, plus faibles que ceux qu'on attendait de grains monodomaines (700 à 1 000 Oe) doivent être attribués à un mélange avec des grains déjà plus gros et avec les grains paramagnétiques apparents. L'effet du revenu pourrait s'expliquer ainsi : la restauration s'accompagnerait de la coalescence d'un certain nombre de grains qui cesseraient d'être monodomaines.

Le tableau I résume les résultats et précise pour chaque couche la durée du dépôt.

TABLEAU I

Fe DÉPOSÉ A 4 °K

		H_c ERSTEDS	σ_r (UNITÉS ARBITRAIRES)	σ_{3000} (UNITÉS ARBITRAIRES)
Couche I 40 s	après dépôt	240	5,8	18,2
	après recuit	120	2,6	18,2
Couche II 4 mn 30 s	après dépôt	200	60	183
	après recuit	100	30	183
Couche III 3 mn 30 s	après dépôt	220	40	126
	après recuit	115	25	125

5. **Résultats relatifs au nickel** : quand on se borne à prendre les précautions indiquées au § 2 les couches obtenues ne sont pas ferromagnétiques. Nous avons non seulement vidé et chauffé l'enceinte pendant plusieurs jours, mais l'avons encore remplie d'hydrogène purifié, puis vidée à nouveau et recommencé cette opération plusieurs fois.

La pression du gaz résiduel mesurée à l'ambiante restait toujours de 10^{-6} mm Hg. Grâce à ce traitement à l'hydrogène les couches ont toujours été ferromagnétiques.

Les résultats sont consignés dans le tableau II. L'explication des résultats peut se faire suivant

les mêmes lignes que pour le fer. Nous notons cependant les valeurs de H_c toujours plus élevées : c'est là sans doute un effet, toutes choses égales d'ailleurs, de l'importante contribution de l'anisotropie magnétocristalline du nickel à basse température.

Les valeurs de σ sont données comme pour le fer en unités arbitraires ; nous avons toutefois fait un étalonnage qui à une unité fait correspondre un moment CGS. Dans ces conditions et en tenant compte du dosage chimique de la couche II, on trouverait un σ_{3000} de l'ordre de 38, alors que σ_∞ est de 57 pour le nickel massif. Cet écart peut aussi trouver son explication dans l'existence d'un

TABLEAU II

Ni DÉPOSÉ A 4 °K

		H_c ERSTEDS	σ_r (UNITÉS ARBITRAIRES)	σ_{2000} (UNITÉS ARBITRAIRES)
Couche I 2 mn	après dépôt	460	1	3,4
	après recuit	260	0,8	2,3
Couche II 3 mn 30 s	après dépôt	335	1,6	5
	après recuit	150	1,4	5
Couche III 3 mn 30 s	après dépôt	350	1,5	4,8
	après recuit	165	1,2	4,2

paramagnétisme apparent pour une fraction du dépôt.

Fig. 2. — Couche mince de nickel (II) déposée à 4 °K.
— — — immédiatement après dépôt ;
— — — après recuit à 300 °K.

6. Température de restauration : nous avons recherché d'une manière au moins qualitative dans quelle zone de température se produisait la restauration en effectuant non plus seulement un recuit à l'ambiante sur le nickel déposé à 4 °K, mais aussi un recuit à 20 °K sur métal déposé à 14 °K et un recuit à 300 °K sur nickel déposé à 14 °K et 20 °K.

Dans certains cas nous n'avons pas alors mesuré les champs coercitifs mais seulement repéré l'aimantation rémanente. On remarque que les couches étudiées ici sont un peu plus magnétiques que dans le tableau II.

TABLEAU III

NICKEL DÉPOSÉ À 20 °K
RECUIT À 300 °K

	H_c (ERSTEDS)	σ_r (UNITES ARBITRAIRES)
Couche I } après dépôt	380	9
Couche I } après recuit	270	7
Couche II } après dépôt	260	7
Couche II } après recuit	170	4
Couche III } après dépôt	300	8
Couche III } après recuit	190	6

TABLEAU IV

NICKEL DÉPOSÉ À 14 °K
MESURES À 14 °K

σ_r APRÈS DÉPÔT	σ_r APRÈS RECUIT À 20 °K	σ_r APRÈS RECUIT À 300 °K
13,5	12	12
22	20	20

Les tableaux II et III révèlent qu'il n'y a pas de différence sensible entre l'effet d'un revenu à l'ambiante sur un dépôt à 20 °K et sur un dépôt à 4 °K ; on ne peut donc conclure à une restauration entre 4 et 20 °K. Les mesures du tableau IV relatives à des couches plus épaisses, par contre mettent en évidence un réarrangement structural entre 14 et 20 °K. Il semble donc bien que, même aux très basses températures, une restauration s'amorce dès qu'on a dépassé la température du dépôt.

7. Conclusion. L'observation d'un réarrangement des atomes à des températures inférieures à 20 °K avait déjà été faite par Hilsch et Buckel [9] à propos des modifications des propriétés supraconductrices de couches déposées à basse température sous vide, et des variations de résistance de couches métalliques de métaux tels que Bi et Sn qui, fondent à une température plus basse que le fer.

Il est intéressant de remarquer que nos mesures montrant les variations du champ coercitif et le changement de l'aimantation rémanente qui les accompagne suggèrent des modifications de texture à une échelle sensiblement plus grande.

L'existence d'un paramagnétisme apparent ne permet pas de tirer de nos mesures une conclusion quant à l'effet d'une restauration sur la saturation magnétique.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] Scientific Foundations of Vacuum technique, S. Dushman, N. Y., John Wiley and Sons Inc., 1949.
- [2] GRIEST (A. J.), LIBSH (J. F.) et CONARD (C. P.), *J. Appl. Physics*, 1956, **27**, 9.
- [3] Nickel dose par la Société d'Électrochimie, d'Électrometallurgie et des Acieries électriques d'Ugine, Usine de Grenoble.
- [4] FÉLICI (N.), *Cahiers de Physique*, 1944, **21**, 19.
- [5] COLOMBANI (A.), *Ann. Phys.*, 1945, **20**, 335 ; 1944, **19**, 272.
- [6] VAN ITTERBECK (A.) et DE GRÈVE (L.), *Bull. Inst. Intern. du Froid*, Grenoble, septembre 1954.
- [7] KONIG (H.), *Optik*, 1948, **3**, 101.
- [8] WEIL (L.), Paramagnétisme apparent, Colloque National de Strasbourg commémoratif de l'œuvre de P. Weiss, 8-10 juillet 1957.
- [9] BUCKEL (W.) et HILSCH (R.), *Z. Physik*, 1952, **131**, 420, 1954, **138**, 109 ; 1956, **146**, 26.

DISCUSSION

M. Néel. — Peut-on étudier aux rayons-X sans les réchauffer les couches disposées à 20 °K ?

M. Weil. — Des études de ce genre ont déjà été faites.

M. Rathenau. — Nous avons mesuré (MM. Ammerlaan et Hofer) la restauration à des températures basses des lames de nickel déformées plasti-

quement à la température de l'azote liquide. On trouve une restauration qui n'est pas activée thermiquement, mais se fait par les tensions mécaniques produites par le chauffage et le refroidissement. Ces tensions font disparaître ou disperser des dislocations. Est-ce que vous pensez qu'un effet comme cela pourrait influencer vos expériences ?

Mr. Weil. — La dilatation entre 14 et 20 °K étant très faible, il paraît peu probable qu'un tel effet puisse jouer un rôle.

Mr. Hirsch. — Have you measured the coercive field in different directions ? There are different

magneto-resistance effects in longitudinal and in transverse magnetic field. This can be explained by the assumption of uniaxial magnetic anisotropy of the grains of the layers.

Mr. Weil. — Pas de mesures transversales.

M. Lambeir. — La structure granulaire de couches minces métalliques déposées par évaporation a été le sujet d'une interprétation donnée par C. J. GORTER, *Physica* (1950) et par N. MOSTOVETCH et B. VODAR, *C. R. Acad., Sc.* (1950), 230, 934 et 2 008.