

# Etude de la transition de phase d'un film de FeRh par mesure de réflectivité optique

Alexis Pecheux<sup>1</sup>, Morgan Almanza<sup>1</sup>, Catherine Gourdon<sup>2</sup>, Laura Thevenard<sup>2</sup>, Daniele Fournier<sup>2</sup>,  
Jon Ander Arregi<sup>3</sup>, Vojtěch Uhlíř<sup>3,4</sup>, Martino LoBue<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Université Paris-Saclay, ENS Paris-Saclay, CNRS, SATIE, 91190 Gif-sur-Yvette, France

<sup>2</sup> Sorbonne Université, CNRS, Institut des NanoSciences de Paris, UMR7588, F-75252 Paris, France

<sup>3</sup> CEITEC BUT, Brno University of Technology, Purkyňova 123, 612 00 Brno, Czech Republic

<sup>4</sup> Institute of Physical Engineering, Brno University of Technology, Technická 2, 616 69 Brno, Czech Republic

**RESUME** – Les matériaux à transition de phase magnéto-structurale présentent de forts couplages multiphysiques. Généralement, la transition est contrôlée par la température, ainsi que par des variables externes, comme la contrainte mécanique, ou le champ magnétique. Elle s'accompagne d'une variation des propriétés du matériau (e.g. entropie, aimantation, volume) donnant lieu à un grand nombre d'applications : réfrigération, actionnement, etc. Cependant, ces transitions s'accompagnent souvent d'un comportement hystérotique difficile à maîtriser. On propose ici l'utilisation d'une méthode optique basée sur la réflexion. De par sa résolution temporelle (10 ns) et spatiale (1  $\mu$ m), cette technique offre un outil unique pour étudier l'hystérotésis en statique, comme en dynamique. Ici on propose d'exploiter les propriétés optiques d'un film de FeRh pour démontrer les potentialités de la mesure de réflectance pour l'étude des transitions de phase en régime statique.

**Mots-clés** – *Transition de phase, Hystérotésis, Réflectivité, Fer-Rhodium*

## 1. INTRODUCTION

Les matériaux à transition de phase ont un rôle important à jouer dans le développement de nouvelles technologies, notamment dans le domaine de la réfrigération, de l'actionnement, du stockage de données et de la récupération d'énergie. Les matériaux magnétiques à transition de phase du premier ordre sont caractérisés par un changement d'ordre magnétique couplé avec une transformation au niveau structural (e.g. volume, paramètres de maille, symétrie). La transition peut être contrôlée par la température ainsi que par le champ magnétique ou la contrainte mécanique.

Les transitions du premier ordre, caractérisées par une zone de coexistence de phases, s'accompagnent souvent d'une hystérotésis thermique, laquelle est observable sur des variables associées à la transition (e.g. entropie, aimantation, déformation, résistivité). Ce comportement irréversible est généralement indésirable, du moins pour les applications de conversion d'énergie, car il est à l'origine d'une réduction de l'efficacité. À l'inverse, le fait de retenir l'histoire du matériau peut être la clé pour d'autres applications, comme dans le cas des matériaux à mémoire de forme. Récemment, il a été proposé d'exploiter l'hystérotésis et les couplages entre différentes variables d'état pour effectuer des cycles de réfrigération dits multicaloriques (magnétique/mécanique) permettant d'augmenter les performances d'un dispositif de réfrigération magnétique [1]. L'aspect multivariable de l'hystérotésis dans un matériau couplé est donc la clé pour toute application utilisant sa multifonctionnalité. De plus, il nous offre l'opportunité d'optimiser le fonctionnement d'un dispositif par une séquence de transformations thermodynamiques ayant lieu dans le plan mécanique  $\epsilon(\sigma, H, T)$ , magnétique  $M(\sigma, H, T)$  et thermique  $S(\sigma, H, T)$  avec  $T$  la tempéra-

ture,  $H$  le champ magnétique,  $\sigma$  la contrainte,  $\epsilon$  la déformation,  $M$  l'aimantation et  $S$  l'entropie.

L'étude expérimentale de l'hystérotésis thermique dans une transition de phase du premier ordre est primordiale pour l'élaboration de ces nouveaux cycles basés sur la mémoire du matériau et nécessite la mesure, à chaque instant, de la fraction relative d'une phase, par rapport à l'autre. Par exemple, au cours de la transition antiferromagnétique (AFM) - ferromagnétique (FM) du FeRh, si  $x$  représente la fraction volumique du matériau se trouvant dans la phase FM,  $1 - x$  celle se trouvant dans la phase AFM, une mesure d'aimantation est souvent utilisée pour déterminer  $x$ . Pourtant l'aimantation n'est pas nécessairement proportionnelle à  $x$  (i.e.  $x \propto M$  uniquement lorsque l'aimantation de la phase FM est saturée par le champ appliqué). De plus, l'application du champ magnétique nécessaire à la mesure, modifie la transition [2]. Ainsi, il est préférable de mesurer  $x$  via d'autres paramètres physiques comme la résistivité [3] ou la réflectivité [4].

Les méthodes optiques basées sur la réflectivité offrent une résolution spatiale de l'ordre de la longueur d'onde (ici 488 nm) avec une dynamique supérieure bornée par celle des systèmes de détection (photodiode) pouvant aller jusqu'au MHz. Elles nous permettent d'observer le comportement en surface avec une profondeur de pénétration de l'ordre de 10 à 20 nm pour les matériaux métalliques, en apportant un point de vue très différent d'une mesure au magnétomètre, de par l'absence du champ appliqué et par la possibilité d'établir une cartographie de la distribution des domaines de phase (régions du matériau se trouvant dans la phase FM, ou AFM). Ici, le matériau choisi pour cette étude est un film de FeRh quasi-équatomique, de 200 nm d'épaisseur, déposé sur MgO, qui présente une transition structurelle AFM/FM à 360 K accompagnée de variation d'aimantation et de volume. En fait, le FeRh se prête particulièrement bien à ces mesures optiques puisque les deux phases ont une réflectivité optique différente [4].

Le FeRh est un matériau d'intérêt de par la nature de sa transition donnant lieu à une phénoménologie très riche. Cette transition s'accompagne d'un effet magnétocalorique géant [5, 6], d'une variation de résistivité [3], d'une déformation isotrope de 1% et d'un effet barocalorique [6]. Néanmoins, cette transition ainsi que les mécanismes physiques sous-jacents sont encore mal connus. En effet, des couplages complexes sont à l'œuvre et la transition de phase des films dépend fortement : de la composition, de l'épaisseur du substrat [7, 8], de la nature de celui-ci [7, 8], du champ appliqué [2] et de l'état de contrainte [5, 9]. Une étude à plusieurs échelles, spatiale et temporelle, est donc nécessaire pour appréhender le comportement de cet alliage.

On sait que la transition de phase dans des films de FeRh déposé sur MgO se déroule de manière hétérogène grâce aux défauts présents dans le matériau agissants comme centres de

nucléation (modification locale de l'énergie libre) [2]. Ce comportement a été confirmé par la suite dans [10, 11, 12] à l'aide de plusieurs techniques d'imagerie qui ont permis de mettre en évidence que les centres de nucléation apparaissent de manière répétable entre plusieurs cycles. Cela confirme le rôle très important du désordre local (i.e défauts, variation de composition, etc.). De plus, lorsque le film est couplé à un substrat, il peut arriver que la transition de phase AFM/FM commence sur la surface libre en premier avant de se propager progressivement vers celle mécaniquement couplé au substrat [13, 14].

Dans ce travail, au travers du dispositif de mesure de réflectance présenté en [15] et décrit succinctement dans la suite, nous étudierons la fraction de phase surfacique  $x$  sous la tâche de focalisation du laser, de largeur à mi-hauteur  $0.8 \mu\text{m}$ , en fonction de la température, à champ nul. À partir de la mesure de cycles d'hystérisis, on discutera des avantages de la mesure de réflectivité pour étudier la transition de phase.

## 2. DISPOSITIFS EXPÉRIMENTAUX

Un schéma simplifié du dispositif optique [15] est proposé en figure 1. Ce dispositif est équipé d'un laser sonde (bleu de longueur d'onde  $488 \text{ nm}$ ) qui nous permet de déterminer la réflectance du matériau. Le laser envoie un flux optique qui est réfléchi par l'échantillon. Celui-ci est ensuite capté par une photodiode. En supposant le laser stable, l'intensité reçue par la photodiode est proportionnelle à la réflectance du matériau. La fraction de phase surfacique est estimée en utilisant l'expression suivante :

$$R = \frac{1}{S_{\text{spot}}} \int_{S_{\text{spot}}} R \, dS = (1 - x)R_{\text{AFM}} + xR_{\text{FM}}, \quad (1)$$

avec  $R$  la réflectance mesurée,  $R_{\text{AFM}}$  la réflectance de la phase AFM et  $R_{\text{FM}}$  la réflectance de la phase FM.

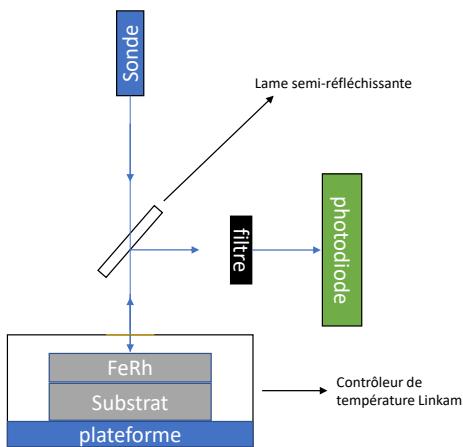


FIG. 1. Schéma simplifié du dispositif expérimental - Le faisceau laser (bleu  $488 \text{ nm}$ ) est focalisé sur l'échantillon de manière à avoir une tache de diamètre à mi-hauteur  $0.8 \mu\text{m}$ . Il est ensuite réfléchi par l'échantillon avec une intensité qui est fonction des phases en présence suivant l'expression (1). Finalement, il est dirigé par une lame semi-réfléchissante vers une photodiode. L'échantillon de FeRh d'épaisseur  $200 \text{ nm}$  est déposé sur un substrat de  $\text{MgO}$  de  $0.5 \text{ mm}$ , posé sur la plateforme régulée en température.

La photodiode a une bande passante de  $100 \text{ MHz}$ , mais le signal est acquis par une carte d'acquisition à une fréquence d'échantillonnage de  $200 \text{ kHz}$  et un filtre anti-repliement du premier ordre ayant une fréquence de coupure à  $300 \text{ Hz}$ . Nous avons choisi cette fréquence de coupure, car cette étude se limite à des mesures quasi-statiques. Une étude avec un second laser,

comme décrit dans [15], permettant de soumettre le matériau à des chauffages/refroidissements très rapides, est envisagée pour exploiter la résolution temporelle offerte par le dispositif. Pour cette étude, une filtre anti-repliement avec une fréquence de coupure plus élevée afin d'augmenter la bande passante sera nécessaire. Le dispositif expérimental photographié est présenté en figure 2.

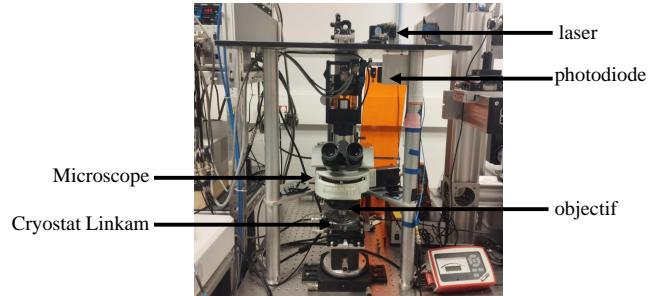


FIG. 2. Photographie du dispositif expérimental - Il permet de focaliser le faisceau laser sur l'échantillon, mais aussi de le déplacer sur l'échantillon. Les oculaires permettent d'observer l'endroit sur lequel le spot se trouve et ainsi de choisir le point d'observation.

L'échantillon est un film de FeRh d'épaisseur  $200 \text{ nm}$  déposé sur un substrat de  $\text{MgO}$  (001) par pulvérisation magnétron d'une cible de FeRh équi-atomique. La croissance a été faite à  $430^\circ\text{C}$  après préchauffage du substrat pendant  $60 \text{ min}$  à cette température. La pression d'Argon est  $2.7 \times 10^{-3} \text{ mbar}$  et la puissance de pulvérisation  $50 \text{ W}$ , ce qui donne un taux de croissance de  $2 \text{ nm min}^{-1}$ . Un recuit post-croissance sous vide à  $780^\circ\text{C}$  pendant  $80 \text{ min}$  conduit à une structure cristalline de type CsCl homogène et de bonne qualité [16]. Finalement une couche de protection de Pt d'épaisseur  $2 \text{ nm}$  est évaporée après refroidissement de l'échantillon en dessous de  $120^\circ\text{C}$ .

Pour effectuer des cycles en température, l'échantillon est placé dans un cryostat et est collé avec de la pâte thermique. L'échantillon est supposé à l'équilibre thermique avec une plateforme dont on peut contrôler la température. Cette dernière est mesurée à l'aide d'une sonde insérée dans la plateforme. Au vu de l'épaisseur du film, en première approche, on négligera le gradient thermique entre les deux faces de l'échantillon. À partir de la mesure de la température de l'échantillon et de sa réflectance, nous pouvons remonter à la fraction de phase en fonction de la température. La puissance du laser sonde est atténuée par des densités optiques afin de rendre négligeable tout écart avec la température de la plateforme.

La tension  $U$  mesurée aux bornes de la photodiode est proportionnelle à la réflectance du FeRh  $R$ , soit  $U \propto R$ . Dans les conditions de l'expérimentation, la réflectance est supposée ne dépendre que de la fraction surfacique de phase au lieu d'observation. En effet, la dépendance de la réflectance à la température (thermoréflectance) est négligeable dans la gamme de température étudiée, la dérivée  $dR/dT$  étant estimée de l'ordre de  $2 - 3 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$ . Ainsi, on supposera que la réflectance du FeRh ne dépend que de la phase dans laquelle se trouve le matériau. En effet, la transition de phase structurelle induit une différence de réflectance optique entre la phase basse température (AFM) et la phase haute température (FM) estimée à  $3.5\%$  (cf figure 5) à une longueur d'onde de  $488 \text{ nm}$ .

Au travers du système de contrôle de température, l'échantillon effectue un cycle composé d'un chauffage suivi d'un refroidissement, entre  $70^\circ\text{C}$  et  $120^\circ\text{C}$ , avec une rampe de  $7 \text{ K/min}$ . La température de la plateforme est relevée toutes les secondes. Finalement, en mesurant la température de l'échantillon et la tension aux bornes de la photodiode, on obtient la tension en fonction de la température montrée en figure 3.

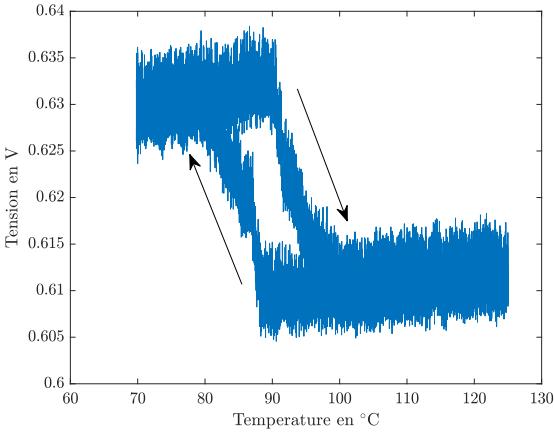


FIG. 3. Signal de la photodiode, proportionnel à la reflectivité, en fonction de la température pour un cycle  $70 \rightarrow 120 \rightarrow 70$  °C. On observe un cycle d'hystérésis thermique avec, à basse température, la phase AFM qui se caractérise par une réflectivité élevée (tension plus haute) et, à haute température, la phase FM qui se caractérise par une réflectivité plus faible (tension plus faible). Les flèches indiquent le sens dans lequel le cycle est parcouru.

Le signal étant bruité, il est nécessaire de dissocier le bruit venant de la transition de phase (intrinsèque à l'échantillon) et le bruit propre aux instruments. Celui-ci est par ailleurs composé de signaux parasites, un à basse fréquence (0.03 Hz) et d'autres à plus hautes fréquences (1 – 1000 Hz) en plus du bruit de la photodiode. La source du premier n'a pas été identifiée clairement. Cependant sa dépendance à la température et à la rampe de température imposées à l'échantillon, suggèrent des phénomènes de convection à l'intérieur du cryostat comme des causes possibles. Des essais dans un vide partiel ont été effectués sans résultat probant sur la réduction du bruit. Les signaux parasites hautes fréquences (1 – 1000 Hz) ont été extrêmement atténués en réduisant le plus possible les couplages mécaniques de la table (sur coussin d'air) avec l'extérieur. Néanmoins, certaines fréquences caractéristiques persistent (typiquement des multiples de 75 Hz).

Des études de bruit ont été effectuées sur de longues durées et à des températures suffisamment éloignées de la transition de phase, afin de pouvoir exclure, parmi ses possibles origines, la cinétique de transition et la thermalisation du matériau. Les signaux parasites étant présents loin de la transition et sur d'autres échantillons (or), on peut légitimement en conclure qu'ils ne proviennent pas du FeRh et qu'ils n'apportent pas d'information importante. La distribution statistique du bruit suit relativement bien une distribution Gaussienne d'écart type  $460 \mu\text{V}$  (figure 4). D'autre part, les signaux parasites sont aussi observés loin de la transition, ce qui signifie qu'ils ne sont pas importants pour l'étude de celle-ci. Considérant la différence de tension minimale entre les deux phases dans l'intervalle de température  $[70; 120]$  °C, le SNR (Signal to Noise Ratio) de la mesure brute est de 33.3 dB. Le SNR est déterminé ici comme le rapport de l'amplitude de variation du signal observée à 22 mV sur la valeur RMS du bruit de mesure.

En l'état il semble difficile d'examiner la transition et d'exploiter les données à cause du bruit de mesure et des fréquences parasites mentionnées plus haut. C'est pourquoi on propose d'effectuer un filtrage du signal. Pour ce faire, le signal est traité avec un filtre de Butterworth, de fréquence de coupure de 100 Hz et d'ordre 4, à deux reprises : une première avec un axe des temps croissant et une deuxième avec un axe décroissant, ce qui permet d'obtenir un signal filtré sans retard (fonction *filtfilt* de Matlab).

Ce filtre (Butterworth) présente une réponse fréquentielle sans oscillation avec un gain de 1 dans la bande passante. Le

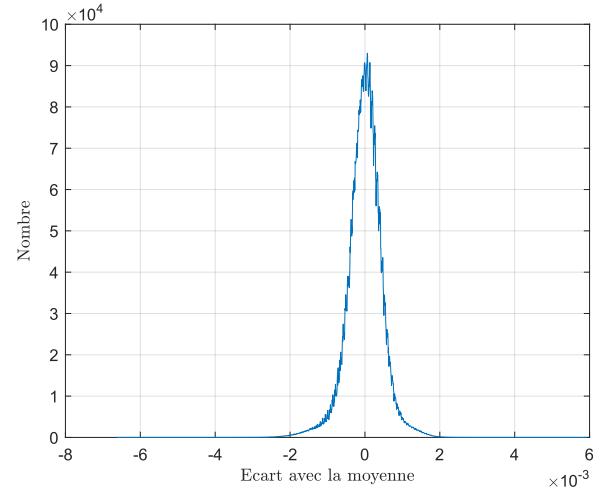


FIG. 4. Représentation de la distribution bruit de mesure.

signal après filtrage est tracé en figure 5. Notre choix a été conditionné par l'analyse fréquentielle du bruit. En effet lors de nos essais, nous avons relevé des fréquences parasites à des multiples de 75 Hz. L'amplitude de ces fréquences parasites n'est pas constante, le filtre peut donc être adapté. Par exemple, dans la série de mesures montrée en figure 3 l'amplitude du signal à 75 Hz est très faible devant celle à 150 Hz, alors que dans la mesure représentée en figure 8 on montre l'inverse.

Ce filtrage nous permet d'obtenir un SNR d'environ 38 dB sur la mesure figure 5, même si le signal contient toujours le bruit à basse fréquence  $\pm 0.5$  mV. Cette variation basse fréquence constitue la quasi-totalité du bruit. En effet, si on considère un signal parasite sinusoïdale d'amplitude 0.5 mV. La valeur du SNR s'élève à 36 dB. Ainsi, la compréhension de la provenance des ces oscillations est une clé pour améliorer la technique de mesure.

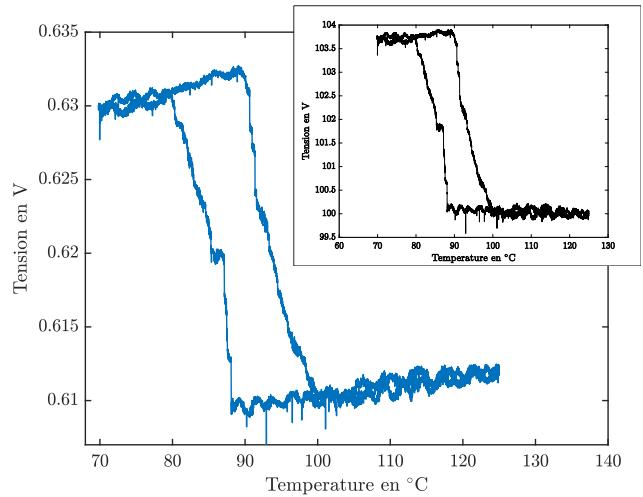


FIG. 5. Hystérésis thermique obtenue par mesure de réflectivité optique. Signal décimé de 100, après filtrage avec Butterworth d'ordre 4 et de fréquence de coupure 100 Hz. La courbe encadrée représente la même expérience avec des valeurs normalisées par rapport à la tension de la phase ferromagnétique (et multipliée par 100) afin de montrer la différence de réflectivité entre les deux phases. On remarque bien que la différence de réflectivité est de 3 à 4 % entre les deux phases

Le cycle en température après le filtrage est montré en figure 5. On peut définir trois intervalles de température  $T$  :

1.  $70^{\circ}\text{C} \lesssim T \lesssim 80^{\circ}\text{C}$  : dans cette zone on observe une dépendance linéaire de la tension par rapport à la température avec une légère pente positive. Cette dernière est associée au déplacement de l'échantillon par rapport à la tache du laser induit par la dilatation de la plateforme ;
2.  $80^{\circ}\text{C} \lesssim T \lesssim 100^{\circ}\text{C}$  : dans cette zone on observe les transitions AFM/FM et FM/AFM, caractérisées par des séquences de sauts de tension entre la partie à haute tension et celle à basse tension ; il s'agit de la région où les deux phases, AFM et FM, coexistent. La réflectance du spot observé représente la fraction relative de phase ;
3.  $100^{\circ}\text{C} \lesssim T \lesssim 125^{\circ}\text{C}$  : dans cette intervalle de température la surface de l'échantillon observée se trouve entièrement dans la phase FM (basse réflectance) ; comme dans la première zone, la dépendance linéaire par rapport à  $T$  est un artefact instrumental associé à un effet de dérive.

Afin d'étudier la fraction surfacique de la phase ferromagnétique  $x(T)$  en fonction de la température en éliminant les dérives instrumentales, on utilise l'expression suivante :

$$x_i(T) = \frac{U_i(T) - U_{AFM}(T)}{U_{FM}(T) - U_{AFM}(T)}, \quad (2)$$

où l'indice  $i = 1, 2$  se réfère respectivement à la branche ascendante (chauffage de  $70^{\circ}\text{C}$  à  $125^{\circ}\text{C}$ ) et descendante (refroidissement de  $125^{\circ}\text{C}$  à  $70^{\circ}\text{C}$ ).  $U_{FM}(T)$  est obtenue par extrapolation linéaire des valeurs de  $U_i(T)$  dans l'intervalle  $70^{\circ}\text{C} \lesssim T \lesssim 80^{\circ}\text{C}$ .  $U_{AFM}(T)$  est obtenue, par extrapolation linéaire de  $U_i(T)$  dans l'intervalle  $100^{\circ}\text{C} \lesssim T \lesssim 125^{\circ}\text{C}$ . Les deux branches du cycle d'hystéresis, ainsi obtenues, sont représentées conjointement en figure 6.

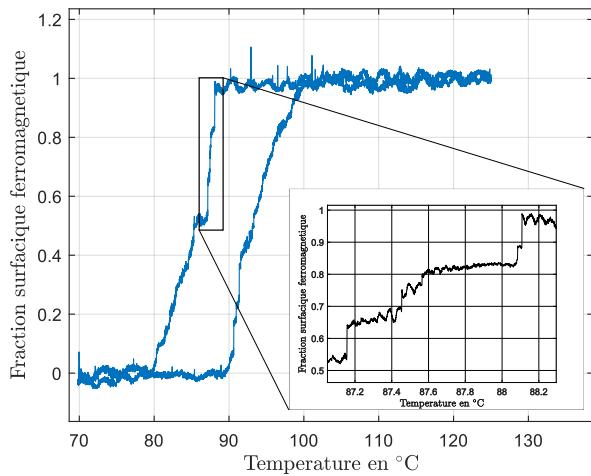


FIG. 6. Hystéresis thermique obtenue à partir de l'équation (2). A haute température la phase FM est localement saturée ( $x = 1$ ), à basse température la phase FM a localement disparu ( $x = 0$ )

Compte tenu de la taille réduite de la zone d'étude, on n'a pas les moyens pour garantir que différentes campagnes de mesures couvrent exactement la même position de l'échantillon. Ainsi, même si certaines caractéristiques des cycles acquis (symétrie, température de transition, largeur d'hystéresis, forme) sont comparables lorsque les points de mesure se trouvent dans une même région, des variations des températures de transition ont été observées. Cela confirme à quel point ces caractéristiques dépendent du désordre local présent dans le matériau. Par ailleurs, malgré la difficulté à obtenir des cycles similaires entre différentes séries de mesure, on note que les cycles sont reproductibles s'ils sont acquis à la suite sur le même point. Cela sera discuté dans la suite et conforte la fiabilité de la méthode de mesure.

Néanmoins, cette technique, utilisée en parallèle avec des mesures globales, permet d'étudier des aspects de la transition à une échelle inférieur à la taille caractéristique des domaines de phases pour un film d'épaisseur 200 nm [17]. De plus, la mesure de réflectivité ne dépend pas de l'orientation de l'aimantation, comme il en est pour les mesures magnétométriques. On n'a donc pas besoin d'un champ pour orienter les moments magnétiques. On dispose ainsi d'une information directement liée à la fraction de phase et indépendante de l'orientation des domaines magnétiques, un avantage par rapport aux autres techniques reportées dans la littérature [12, 18, 19, 13, 23].

Par ailleurs, cette mesure locale ne nous informe pas sur le comportement surfacique global. Pour avoir une idée du comportement de surface global, la réalisation de cycles sur différentes régions de l'échantillon et leur addition serait nécessaire. Enfin, cette mesure étant surfacique et non volumique, elle ne nous informe pas sur ce qui se passe à l'intérieur de l'échantillon, et vient donc en complément d'une mesure volumique.

Une courbe  $M - T$  a été réalisée au magnétomètre à échantillon vibrant sous un champ de 1 T appliqué dans le plan de l'échantillon de manière à saturer la phase FM pour que l'aimantation soit une image la plus possible fidèle de la fraction de phase FM ( $x \propto M$ ). Cette courbe nous permet de caractériser la transition de phase en volume. En figure 7 on remarque bien les trois intervalles de température qui ont été discutées en référence au cycle local de la figure 6. De plus, la largeur du cycle d'hystéresis, mesuré au magnétomètre est du même ordre de grandeur que celle du cycle local, soit de l'ordre de  $\sim 10^{\circ}\text{C}$ . Les mesures préliminaires de cycles locaux effectués sur différents points de la surface semblent confirmer ce résultat. Bien évidemment une étude systématique du comportement surfacique du film est nécessaire et pour vérifier de façon plus quantitative dans quelles mesures l'amplitude de l'hystéresis statique est une propriété uniforme sur tout l'échantillon.

En figure 7 on remarque que l'aimantation dans la phase FM diminue lorsque la température augmente. Cela est dû à la présence, à  $T_C = 670$  K, du point de Curie de la phase FM [2]. Visiblement, dans l'intervalle de température étudié ici, la réflectivité est peu affectée par la transition de phase du deuxième ordre de l'état ferromagnétique à celui paramagnétique (PM), soit par la valeur de l'aimantation spontanée dans la phase FM. Cette propriété illustre la pertinence de la mesure de la réflectivité pour l'étude de la transition de phase du premier ordre.

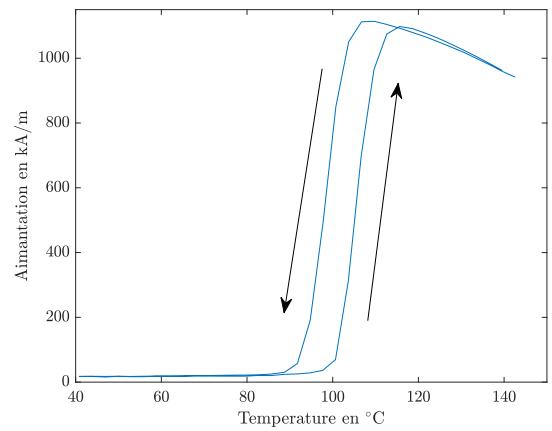


FIG. 7. Courbe  $M - T$  réalisée à un champ de 1 T, les flèches indiquent le sens de parcours du cycle.

### 3. RÉSULTATS ET DISCUSSION

#### 3.1. Analyse des cycles locaux en surface

On remarque en figure 6 qu'à l'échelle à laquelle on observe la transition de phase AFM/FM du FeRh le caractère discontinu de la transition du premier ordre est visible. En effet, à cette échelle la transition survient par une succession de sauts d'amplitudes différentes (cf encadré de la figure 6). Le cycle d'hystérésis est presque carré et se rapproche de celui qu'on attendrait chez un système composé par un nombre limité de sous-systèmes bistables [20]. De plus, la mesure met en évidence les avalanches qui composent la transition. Des cinétiques similaires, caractérisées par des avalanches ont été observées en calorimétrie dans le LaFeSi [21] et sur des micro-rubans de FeRh [3].

La cinétique des cycles d'hystérésis locaux (i.e. mesurés à une échelle de l'ordre d'environ  $1 \mu\text{m}$ ) ont une allure similaire sur la courbe de refroidissement comme sur celle de chauffage. Premièrement, une partie initiale assez abrupte composée par un nombre limité de sauts (deux à trois typiquement), ensuite une évolution plus graduelle, caractérisée par une multiplicité d'instabilités à une échelle bien plus réduite. Afin d'interpréter cette cinétique, il faudra vérifier dans quelles mesures elle se reproduit dans différentes positions sur la surface de l'échantillon. La réalisation de mesures en différentes régions de l'échantillon pourrait révéler des asymétries entre les courbes de chauffage et refroidissement observées dans [3, 2, 12] et partiellement visibles en figure 8. Enfin, l'étude dynamique de la transition de phase permettra d'étudier le possible rôle de relaxations thermiques dans la cinétique observée.

#### 3.2. Répétabilité de la mesure

La transition se passe systématiquement en deux étapes distinctes : une première comprenant 2 ou 3 avalanches de grandes amplitudes suivie d'une seconde composée d'une séquence de sauts d'amplitude moindre et difficilement distinguables du bruit. Ce comportement est similaire aux observations précédentes. Pour deux cycles successifs en température, réalisés sur un même spot, montrés en figure 8, on remarque que les sauts surviennent à des températures très proches. De plus, on remarque que lorsque l'on arrête la température un peu avant un saut, la réflectivité ne change pas. Ce résultat est confirmé par plusieurs mesures de réflectivité en fonction du temps dans la zone de coexistence de phase. Les états par lesquels passe le matériau sont stables.

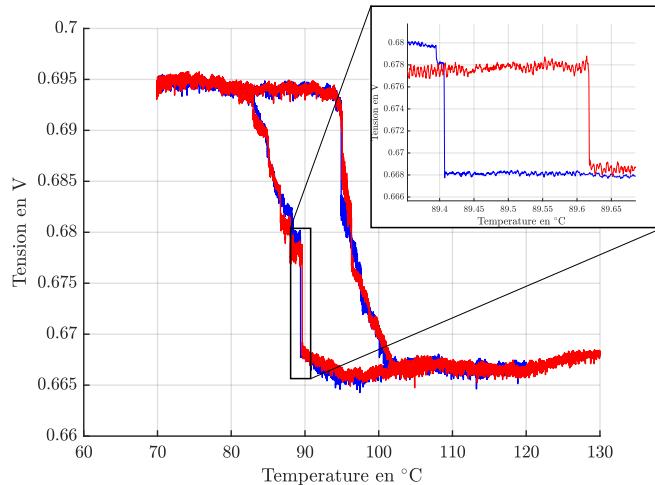


FIG. 8. Courbe Tension-Température pour deux cycles en température effectué à la suite sur un spot de  $1 \mu\text{m}$

Des études ultérieures seront dédiées à la détermination de

l'origine des avalanches observées dans la première partie de la transition.

### 4. CONCLUSION

Nous avons présenté un dispositif permettant de caractériser la transition de phase dans un film de FeRh. Les résolutions temporelle et spatiale offertes par ce dispositif permettent d'apprécier le caractère discontinu de la transition de phase du premier ordre. Le dispositif permet l'étude des propriétés locales (à une échelle de l'ordre de  $\sim 1 \mu\text{m}$ ) de l'hystérésis en surface à champ nul avec un aperçu sur la cinétique de transition. On montre que, malgré la petite taille de la tache, le cycle est répétable en un même point. Des études ultérieures pourront montrer à quel niveau les séquences d'avalanches observées localement représentent une signature du désordre local ou bien une propriété dynamique de la cinétique de transition.

Enfin une extension de cette méthode de mesure à d'autres matériaux peut être envisagée. En effet, des différences importantes de réflectivité optique ont été observées dans des films NiTi [23] un alliage à mémoire de forme dont les variations de propriétés viennent de sa transition de phase Martensite/Austénite. On peut espérer des variations similaires pour certains alliages magnétiques à mémoire de forme dont la transition de phase est similaire (Martensite/Austénite).

### 5. REMERCIEMENTS

Nous tenons à remercier Mathieu Bernard et Maxime Vabre de l'INSP pour leur assistance technique. Cette recherche a été menée avec l'aide financière du LabEx LaSIPS (ANR-10-LABX-0032-LaSIPS) FLIGHTPATH dans le cadre du programme "Investissements d'avenir" (ANR-11-IDEX-0003) et de l'Agence Nationale de la Recherche (contrat ANR ACAF 20-CE30-0027). Nous remercions par ailleurs, la structure Czech-NanoLab soutenu par MEYSCR(LM202351) pour la croissance et la préparation de l'échantillon.

### 6. RÉFÉRENCES

- [1] Gottschall, T., Gràcia-Condal, A., Fries, M., Taubel, A., Pfeuffer, L., Mañosa, L., Planes, A., Skokov, K. P., and Gutfleisch, O. (2018). A multicaloric cooling cycle that exploits thermal hysteresis. *Nature Materials*, 17(10), 929–934.
- [2] S. Maat, J.-U. Thiele, and Eric E. Fullerton Temperature and field hysteresis of the antiferromagnetic-to-ferromagnetic phase transition in epitaxial FeRh films, *Phys. Rev. B* 72, 214432
- [3] Uhlíř, V., Arregi, J. A., and Fullerton, E. E. (2016). Colossal magnetic phase transition asymmetry in mesoscale FeRh stripes. *Nature Communications*, 7(1), 13113.
- [4] Saidl, V., Brajer, M., Horák, L., Reichlová, H., Výborný, K., Veis, M., Janda, T., Trojánek, F., Maryško, M., Fina, I., Marti, X., Jungwirth, T., and Nárožný, P. (2016). Investigation of magneto-structural phase transition in FeRh by reflectivity and transmittance measurements in visible and near-infrared spectral region. *New Journal of Physics*, 18(8), 083017. <https://doi.org/10.1088/1367-2630/18/8/083017>
- [5] Liu, Y., Phillips, L. C., Mattana, R., Bibes, M., Barthélémy, A., and Dkhil, B. (2016). Large reversible caloric effect in FeRh thin films via a dual-stimulus multicaloric cycle. *Nature Communications*, 7(1), 11614. <https://doi.org/10.1038/ncomms11614>
- [6] Stern-Taulats, E., Planes, A., Lloveras, P., Barrio, M., Tamarit, J.-L., Pramanick, S., Majumdar, S., Frontera, C., and Mañosa, L. (2014). Barocaloric and magnetocaloric effects in  $\text{fe} 49 \text{ rh} 51$ . *Physical Review B*, 89(21), 214105. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.89.214105>
- [7] Ceballos, A., Chen, Z., Schneider, O., Bordel, C., Wang, L.-W., and Hellman, F. (2017). Effect of strain and thickness on the transition temperature of epitaxial FeRh thin-films. *Applied Physics Letters*, 111(17), 172401. <https://doi.org/10.1063/1.4997901>
- [8] Yu, C., Li, H., Luo, Y., Zhu, L., Qian, Z., and Zhou, T. (2019). Thickness-dependent magnetic order and phase-transition dynamics in epitaxial fe-rich FeRh thin films. *Physics Letters A*, 383(20), 2424–2428. <https://doi.org/10.1016/j.physleta.2019.04.058>

- [9] Cherifi, R. O., Ivanovskaya, V., Phillips, L. C., Zobelli, A., Infante, I. C., Jacquet, E., Garcia, V., Fusil, S., Briddon, P. R., Guiblin, N., Mougin, A., Ünal, A. A., Kronast, F., Valencia, S., Dkhil, B., Barthélémy, A., and Bibes, M. (2014). Electric-field control of magnetic order above room temperature. *Nature Materials*, 13(4), 345–351. <https://doi.org/10.1038/nmat3870>
- [10] Warren, J. L., Barton, C. W., Bull, C., and Thomson, T. (2020). Topography dependence of the metamagnetic phase transition in FeRh thin films. *Scientific Reports*, 10(1), 4030. <https://doi.org/10.1038/s41598-020-60767-z>
- [11] Keavney, D. J., Choi, Y., Holt, M. V., Uhlíř, V., Arena, D., Fullerton, E. E., Ryan, P. J., and Kim, J.-W. (2018). Phase coexistence and kinetic arrest in the magnetostructural transition of the ordered alloy FeRh. *Scientific Reports*, 8(1), 1778. <https://doi.org/10.1038/s41598-018-20101-0>
- [12] Almeida, T. P., McGrouther, D., Temple, R., Massey, J., Li, Y., Moore, T., Marrows, C. H., and McVitie, S. (2020). Direct visualization of the magnetostructural phase transition in nanoscale FeRh thin films using differential phase contrast imaging. *Physical Review Materials*, 4(3), 034410. <https://doi.org/10.1103/PhysRevMaterials.4.034410>
- [13] Komlev, A. S., Karpenkov, D. Y., Kiselev, D. A., Ilina, T. S., Chirkova, A., Gimaev, R. R., Usami, T., Taniyama, T., Zverev, V. I., and Perov, N. S. (2021). Ferromagnetic phase nucleation and its growth evolution in FeRh thin films. *Journal of Alloys and Compounds*, 874, 159924. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2021.159924>
- [14] Komlev, A. S., Makarin, R. A., Ilina, T. S., Kiselev, D. A., Kulesh, N. A., Volegov, A. S., Zverev, V. I., and Perov, N. S. (n.d.). 3d time-resolved analysis of the evolution metamagnetic phase transition in FeRh system. *arXiv* :2211.15984
- [15] Fournier, D., Marangolo, M., and Fretigny, C. (2020). Measurement of thermal properties of bulk materials and thin films by modulated thermoreflectance (MTR). *Journal of Applied Physics*, 128(24), 241101. <https://doi.org/10.1063/5.0019025>
- [16] Arregi, J. A., Caha, O., and Uhlíř, V. (2020). Evolution of strain across the magnetostructural phase transition in epitaxial FeRh films on different substrates. *Physical Review B*, 101(17), 174413. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.101.174413>
- [17] Arregi, J. A., Ringe, F., Hajduček, J., Gomonay, O., Molnár, T., Jaskowiec, J., and Uhlíř, V. (2023). Magnetic-field-controlled growth of magnetoelastic phase domains in ferh. *Journal of Physics : Materials*, 6(3), 034003. <https://doi.org/10.1088/2515-7639/acce6f>
- [18] Baldasseroni, C., Bordel, C., Antonakos, C., Scholl, A., Stone, K. H., Kortright, J. B., and Hellman, F. (2015). Temperature-driven growth of anti-ferromagnetic domains in thin-film FeRh. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 27(25), 256001. <https://doi.org/10.1088/0953-8984/27/25/256001>
- [19] Baldasseroni, C., Bordel, C., Gray, A. X., Kaiser, A. M., Kronast, F., Herrero-Albillos, J., Schneider, C. M., Fadley, C. S., and Hellman, F. (2012). Temperature-driven nucleation of ferromagnetic domains in FeRh thin films. *Applied Physics Letters*, 100(26), 262401. <https://doi.org/10.1063/1.4730957>
- [20] Bertotti, G. (1998). *Hysteresis in Magnetism : For Physicists, Materials Scientists, and Engineers*. Academic Press.
- [21] Piazza, Marco and Bennati, Cecilia and Basso, Vittorio, Thermodynamics of the Heat-Flux Avalanches at the First-Order Magnetic Transition in Magnetocaloric Materials. *Phys. Rev. Appl.* 8, 044023 (2017).
- [22] Sethna, J. P., Dahmen, K., Kartha, S., Krumhansl, J. A., Roberts, B. W., and Shore, J. D. (1993). Hysteresis and hierarchies : Dynamics of disorder-driven first-order phase transformations. *Physical Review Letters*, 70(21), 3347–3350. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.70.3347>
- [23] Zhang, X., Sui, J.-H., Lei, Y.-C., and Cai, W. (2017). Microstructure and optical properties of ti54.5ni45.5 nanocrystalline thin film. *Acta Metallurgica Sinica (English Letters)*, 30(12), 1231–1235. <https://doi.org/10.1007/s40195-017-0606-3>