



Auto-organisation épitaxiale : des surfaces aux matériaux magnétiques

Olivier Fruchart

► To cite this version:

Olivier Fruchart. Auto-organisation épitaxiale : des surfaces aux matériaux magnétiques. Autre [cond-mat.other]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2003. hal-00004739

HAL Id: hal-00004739

<https://theses.hal.science/hal-00004739>

Submitted on 17 Apr 2005

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.

MÉMOIRE

présenté par

Olivier FRUCHART

Chargé de recherche au Laboratoire Louis Néel
(CNRS UPR5051, lié par convention à
l'Université Joseph Fourier Grenoble-1
et à
l'Institut National Polytechnique de Grenoble)

pour obtenir le diplôme d'

HABILITATION À DIRIGER DES RECHERCHES

auprès de

L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE

Auto-organisation épitaxiale : des surfaces aux matériaux magnétiques

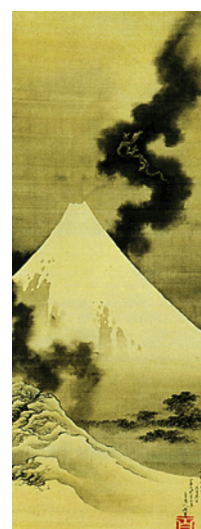
date de soutenance : 25 Septembre 2003

COMPOSITION DU JURY :

Jacques MILTAT	Rapporteur, Président
Claude CHAPPERT	Rapporteur
Roland MADAR	Rapporteur
Rolf ALLENSPACH	Examineur
Stéphane ANDRIEU	Examineur
Dominique GIVORD	Examineur
Fabrice SCHEURER	Examineur

*Apprends à regarder en silence,
si tu ne veux pas que le bruit
chasse devant tes yeux
la beauté des choses fragiles.*

Katsushika Hokusai (1760-1849),
estampiste japonais.



[http ://www.hokusai-kan.com](http://www.hokusai-kan.com)

Table des matières

Remerciements	9
Curriculum Vitæ	11
Avant-propos	23
I Travail de recherche	25
1 Introduction	25
2 Des micro-laboratoires pour le micromagnétisme	26
2.1 CONTEXTE	26
2.2 FABRICATION DE PLOTS COMPACTS AUTO-ASSEMBLÉS Fe/Mo(110)	27
2.2.1 Optimisation de couches tampon métalliques	27
2.2.2 Diagramme des modes de croissance Fe/Mo(110)	28
2.2.3 Maîtrise de la densité et la taille des plots	29
2.2.4 Analyse de la forme des plots	29
a. Données expérimentales	29
b. Modélisations	30
c. Analyse des données expérimentales	32
d. Discussion des valeurs d'énergie d'interface	33
2.3 MAGNÉTISME DES STRUCTURES À FERMETURE DE FLUX	34
2.3.1 Introduction	34
2.3.2 Configurations à rémanence	34
2.3.3 Processus de nucléation	36
3 Auto-organisation : des surfaces vers les matériaux	39
3.1 CONTEXTE	39
3.2 PLOTS ET COLONNES DE Co/Au(111)	39
3.2.1 Contexte	39
3.2.2 Croissance colonnaire par dépôts alternés	40
a. Introduction	40
b. Description du procédé	41
c. Mécanismes atomistiques	43
d. Versatilité, robustesse et limitations	43
3.2.3 Propriétés magnétiques des colonnes de cobalt	44
a. Analyse du régime superparamagnétique	45
b. Température de blocage	45
c. Cycles mineurs et interactions dipolaires	45
3.2.4 'Super'-diffraction sur les systèmes Co/Au(111)	47
a. Introduction	47
b. Le GISAXS	48
c. Super-diffraction sur des plots auto-organisés Co/Au(111)	48
d. Intensité des pics expérimentaux de super-diffraction	49
e. Modélisation des intensités	49

f. Défauts de percolation sondés par combinaison de GISAXS et STM	51
3.3 BANDES ÉPAISSES DE Fe/C.C.(110)	53
3.3.1 Mise en évidence d'une épaisseur métastable	53
3.3.2 Origine de l'épaisseur métastable	53
3.3.3 Mise à profit : fabrication de bandes épaisses par décoration de marches atomiques	55
3.3.4 Fonctionnalité magnétique à température ambiante des bandes de fer.	56
a. Introduction	56
b. Hystérésis et rémanence	56
c. Domaines magnétiques	57
4 Micromagnétisme analytique	59
4.1 INTRODUCTION	59
4.2 PRINCIPE DU MODÈLE	60
4.3 ESTIMATION DU DOMAINE DE VALIDITÉ	61
4.4 RÉSULTATS	62
4.5 LIENS ENTRE MODÉLISATION ET SIMULATION	63
4.6 EXTENSION DU MODÈLE POUR UN BORD INCLINÉ	65
II Annexes pédagogiques	69
1 Superparamagnétisme de nanoparticules	69
1.1 INTRODUCTION	69
1.2 DÉNOMBREMENT DES ÉTATS : DU QUANTIQUE AU CLASSIQUE	69
1.3 CALCUL ANALYTIQUE ET COMPORTEMENTS LIMITES	70
1.4 ILLUSTRATION ET CONSÉQUENCES EXPÉRIMENTALES	71
2 Validité des coefficients de champ démagnétisant	72
2.1 INTRODUCTION	72
2.2 DÉFINITION USUELLE DES COEFFICIENTS DE CHAMP DÉMAGNÉTISANT	73
2.3 EXTENSION DE LA DÉFINITION DES COEFFICIENTS DE CHAMP DÉMAGNÉTISANT	73
2.4 CONSIDÉRATIONS THERMODYNAMIQUES	74
2.5 ÉNERGIE D'AIMANTATION ET COEFFICIENTS DÉMAGNÉTISANTS	75
2.5.1 Systèmes macroscopiques	75
2.5.2 Nanostructures	75
2.6 SUSCEPTIBILITÉ INITIALE ET COEFFICIENTS DÉMAGNÉTISANTS	75
2.6.1 Plaques, cylindres, et ellipsoïdes macroscopiques	75
2.6.2 Systèmes macroscopiques non ellipsoïdaux	75
2.6.3 Nanostructures	76
2.7 ILLUSTRATION EXPÉRIMENTALE	76
2.7.1 Analyse énergétique de processus d'aimantation simples	76
3 Cristallographie et ordre liquide de surface	76
3.1 PARALLÈLE ENTRE GISAXS ET RHEED	77
3.2 MODÉLISATION DE L'ORDRE SEMI-LIQUIDE DES PLOTS Co/Au(111)	77
3.3 COMPÉTITION ENTRE LE FACTEUR DE STRUCTURE ET LE DÉSORDRE À LONGUE DISTANCE	78
III Perspectives	81
1 Couches tampon à paramètre continûment ajustable	81
2 Maîtrise des couches tampons	82
2.1 PREMIÈRE APPROCHE : LES MULTICOUCHES	82
2.2 SECONDE APPROCHE : LES SOLUTIONS SOLIDES	82
2.3 CONTRÔLE CHIMIQUE DE L'INTERFACE	83
2.4 CHOIX DES SYSTÈMES	83
2.5 RÉSULTATS PRÉLIMINAIRES	83

3 Applications à l'auto-organisation et au magnétisme	84
3.1 FORME DE PLOTS COMPACTS : COMPRÉHENSION ET MISE À PROFIT	84
3.1.1 Objectif de croissance	84
3.1.2 Plots monodomains magnétiques	85
3.1.3 Configurations à fermeture de flux	86
3.2 HAUTEUR DES BANDES : COMPRÉHENSION ET MISE À PROFIT	86
3.2.1 Objectif de croissance	86
3.2.2 Objectifs pour le magnétisme	87
3.3 MAGNÉTISME : ORIGINE MICROSCOPIQUE DE L'ANISOTROPIE D'INTERFACE	87
3.4 MAGNÉTISME DU FER FCC DISTORDU	88
 Bibliographie	 89
 Sélection d'articles	 95
Nanomagnétisme : des domaines confinés au magnétisme moléculaire : O. Fruchart <i>et al.</i> , Bull. Soc. Fr. Phys. 139 , 11-17 (2003).	95
Micromagnetic model of non-collective magnetization reversal in ultrathin magne- tic dots with in-plane uniaxial anisotropy : O. Fruchart <i>et al.</i> , Phys. Rev. B 63 (17), 174418/1-15 (2001).	103

Remerciements

Je remercie chaleureusement tous les membres du jury d'avoir accepté promptement de participer à mon jury, et d'avoir été arrangeants pour fixer une date de soutenance : Roland MADAR, Jacques MILTAT, Claude CHAPPERT, Rolf ALLENSPACH, Stéphane ANDRIEU, Dominique GIVORD, Fabrice SCHEURER. Je les remercie pour leurs remarques qui ont permis d'améliorer le manuscrit final. Je remercie également Dominique et Wolfgang WERNSDORFER pour avoir effectué une relecture du premier manuscrit sur les chapeaux de roue.

Je remercie également Riccardo HERTEL, Laurent RANNO, Jean-Christophe TOUSSAINT et Jan VOGEL pour leurs commentaires avisés lors de la répétition de la présentation orale.

Concernant mon travail, je souhaite remercier en premier lieu Dominique GIVORD. Dominique m'a accueilli une première fois au Laboratoire Louis NÉEL en 1992, à l'occasion d'un stage de license. J'ai eu la chance de partager l'enthousiasme des débuts des chambres ultra-vide du LLN, au milieu de la joyeuse équipe des étudiants pionniers : Florence ROBAUT, Nassima CHERIEF et Oran MC GRATH. Dominique m'a accueilli à nouveau deux ans plus tard pour effectuer une thèse, qu'il a co-dirigée avec Jean-Pierre NOZIÈRES. Enfin, c'est alors qu'il était encore directeur que j'ai intégré définitivement le laboratoire. Depuis dix ans les occasions de discuter avec lui ont toujours été enthousiasmantes et ont largement contribué à ma formation scientifique, et je l'en remercie. Ce manuscrit est un des fruits de ce qu'il a su initier au laboratoire.

Je suis également très reconnaissant envers Jürgen KIRSCHNER de m'avoir accueilli dans son laboratoire de Halle durant une année post-doctorale, d'avoir accepté ma proposition de projet scientifique, et de m'avoir laissé une liberté quasi-totale pour le réaliser. C'est toujours pour moi un grand plaisir de retourner à Halle et retrouver les personnes que j'ai cotoyées durant cette année, notamment Jochen BARTHEL, Günter KRODER, Manfred KLAUA, Wulf WULFHEKEL, Marek PRZYBYLSKI, Ulrich GRADMANN.

Je remercie tout spécialement les étudiants que j'ai encadrés, qui ont contribué aux travaux présentés ici, et avec lesquels j'ai eu beaucoup de plaisir à travailler, et que je retrouve également avec plaisir : c'est Pierre-Olivier JUBERT qui a largement défriché le terrain du Fe/Mo(110) durant sa thèse jusqu'en 2001, puis Mustafa ELEOUI qui effectue sa thèse depuis la même époque sur les couches tampon à paramètre cristallin ajustable. Guillemain RODARY et Fabien CHEYNIS ont apporté leur dynamisme lors de stages de maîtrise.

Je dois également beaucoup à Jean-Christophe TOUSSAINT, dont j'apprécie au quotidien la rigueur, l'obstination et la bonne humeur. C'est pour moi un miracle de le voir réussir à faire son enseignement avec zèle, mener ses simulations, collaborations et encadrements, et rendre des petits services informatiques. J'espère pouvoir poursuivre le plus longtemps possible notre collaboration, débutée il y a près de dix ans maintenant à l'époque également des 'pionniers' de son code micromagnétique, développé avec l'aide de Brindusa KEVORKIAN. Merci également à Wolfgang WERNSDORFER, toujours disponible en enthousiaste

pour faire des mesures (*comment, tu l'as déjà démonté, l'échantillon ? Ah bon, tu en as déjà mesuré trois depuis ?..*).

Je remercie chaleureusement toutes les personnes qui m'ont apporté un soutien technique, en premier lieu Philippe DAVID et Valérie SANTONACCI, qui assurent entre autres le fonctionnement et l'évolution des enceintes UHV. Merci également à Serge et Jean-Séb pour les dépannages d'électronique, Annick pour la maintenance des manip de caractérisation, Didier (*c'est où, déjà, qu'on met l'azote ?*), Éric (qui a toujours une bonne idée), Richard (j'ai toujours pas converti les dictionnaires...), Dominique (*alors y marche, ce php ?*), Julien, Bart (*euh, pardon, mais ça marche pas sous Netscape...*), Jacques MARCUS (on a fini par les trouver, ces pas qui manquaient !). Une mention spéciale pour les secrétaires dévouées : Véronique (*on va arranger ça*), Sabine (*j'ai un problème sur l'Intranet*) et Eliane (*tu as amené ta facture ?*).

Merci également à toutes les personnes toujours ouvertes à la discussion et prêtes à rendre service : Bernard (*j'avais publié un papier, il y a longtemps...*), Rafik (*quand je pense qu'il s'appelait Nickel et que je lui parlais de cobalt, j'avais du mal à m'empêcher de rigoler !*), Edgar (*c'est évident par des considérations de symétrie*), Benjamin, Maged, Jean-Louis toujours disposé à rendre service, Jean (*et cet effet Kerr, il avance ?*), Yves, Jérôme (*c'est quoi, ce fil, là ?.. On peut peut-être l'enlever ?*), Riccardo (*Let's drink a coffee*), Christophe (*mathématiquement, c'est pas évident*), Pierre (*j'ai eu eu problème sur la biblio...*).

Merci également simplement pour tous les bons moments. Les 'vétérans' : outre Florence, Oran (*tous des communistes !*) et Nassima déjà cités, il y a Massimo (*tous des capitalistes !*), Sophie, Johann et Cathy. L'équipe des joyeux montagnards : Stefania, Jan, Florent, Virginie. Et tous les jours : Manu, Baptiste, Nora, Laurent, Clarisse, Florent, Claire, Yann, Raluca (pardon aux oubliés). Merci à Claudine d'avoir su préserver et développer la bonne ambiance au laboratoire !

Pour les collaborations, merci à Jan, Andrea et Antonio pour les manip à Trieste (300 K est un peu abusif pour parler de la température 'ambiante' du 3 au 7 décembre) ; Gilles, Antoine, Marion et Olivier pour les nuits passées à l'ESRF ; Yves SAMSON, Sylvie ROUSSET et son équipe. Une mention spéciale pour les strasbourgeois présents ou passés, froids de climat mais chauds de cœur : Fabrice, Hervé, Christine et Christine, Jean-Paul (*t'es sûr qu't'as ouvert l'cache, l'Fruche ?*), Idriss, Philippe, Jean-Pierre.

Messages personnels :

- Collectif : *C'est toujours la vitamine K1 l'antidote de l'opération dératisation ?*
- Gabor S : *mais tu es sûr que c'est dans le plan que tu as mesuré l'échantillon ?* [réminiscence]
- Pierre B. : *vous vous rendez compte, ils ont ouvert mon portefeuille mais ils n'ont pas pris l'argent !*
- Pierre B. (bis) : *c'est pas une misère, c'est une impatience*
- Pierre B. (ter) : *vous avez vu, il y a des boutons sur mes plantes !*
- Pierre B. (...) : *quand j'étais jeune il n'y avait pas grand chose sur le polygone. Il n'y avait même pas de cantine !*

I. CV court

Situation familiale : 32 ans, marié, 1 enfant.

ÉTUDES et CARRIÈRE

1989-91 : Classes préparatoires (M³) au Lycée Champollion, Grenoble.
1991-94 : Scolarité à l'École Normale Supérieure de Paris, comprenant : Licence et Maîtrise de Physique en magistère, DEA de Physique des Solides d'Orsay.
1994-95 : Scientifique du Contingent au Laboratoire de Magnétisme Louis Néel (Grenoble). Informatisation de manip, prémices de la thèse.
1995-1998 : Thèse au Laboratoire Louis Néel, soutenue en juillet 1998 (doctorat de l'Université Joseph Fourier Grenoble-1).
1998-1999 : Stage post-doctoral au MPI de Halle, sous la direction du Prof. J. Kirschner.
oct. 1999 : Recrutement au Laboratoire Louis Néel (CNRS UPR5051) au grade de CR2.
oct. 2002 : Promotion CR1.

EXPÉRIENCES DE RECHERCHE ET D'ENSEIGNEMENT PRÉ-CNRS

- Expérience, physique des basses températures, Brown University (Providence, RI, USA) avec Pr.Ch.Elbaum : « Croissance dendritique d'Hélium-3 » (6 mois)
- Expérience, physique des basses températures, CRTBT (CNRS, Grenoble) avec P.E.Wolf : « Réalisation d'un magnétomètre à couple pour l'étude de l'aimantation de l'Hélium-3 liquide à très basse température » (2 mois)
- Deux heures hebdomadaires de 'colles' de Physique en Math'Spé au Lycée Champollion (2 ans)
- Monitorat à l'UJF : Cours-TD, TD, et TP de physique en DEUG (60-100 heures/an ; 2 ans)
- Cours de physique en prépa' intégrée de médecine/pharmacie (cours Galien, 50 heures, 1 an).

mél : Olivier.Fruchart@grenoble.cnrs.fr

Web : [Laboratoire : <http://lab-neel.grenoble.cnrs.fr>]
[Groupe : <http://lab-neel.grenoble.cnrs.fr/themes/couches/ext/>]
[Personnel : <http://lab-neel.grenoble.cnrs.fr/pageperso/Fruche/>]

II. Activités liées au métier de chercheur

II.A Encadrement de la recherche

A.1. Responsabilité d'instrumentation

- Prise en charge de l'entretien quotidien et du développement des bâtis UHV du LLN. Accompagnement de Philippe David (IR) et Valérie Santonacci (AI) pour la préparation de la jouvence des bâtis (2002).
- Développement en cours d'un magnétomètre Kerr à froid et sous fort champ.
- Entretien quotidien de l'AFM (co-assuré avec Annick Liénard, IR).

A.2. Encadrement de Post-doc

Total : 2.5 personnes.années. (situation en juin.2003)

- Simone Pokrant, 3 ans, 50% (co-encadrement avec C. Meyer) : '*croissance et magnétisme de plots auto-assemblés de Tb/Nb(110)*'.
- Anjan Gupta, 2 ans (pour la partie croissance) : '*croissance de plots 3D de Fer pour l'étude de l'effet de proximité ferro/supra*'

A.3. Encadrement de thèse

Total : 3 personne-année. (situation en juin.2003)

- Pierre-Olivier Jubert : 2 ans, 50% (co-encadrement C. Meyer) : *Croissance et magnétisme de plots et bandes auto-assemblés de Fe(110)/Mo(110)*.

Dès mon arrivée au Laboratoire Louis Néel j'ai pris en main la responsabilité de l'encadrement quotidien et de l'orientation de la thèse en cours de Pierre-Olivier Jubert (alors en fin de première année). Ce co-encadrement s'est imposé naturellement du fait de la thématique commune à mon projet de recherche d'une part, et de ma responsabilité de développement des enceintes UHV du LLN d'autre part. L'encadrement de la thèse a également été assuré à 50% par C. Meyer (CR1).

- Mustafa Eleoui, 2 ans, 100%. *Couches tampons à paramètre cristallin ajustable pour le magnétisme*. Ce sujet fait partie de mon projet de recherche propre. La bourse de thèse a été accordée par la région (programme Emergence).

A.4. Encadrement de stagiaires

• Stages de DEA

- *Nanostructures magnétiques à couplage d'échange intercouches modulable*, Bogdana Borca, DEA Roumain de Cluj. Encadrement principal C. Meyer.
- *Croissance épitaxiale de plots magnétiques nanométriques à morphologie contrôlée* (mars-juin 2001, M. Eleoui, DEA matière et rayonnement – Grenoble I).
- **Stage de maîtrise** sur le thème : *Croissance par auto-assemblage, et caractérisation magnétique de nanostructures de Fer épitaxiées* (Avril-juin 2000, G. Rodary, Université Paris 6).
- **Stage de seconde année ENSPG** sur le thème : *Couches tampons à paramètre cristallin ajustable* (juin-août 2001, F. Cheynis, ENSPG)
- **Stage lycéen** : stage découverte d'une semaine (G. Blondel, 1^{ère} S, juin 2002).
- **Stage collégien** : stage en entreprise d'une semaine (Adrian Adoniou, 3^{ème}, novembre 2002)

A.5. Autres

Depuis début 2002, responsabilité administrative du groupe ‘couches minces’ du LLN, et animation des réunions scientifiques internes hebdomadaires de la partie ‘mésoscopique’ du laboratoire (‘couches minces’, ‘magnétisme nanoscopique’).

II.B Participation à l’enseignement

Volume : 102h/4 ans.

Détail : Cours 24h ; TD 60h ; TP 16h.

- 1999-2001 : ‘colles’ de physique en classes préparatoires Math’Sup’ (option PCSI=Physique Chimie et Sciences pour l’Ingénieur) et Math’Spé’ (option MP*=Mathématiques et Physique). Durée totale : 60 heures.
- 2002 : série de séminaires (8h) à des étudiants du KTH de Stockholm : ‘Nanostructures magnétiques auto-organisées et artificielles’.
- 2002-2003 : cours et TP ‘couches minces et nanostructures magnétiques’ au *DESS Techniques et Applications de la Physique* de l’Université Joseph Fourier – Grenoble I, option ‘Ingénierie des systèmes magnétiques’. Durée totale : 16h(6+10) cours, 16h TP (8+8).

II.C Organisation de conférences et workshops

- Co-organisateur de la session thématique ‘self-assembled nanostructures for quantum dots’ de ICCG14-/ICVGE-12 (International Conference of Crystal Growth ; International Conference of Vapor Growth and Epitaxy), Grenoble, 9-13 août 2004.
- Comité scientifique des JSI2004 (Journées Surfaces-Interfaces, Mulhouse, 28-30 janvier 2004).
- Co-organisateur du **minicolloque** *Croissance et propriétés d’îlots nanométriques et d’agrégats auto-organisés sur des surfaces*, **JMC7** (7èmes Journées de la Matière Condensée de la SFP), 29 août-1er septembre 2001, Poitiers. Autres organisateurs : J.-P. Bucher ; J.-L. Pautrat ; F. Scheurer.
- Comité local d’organisation de la conférence JEMS01 (voir ci-dessous).
- Co-organisateur de la table ronde *Imagerie, Spectromicroscopie Magnétique* des journées ‘Soleil et magnétisme’, Strasbourg, 22-23 mai 2001. Autres organisateurs : J. Vogel ; R. Belkhou.

II.D Communication

- Fête de la science
 - Demi-journée portes ouvertes du 8ème colloque Louis Néel (Gérardmer, 2002) : stand ‘lévitron’.
 - Animation à Grenoble (2002)
- Contribution à la vie de plusieurs **sites Web de recherche** :
 - Laboratoire Louis Néel :
 - ré-organisation et nouvelle forme des pages d’accueil du site (1999 ;2003).
 - Refonte et animation des pages du groupe ‘couches minces’ (1999-).
 - Gestion Intranet/Internet (séminaires et réunions, conférences, etc.). Interfaçage de fichiers Excel et de programmes Visual Basic pour génération automatique de pages Web pour les secrétaires (2000).
 - Gestion : base de données des publications des chercheurs du LLN : gestion sous Intranet, interrogation sous Internet. Projet mené en collaboration avec D. Fournier, informaticien du laboratoire (2002-2003).

- Polygone scientifique CNRS-Grenoble :
 - Redéfinition des missions du site, et refonte des pages : 2003 (commission).
- **Conférence JEMS01** (Joint European Magnetic Symposia) : mise en place et maintien du site Web de la conférence (<http://www.polycnrs-gre.fr/JEMS01/>).

III. Production scientifique

Pour les contributions de chaque partie qui suit (articles, conférences invitées, etc.), j'utilise une numérotation par ordre chronologique sur l'ensemble des années. Au sein d'une année les contributions figurent par ordre de l'importance que je leur attribue, les contributions à mes yeux les plus significatives étant margées par un trait noir.

1. Revues à comité de lecture

TOTAL = 14.

Répartition selon les revues :

- Science : 1
- Appl. Phys. Lett. 1
- Phys. Rev. Lett. : 2
- Europhys. Lett. : 2
- Phys. Rev. B : 3
- Surf. Sci. : 2
- J. Appl. Phys. : 1
- J. Magn. Magn. Mater. : 1
- Appl. Surf. Sci. : 1

2003

A14. *Nanometers-thick self-organized Fe stripes: bridging the gap between surfaces and magnetic materials*
O. Fruchart, M. Eleoui, J. Vogel, P. O. Jubert, A. Locatelli, A. Ballestrazzi,
Appl. Phys. Lett., accepted (2004).

2003

A13. *X-ray super-cell crystallography of self-organized Co/Au(111) deposits*
O. Fruchart, G. Renaud, A. Barbier, M. Noblet, O. Ulrich, J.-P. Deville, F. Scheurer, J. Mane-Mane, V. Repain, G. Baudot, S. Rousset
Europhys. Lett., 63 (2), 275-281 (2003).

A12. *Flux-closure-domain states and demagnetizing energy determination in sub-micron size magnetic dots*
P. -O. Jubert, J.-C. Toussaint, O. Fruchart, C. Meyer, Y. Samson
Europhys. Lett. 63 (1), 135-141 (2003).

A11. *Real-Time Monitoring of Growing Nanoparticles*
G. Renaud, R. Lazzari, C. Revenant, A. Barbier, M. Noblet, O. Ulrich, F. Leroy, J. Jupille, Y. Borensztein, C. R. Henry, J.-P. Deville, F. Scheurer, J. Mane-Mane, O. Fruchart
Science 300 (5624), 1416-1419 (2003).

A10. *Nucleation and surface diffusion in pulsed laser deposition of Fe on Mo(110)*
P. -O. Jubert, O. Fruchart, C. Meyer,
Surf. Sci. 522 (1-3), 8-16 (2003).

2002

- A9. *Growth of Tb (0001) on Nb and Mo (110) surfaces*
S. Pokrant, O. Fruchart, C. Meyer, L. Ortega,
Surf. Sci. 506 (3), 235-242 (2002).

2001

- A8. *A micromagnetic model of non-collective magnetization reversal in ultrathin magnetic dots with in-plane uniaxial anisotropy*
O. Fruchart, J.-C. Toussaint, B. Kevorkian,
Phys. Rev. B 63 (17), 174418/1-15 (2001).
- A7. *Self-assembled growth of faceted epitaxial Fe(110) islands on Mo(110)*
P.-O. Jubert, O. Fruchart, C. Meyer,
Phys. Rev. B 64, 115419/1-10 (2001).

1999

- A6. *Self-organized growth of nanosized vertical magnetic Co pillars on Au(111)*
O. Fruchart, M. Klaua, J. Barthel, J. Kirschner,
Phys. Rev. Lett. 83 (14), 2769 (1999).
- A5. *Enhanced coercivity in sub-micrometer-sized ultrathin epitaxial dots with in-plane magnetization*
O. Fruchart, J.-P. Nozières, W. Wernsdorfer, D. Givord, F. Rousseaux, D. Decanini,
Phys. Rev. Lett. 82 (6), 1305-1308 (1999).
- A5. *Growth and interface magnetic anisotropy of epitaxial Mo/Fe/Mo(110) and W/Fe/W(110) ultrathin films*
O. Fruchart, J.-P. Nozières, D. Givord,
J. Magn. Magn. Mater. 207 (1-3), 158 (1999).
- A3. *Arrays of ultrathin monocrystalline submicrometer-sized Fe dots : Néel-Brown relaxation and activation volume*
J.-E. Wegrowe, O. Fruchart, J.-P. Nozières, D. Givord, F. Rousseaux, D. Decanini,
J. Appl. Phys. 86 (2), 1028-1034 (1999).

1998

- A2. *High coercivity in ultrathin epitaxial micrometer-sized particles with in-plane magnetization : Experiment and numerical simulation*
O. Fruchart, J.-P. Nozières, B. Kevorkian, J.-C. Toussaint, D. Givord, F. Rousseaux, D. Decanini, F. Carcenac
Phys. Rev. B 57(4), 2596-2606, (1998).
- A1. *Growth modes of W and Mo thin epitaxial (110) films on (11-20) sapphire*
O. Fruchart, S. Jaren, J. Rothman
Appl. Surf. Sci. 135(1-4), 218-232 (1998).

2. Conférences invitées dans des congrès

Répartition suivant le type de congrès :

- Congrès internationaux. : 3
- Rencontres nationales hors France, avec invitation d'étrangers : 2
- Rencontres et réseaux et européens : 2

- Rencontres et congrès français :

3

2003

110. *Auto-organisation verticale de nanostructures magnétiques : des surfaces vers les matériaux ?*
[40 min] JSI2002: Journées Surfaces Interfaces, Lille, France, 29-31 janvier 2003.

2002

19. *Self-organized magnetic nanostructures: from surfaces to functional materials ?*
[30 min] Nano2002: Surfaces nanostructurées : préparation, caractérisation et application (rencontres CNRS-MPI), Porquerolles, France, 20-24 octobre 2002.
18. *Combinaison quantitative GISAXS et STM: un outil pour sonder les interfaces enterrées. Exemple du Co/Au(111)*
[45 min] Réunion thématique du GdR Relax : « nouveaux développements dans les analyses structurales aux surfaces et interfaces », Strasbourg, France, 9-11 octobre 2002.

2001

17. *Vertical Self-Organization of Epitaxial Magnetic Nanostructures*
[30 min] International Symp. on Physics of Magnetic Materials / Int'l Symp. on Advanced Magnetic Technologies (ISPMM/ISAMT2001), Taipei, Taiwan, 13-16 mai 2001.
16. *Self-Organized Growth of Nanosized Vertical Magnetic Co Pillars*
[30 min] International Conference on Crystal Growth (ICCG13), Kyoto (Japon), 30 juillet-4 août 2001.
15. *Vertical Self-Organization of Epitaxial Magnetic Nanostructures*
[30 min] 7th Summer School of the Spanish Vacuum Society, « Thin Films of Magnetic Materials », Avila (Espagne), 15-17 juillet 2001.

1999

14. *Croissance et magnétisme de nanocolonnes verticales de Co, auto-organisées sur la surface d'Au(111)*
[Oral invité (50min)] École sur les processus de croissance sur substrats vicinaux (Programme 'nanomag', European Science Foundation), Dourdan (Paris), 3-4 décembre 1999.
13. *Croissance et magnétisme de nanocolonnes verticales de Co, auto-organisées sur la surface d'Au(111)*
[20min] Conférence FIM-99 (Frontiers In Magnetism, satellite de LT-22), Stockholm, 12-15 août 1999.
12. *Croissance et magnétisme de nanocolonnes verticales de Co, auto-organisées sur la surface d'Au(111)*
[25min] Journées d'automne de la SF2M, symposium towards a 'magneto-electronics', Paris, 2-5 novembre 1999.

1998

11. *Submicrometer sized epitaxial particles with in-plane magnetization: towards coherent rotation of magnetization ?*
[40min] Conférence 'Nanoscale magnetism and transport', Sendai, 19-21 janvier 1998.

3. Proceedings à comité de lecture

Répartition selon les revues :

- J. Magn. Magn. Mater. : 6
- J. Cryst. Growth : 1
- Appl. Surf. Sci. : 1
- J. Appl. Phys. : 1
- Proceedings édités : 1

2002

- P10.** *Vertical self-organization of epitaxial magnetic nanostructures (Invité)*
O.Fruchart, P.-O. Jubert, C. Meyer, M. Klaua, J. Barthel, J. Kirschner
J. Magn. Magn. Mater. 239 (1-3), 224-227 (2002) [ISPMM/ISAMT 2001, Taipei, Taiwan]
- P9.** *Self-organized growth of nanosized flat dots and vertical magnetic Co pillars on Au(111) (Invité)*
O.Fruchart, G. Renaud, J.-P. Deville, A. Barbier, F. Scheurer, M.Klaua, J.Barthel, M. Noblet,
 O. Ulrich, J. Mané-Mané, J.Kirschner
J. Cryst. Growth 237-239 (3), 2035-2040 (2002) [ICCG/ICVGE 2001, Kyoto, Japon]
- P8.** *Magnetic properties of self-organized Fe nanostripes epitaxially grown on Mo(110)*
 P.O.Jubert, O.Fruchart, C.Meyer
J. Magn. Magn. Mater. 242-245 (1), 565-567 (2002) [JEMS01, Grenoble, France]
- P7.** *Magnetic Properties of Tb (0001) particles on Nb (110)*
 S.Pokrant, C.Meyer, O.Fruchart, A.Sulpice
J. Magn. Magn. Mater. 242-245 (1), 568-571 (2002) [JEMS01, Grenoble, France]

2001

- P6.** *Growth and magnetism of epitaxial self-assembled Fe nanostructures on a Mo(110) surface*
 P.-O. Jubert, O. Fruchart, C. Meyer,
J. Magn. Magn. Mater. 226-230 (2), 1842-1844 (2001) [ICM2000, Recife, Brésil]

2000

- P5.** *Growth of nanosized self-organized pillars of Co in Au(111) using an alternating deposition process*
O. Fruchart, M. Klaua, J. Barthel, J. Kirschner,
Appl. Surf. Sci. 162-163, 529-536 (2000) [ACSIN5, Aix-en-Provence 1999].

1999

- P4.** *Arrays of ultrathin Fe(110) 200nm-wide particles investigated by microSQUID measurements*
O. Fruchart, W. Wernsdorfer, J.-P. Nozières, D. Givord, F. Rousseaux, D. Mailly, D. Decanini,
 F. Carcenac,
J. Magn. Magn. Mater. (198-199) 1, 228-230 (1999). [MML98, Vancouver].

1998

- P3.** *Magnetization reversal in thin films and small particles*
 J.-C.Toussaint, B.Kevorkian, O.Fruchart, J.Voiron
 Rare-Earth Magnets and their Applications. **Proceedings** of the Tenth International Symposium on Magnetic Anisotropy and Coercivity in Rare-Earth Transition Metal Alloys, Dresden, Germany, 1998 (2 vol.), p.1001 (vol.1).
- P2.** *Soft X-ray resonant magnetic reflectivity study of thin films and multilayers*
 J.M.Tonnerre, L.Sève, A.Barbara-Dechelette, F.Bartolome, D.Raoux, V.Chakarian, C.C.Kao,
 H.Fischer, S.Andrieu, O.Fruchart,

J. Appl. Phys. 83 (11), 6293-6295 (1998). [MMM-Intermag, San Fransisco 98].

1997

- P1. *Temperature-Driven in-plane anisotropy reorientation in Fe(110) films*
O.Fruchart, J.-P. Nozières, D.Givord,
 J. Magn. Magn. Mater. 165 (1-3), 508-511 (1997). [E-MRS Spring Meeting]

5. Communications à des congrès, symposium

Répartition selon les contributions :

- Congrès, oral : 2
- Congrès, poster : 7

2002

- C9. *Modèle de renversement d'aimantation de plots plats à forte anisotropie uniaxiale planaire*
 [Oral (15 min)] Colloque Louis Néel 2002, Gérardmer (France), 24-26 septembre 2002.
- C8. *Défauts de percolation à l'interface Co/Au(111) révélés par combinaison de GISAXS et STM*
 [Poster] 8èmes Journées de la Matière Condensée (JMC8), Marseille (France), 27-30 août 2002.

2001

- C7. *Diffusion X aux petits angles et en incidence rasante (GISAXS) sur des plots auto-organisés de Co/Au(111) : de la diffraction sur un réseau de maille ~10nm*
 [Poster] Colloque Louis Néel 2001, Dourdan (France), 8-9 mars 2001.

1999

- C6. *Growth of nanosized self-organized pillars of Co in Au(111) using an alternating deposition process*
 [Oral (15min)] Conférence ACSIN-5 (Atomically-Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures), Aix-en-Provence, 6-9 juillet 1999.

1998

- C5. *Submicrometer sized epitaxial particles with in-planemagnetization: towards coherent rotation of magnetization ?*
 [Poster] « Magnetic nanostructures » Gordon conference, 25-29 janvier 1998, Ventura, Californie.
- C4. *Arrays of ultrathin Fe(110) 200nm-wide particles investigated by microSQUID measurements*
 [Poster] Metallic Multilayers, Vancouver (1998).

1996

- C3. *Propriétés magnétiques de réseaux de plots épitaxiés submicroniques de Fe(110)*
 [Poster] Colloque Louis Néel 'Couches Minces et Nanostructures Magnétiques', Mont St Odile, Janvier 1996.
- C2. *Temperature-Driven in-plane anisotropy reorientation in Fe(110) films*
 [Poster] EMR-S Spring Meeting, Strasbourg, Juin 1996.

- C1.** *Transition de réorientation planaire en fonction de la température dans des couches ultra-minces épitaxiées de Fe(110)*
[Poster] 5èmes Journées de la Matière Condensée (JMC5), SFP, Orléans, 28-30 août 1996.

Séminaires, Workshops

Répartition selon les contributions :

- Série de séminaires : 1 (8h)
- Séminaires : 10
- Workshop, oral : 7
- Workshop, poster : 2

2003

- W20.** *Validité des coefficients de champ démagnétisant : coprs macroscopiques et nanostructures*
[Séminaire (1h)] Spintec, Grenoble, 27 juin 2003.

2002

- W19.** *Self-organized growth on the Au(111) reconstructed surface : a wonderful tool for fundamental research, a wonderful toy for researchers.*
[Séminaire (1h)] IBM Research Center, Zürich, Suisse, 4 mars 2002.

2001

- W18.** *Patterned and self-organized magnetic nanostructures*
[Cours (8h)] Cours à l'Université KTH de Stockholm; Invitation: Pr. Rao. Destination: étudiants et étudiants/thésards. 18-19 octobre 2001 (Stockholm, Suède).
- W17.** *Croissance et magnétisme de nanocolonnes verticales de Co, auto-organisées sur la surface d'Au(111)*
[Séminaire (1h)] Séminaire du 'Nanoelectronics Research Institute' (AIST), Tsukuba, Japon, 7 août 2001.
- W16.** *Croissance et magnétisme de nanocolonnes verticales de Co, auto-organisées sur la surface d'Au(111)*
[Séminaire (1h)] Séminaire du département de physique de 'Gunma University' (Kiryu, Japon), 9 août 2001.
- W15.** *Magnetization reversal in nanostructures*
[Oral (30min)] Workshop au MPI-Halle, destiné à mettre en place un Laboratoire Européen Associé (LEA) MPI-Halle/LLN-CNRS, 4-5 octobre 2001 (Halle, Allemagne).

2000

- W14.** *Retournement quasi-statique de l'aimantation dans des plots plats ultraminces à anisotropie uniaxiale dans le plan*
[Oral (35min)] École "Magnetic imaging of nanostructures" (European Science Foundation), Regensburg (Allemagne), 11-13 mai 2000.
- W13.** *Renversement d'aimantation de plots auto-assemblés*
[Oral (25min)] Réunion "Magnetic properties of artificial and self-organized nanostructures" (European Science Foundation), Uppsala (Suède), 14-16 septembre 2000.
- W12.** *Croissance et magnétisme de nanocolonnes verticales de Co, auto-organisées sur la surface d'Au(111)*

[**Oral (30min)**] Journées surfaces/interfaces de l'Institut de la Physique de la Matière Condensée (IPMC), Grenoble, 6-7 janvier 2000.

1999

- W11. *Croissance et magnétisme de nanocolonnes verticales de Co, auto-organisées sur la surface d'Au(111)*
[**Séminaire (1h)**] Séminaire du LPS Nancy, 7 avril 1999.
- W10. *Croissance et magnétisme de nanocolonnes verticales de Co, auto-organisées sur la surface d'Au(111)*
[**Séminaire (1h)**] Séminaire GEMM/GSI de l'IPCMS, Strasbourg, 22 avril 1999.
- W9. *Croissance et magnétisme de nanocolonnes verticales de Co, auto-organisées sur la surface d'Au(111)*
[**Séminaire (1h)**] Séminaire du SP2M (CEA/DRFMC, Grenoble), 16 novembre 1999.
- W8. *Mécanismes de renversement de l'aimantation dans des plots ultraminces submicroniques de Fe(110) à anisotropie dans le plan*
[**Poster**] École thématique du GdR 'POMMES', Magnéto-électronique de Spin, Aussois (France), 4-8 janvier 1999.

1998

- W7. *Élaboration, étude et modélisation d'un système magnétique modèle : réseaux de plots sub-microniques ultraminces de Fe(110) épitaxiés à anisotropie planaire*
[**Thèse**] Thèse de l'Université Joseph Fourier, Grenoble, soutenue le 8 juillet 1998.
- W6. *Processus de renversement de l'aimantation dans les plots ultraminces à anisotropie planaire*
[**Séminaire (1h)**] Séminaire invité IFW (Dresde, Allemagne), 19 novembre 1998.
- W5. *Modes de croissance des couches de Mo(110) et W(110) sur Al₂O₃(11-20)*
[**Séminaire (1h)**] Groupe 'Quantronique', CEA Saclay, 27 octobre 1998.
- W4. *Processus de renversement de l'aimantation dans les plots ultraminces à anisotropie planaire*
[**Oral (45min)**] Journées surfaces et interfaces magnétiques (laboratoires européens associés IPCMS-Strasbourg/MPI-Halle), 12-15 décembre 1998.

1996

- W3. *Des couches ultraminces aux plots submicroniques épitaxiés de Fe(110)/W(110) : vers un retournement cohérent de l'aimantation?*
[**Oral (30min)**] réunion du GdR «Nanostructures Magnétiques» du Col de Porte, septembre 1996.
- W2. *Des couches ultraminces aux plots submicroniques épitaxiés de Fe(110)/W(110) : vers un retournement cohérent de l'aimantation?*
[**Séminaire (1h)**] Séminaire du Laboratoire Louis Néel, 25 novembre 1996.
- W1. *Projet de nanolithographie par irradiation d'ions lourds*
[**Oral (15min)**] réunion «dépôt électrolytique de nanostructures magnétiques» du GdR «Nanostructures Magnétiques», Gif-sur-Yvette, décembre 1996.

6. Autres publications

- D1. *Nanomagnétisme : des domaines confinés au magnétisme moléculaire*
O. Fruchart, E. Bonet, J.-C. Toussaint, W. Wernsdorfer,
Bull. Soc. Fr. Phys. 139, 11-17 (2003)

Avant-propos

Ce manuscrit présente l'essentiel de mes activités de recherche postérieures à mon travail de thèse, c'est à dire la période de mi-1998 à mi-2003. Les résultats obtenus résultent d'un travail d'équipe. Outre le travail que j'ai accompli par moi-même, j'ai encadré des thèses et stages, et participé à des collaborations avec des collègues spécialistes de leur domaine. J'ai choisi d'employer la première personne du pluriel dans ce manuscrit pour rendre compte de ce travail d'équipe.

Présenter les résultats de cinq années de manière cohérente dans un document unique, nécessite de trouver un fil conducteur logique, et amène donc nécessairement à réfléchir sur le type de recherche que l'on mène. Les études présentées sont sans ambiguïté à ranger dans la recherche fondamentale. Mais sont-elles 'très' fondamentales, ou bien proches de considérations technologiques ? La réponse est : un peu des deux. Ces études sont 'très' fondamentales dans le sens où elles s'appuient exclusivement sur des systèmes fabriqués par épitaxie sous UHV, et surtout parcequ'elles ne s'intéressent pas aux propriétés de tel ou tel matériau. J'ai travaillé plutôt sur des concepts et des démonstrations, l'utilisation d'un matériau n'étant qu'un outil pour réaliser les études. Dans ce sens ces études peuvent être d'intérêt assez général, aussi bien pour des chercheurs en laboratoire que pour des questions plus technologiques. De ce second point de vue, mon axe de recherche n'est pas si fondamental. En résumé, mon axe de recherche est principalement de conduire des études modèles, à caractère démonstratif.

En plus du découpage habituel en *Résultats* et *Perspectives*, j'ai intercalé une partie appelée *Annexes pédagogiques*. Il s'agit de résultats de recherche, de portée suffisamment générale pour s'apparenter à des enseignements de troisième cycle. J'ai choisi de les extraire de leur contexte expérimental pour les présenter de manière pédagogique, et permettre leur lecture indépendamment du reste du manuscrit. Ce choix répond également à l'exigence de pédagogie qui doit être un des critères d'habilitation.

Pour des raisons de concision, peu de détails expérimentaux figurent dans ce manuscrit ; j'ai plutôt cherché à focaliser l'attention du lecteur sur les résultats scientifiques. Des détails peuvent être trouvés dans des articles, puisque l'essentiel du travail présenté a été publié. À cet effet, une liste de références à nos publications afférentes est proposée à la fin de chaque entité.

Partie I

Travail de recherche

1 Introduction

Le fil conducteur de notre activité de recherche est d'acquérir et développer une expertise en physique épitaxiale, pour fabriquer et mettre à disposition du magnétisme des objets originaux, que nous étudions ensuite. Le titre du manuscrit vient de ce que nous cherchons à démontrer l'utilité de l'auto-organisation pour les matériaux magnétiques. Ces intérêts peuvent être rangés dans deux catégories. La première catégorie consiste à utiliser des systèmes auto-organisés comme systèmes modèles, pour étudier des phénomènes qui ne peuvent être analysés finement dans les matériaux conventionnels, du fait de leur complexité structurale. . . . *aux systèmes magnétiques* s'entend alors comme l'application aux matériaux magnétiques, de connaissances acquises sur les systèmes auto-organisés. La seconde catégorie consiste à lever les verrous qui font que les systèmes auto-organisés ne peuvent actuellement être utilisés en tant que matériaux, notamment du fait du superparamagnétisme à température ambiante. . . . *aux systèmes magnétiques* s'entend alors comme l'amélioration des systèmes auto-organisés pour leur conférer le statut de matériaux.

L'articulation de notre activité en deux thématiques, croissance et magnétisme, a plusieurs conséquences :

- La croissance épitaxiale, qu'elle concerne des couches minces ou des nanostructures, n'est en principe pour nous qu'un outil au service du magnétisme. Dans les faits, pour fabriquer et contrôler de nouveaux objets, originaux, il est nécessaire de posséder et développer une certaine expertise des processus de croissance. Au détour de procédés mis au point avec en ligne de mire des objectifs magnétiques, nous avons pu apporter une contribution originale en croissance et caractérisation des surfaces : croissance colonnaire, décoration de marches par des bandes épaisses, diffraction sur des super-mailles de système auto-organisés, etc.
- Du côté du magnétisme, notre activité de recherche comprend plusieurs aspects : le superparamagnétisme, le micromagnétisme d'objets monodomaines et multidomaines, l'anisotropie d'interface, etc. Ceci vient de ce que les différents procédés originaux de croissance que nous avons pu développer, ont une portée qui n'est pas restreinte à un système particulier. Le meilleur exemple est notre travail qui débute sur la mise au point de couches tampon à paramètre cristallin ajustable (voir les perspectives, p.81). Une fois ce procédé mis au point, il peut être mis à profit dans plusieurs domaines de la croissance, et donc du magnétisme.
- Émarger sur deux thématiques nécessite un dialogue régulier entre croissance et magnétisme : dans un sens il nous faut contraindre la croissance dans une direction qui nous intéresse pour le magnétisme ; en retour, de nouveaux procédés développés nous offrent des systèmes d'études jusqu'alors inaccessibles, ou bien auxquels nous n'avions pas pensé. Le principal inconvénient de cette recherche est qu'il est nécessaire de partager son temps, ce qui ralentit le rythme de travail.

Mon travail s'est en partie appuyé sur des collaborations étroites avec des spécialistes dans leur domaine. J'ai eu une contribution active dans tous les travaux que je présente dans ce manuscrit, mais certains aspects n'ont pu voir le jour que grâce à l'expérience et à la compétence de collègues. Je pense à trois aspects en particulier :

- **les simulations micromagnétiques** ont été réalisées au LLN par Jean-Christophe TOUSSAINT, en utilisant un code micromagnétique propre qu'il a développé durant les dernières années. Ce développement a débuté en 1995 durant la thèse de Brindusa KEVORKIAN, qu'il a encadrée. Tout le mérite du succès de ce code leur revient.
- **les études de GISAXS** ont été rendues possibles grâce à l'expérience, au développement expérimental de longue haleine et au dynamisme de Gilles RENAUD et Antoine BARBIER. J'ai activement participé aux expériences et à l'analyse du cas Co/Au(111), mais le mérite du succès de ces expériences leur est dû.
- **la caractérisation magnétique de plots individuels par micro-SQUID** a été effectuée par Wolfgang WERNSDORFER au LLN.

2 Plots sub-micrométriques : des micro-laboratoires pour le micromagnétisme

2.1 Contexte

Depuis plusieurs décennies la communauté de croissance sur des surfaces utilise des instabilités pour fabriquer spontanément des nanostructures telles que des plots. Ces plots étant généralement répartis de manière désordonnée^{1.1} sur une surface, on parle parfois d'*auto-assemblage*. Cependant jusqu'au milieu des années 1990 seules les couches minces continues semblaient présenter un intérêt technologique. La lithographie était utilisée dans une seconde étape si des motifs étaient nécessaires. Ceci a conduit à l'optimisation de la plupart des procédés de dépôts pour fabriquer les couches les plus plates possibles. Toute instabilité était alors néfaste et à minimiser.

La prise de conscience de l'intérêt de plots auto-assemblés a débuté dans la communauté des semi-conducteurs, du fait des perspectives d'utilisation de plots quantiques comme sources laser de haute efficacité, dans une gamme de taille inaccessible à la lithographie. Dans les autres domaines, le magnétisme en particulier, l'auto-assemblage n'avait jusqu'à présent suscité que peu d'attention.

Notre objectif a été de démontrer l'utilité de l'auto-assemblage pour le magnétisme. Nous avons fabriqué des nanostructures modèles (modèles par leurs structure, forme, interfaces, etc.) que nous avons utilisées comme 'micro-laboratoires' pour étudier certains processus magnétiques. L'utilisation de systèmes modèles permet l'étude des seuls processus fondamentaux, processus que l'on soupçonne souvent d'être brouillés dans les nanostructures obtenues par lithographie. Au-delà de l'aspect fondamental, le lien de nos études avec une communauté plus technologique est le suivant : certains comportements magnétiques indésirables observés dans les nanostructures lithographiées, tels que la non-reproductibilité de l'hystérésis ou bien la dispersion de champ coercitif, peuvent-ils être éliminés par des progrès technologiques, ou bien sont-ils intrinsèques aux structures magnétiques confinées ?

Dans un premier temps nous avons optimisé les processus de croissance pour disposer des meilleures structures pour cette étude (partie 2.2). Dans un second temps nous avons étudié certains comportements magnétiques des plots obtenus (2.3).

^{1.1}En toute rigueur, on ne peut pas parler de répartition *aléatoire* de la nucléation, car chaque plot crée une aire de capture des adatoms dans son voisinage, réduisant la densité des adatoms lors de la croissance, abaissant donc la probabilité d'une nouvelle nucléation. Il existe donc une corrélation faible entre plots plus proches voisins. En pratique cette corrélation est peu visible directement sur les images, et l'on parle par abus de langage de répartition *aléatoire*.

2.2 Fabrication de plots compacts auto-assemblés Fe/Mo(110)

Cette partie est consacrée à l'étude de l'auto-assemblage de plots Fe/Mo(110), car ce sont ceux que nous avons utilisé jusqu'à présent pour les études micromagnétiques. Toutefois, dans le but d'éclairer certains aspects généraux de la croissance, nous donnerons ponctuellement des résultats concernant le système Fe/W(110), que nous étudions depuis plus récemment. Les systèmes rapportés dans cette partie ont été exclusivement fabriqués au LLN par dépôt laser pulsé.

2.2.1 Optimisation de couches tampon métalliques

Au laboratoire nous réalisons l'épitaxie non pas sur monocristaux métalliques massifs, mais sur des couches tampon de métaux réfractaires cubiques centrés (cc : W, Mo, Nb, etc.) épitaxiées sur un substrat commercial, le saphir : cc(110)//Al₂O₃(11 $\bar{2}$ 0) ; cc[1 $\bar{1}$ 1]//Al₂O₃[0001] ; cc[1 $\bar{1}$ 2]//Al₂O₃[1 $\bar{1}$ 00]. Cette approche nous permet de stocker tous nos échantillons sans devoir les détruire, et d'utiliser quotidiennement les caractérisations *ex situ*. De ce point de vue, nous avons plus une approche de type 'matériaux' que 'surfaces'.

L'optimisation de la qualité des couches tampon a été initiée en 1997 durant ma thèse. Elle se poursuit, tout comme la caractérisation des couches obtenues. L'obtention d'une surface lisse à l'échelle atomique implique le recours aux hautes températures. La difficulté consiste à éviter le démouillage ou le développement d'instabilités de type Grinfeld [1, 2], tous deux se développant également à haute température. Le compromis consiste en un dépôt à température modérée pour favoriser le mouillage (typiquement 200 °C), suivi d'un recuit pour lisser la surface, typiquement 800 °C.

Nous sommes maintenant capables de fabriquer, au moins pour Mo, W, et Nb, des couches tampon d'épaisseur inférieure à 10 nm, dont la surface est indiscernable de celle d'un monocristal massif (FIG. I.1). Du point de vue topographique la surface, localement plane à l'échelle atomique, présente à grande échelle un réseau de marches mono-atomiques (hauteur ~ 2 Å) dont la grande période latérale, typiquement 200 nm, résulte directement de la vicinalité résiduelle du substrat poli par l'industriel (typiquement 0.05°, soit 3') (FIG. I.1b-c). Du point de vue cristallographique le paramètre cristallin, sondé en géométrie $\theta - 2\theta$, est identique au massif dans la résolution expérimentale de 0.1% (FIG. I.1a).

[RÉFÉRENCES : 3]

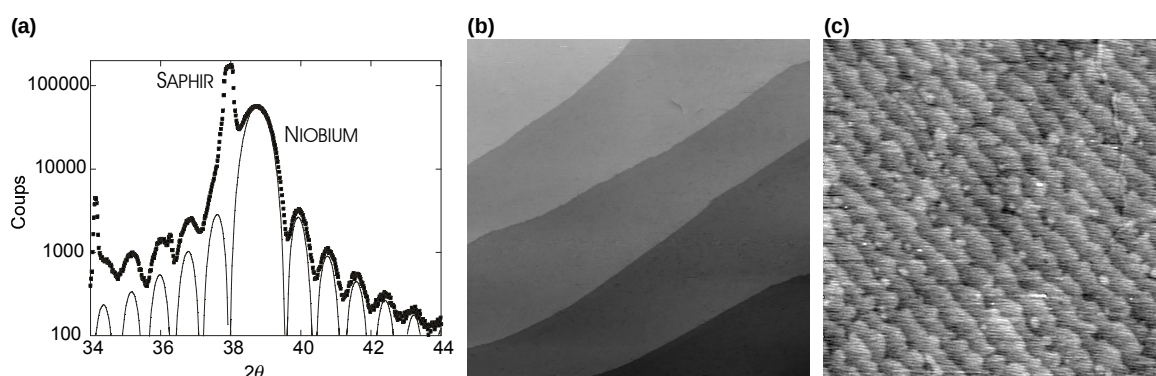


FIG. I.1: (a) Pic de diffraction (110) d'une couche tampon de Nb, expérimental (symboles) et simulé (trait). Les interférences résultent de la taille finie de la couche, et leur grand nombre démontre l'excellente uniformité de l'épaisseur (b) Vue STM 750 $\times$ 750 nm d'une couche tampon de Mo(110) montrant le détail des marches mono-atomiques (c) Vue AFM *ex situ* 10 $\times$ 10 μ m d'une couche tampon de W(110) montrant l'ordre à longue distance du réseau de marches mono-atomiques

2.2.2 Diagramme des modes de croissance Fe/Mo(110)

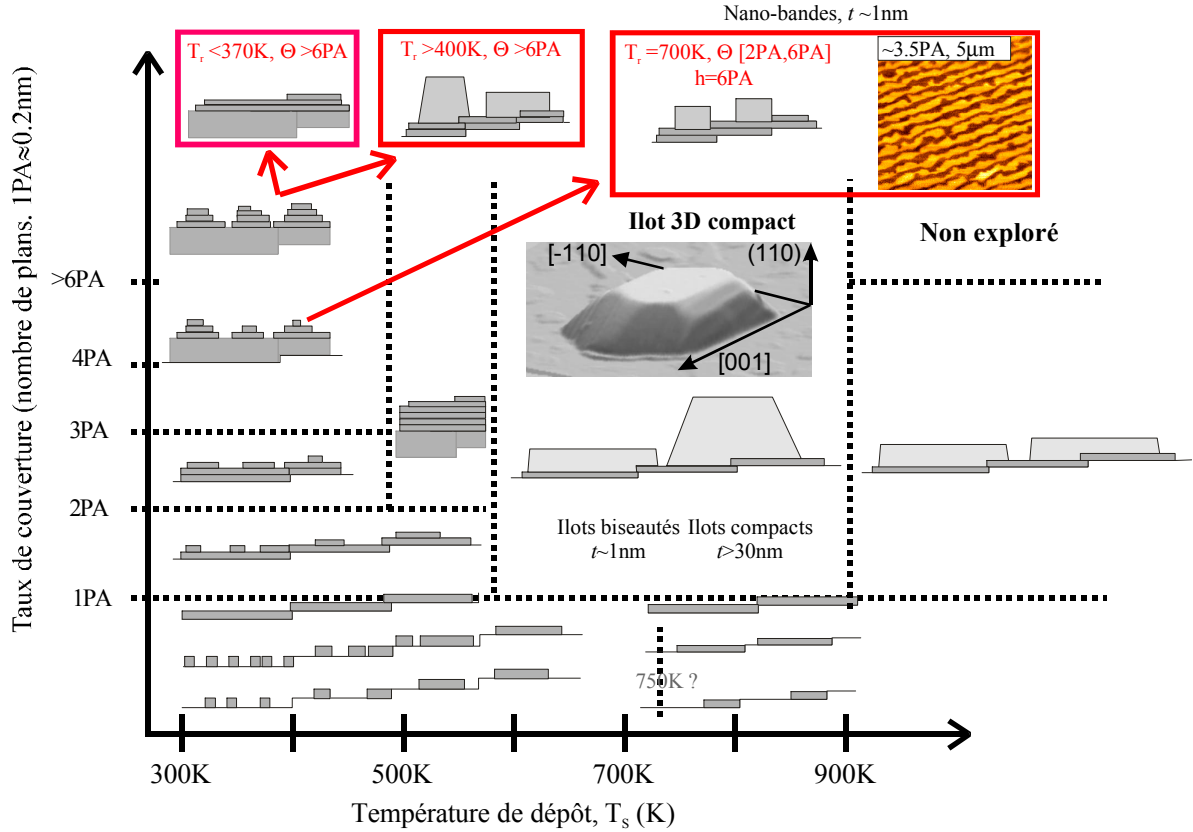


FIG. I.2: Aperçu des modes de croissance du système Fe(110)/Mo(110).

Au début de notre travail l'optimisation de la croissance d'auto-assemblés métalliques dans la gamme sub-micronique n'avait été réalisée dans aucun système à notre connaissance. Nous avons décidé d'explorer de manière extensive le diagramme de croissance du système Fe(110)/Mo(110), en fonction de la quantité de dépôt Θ ^{1,2}, de la température T et d'éventuels recuits. Seules quelques données concernant la croissance de couches minces sont disponibles pour ce système [4–6]. Notre travail a mis au jour une grande diversité des modes de croissance de Fe/Mo(110), résumés schématiquement sur la FIG. I.2.

Le diagramme de croissance comprend trois grandes zones :

- À toute température T la croissance commence par la formation complète du premier plan atomique (PA), à l'exclusion de toute autre structure. La formation de ce plan de mouillage est donc stable thermodynamiquement, en accord avec les valeurs d'énergie de surface (même si la validité de ces grandeurs est quantitativement douteuse pour un système d'épaisseur mono-atomique). Par un effet cinétique, en dépôt laser pulsé (DLP) la croissance par complétion de plan peut être prolongée jusqu'au second PA en dessous de 600 K. Ces résultats ne sont pas détaillés dans ce manuscrit, notamment l'étude STM des îlots mono-atomiques, montrant les spécificités du DLP par rapport à la MBE : mobilité des adatoms accrue, croissance couche par couche.

^{1,2} Θ est défini comme l'épaisseur d'une couche continue, de densité celle du fer massif, et qui serait constituée de toute la matière déposée.

- Pour $T < 500$ K la croissance se poursuit sous forme d'une couche continue, mais dont la surface développe une rugosité croissante, du fait de l'effet Schwoebel (impossibilité pour les adatoms de franchir une marche atomique). Cette rugosité se présente sous la forme de 'toits d'usine' orientés selon [001], reflétant l'anisotropie des surfaces (110) [3, 7, 8]. Un recuit modéré conduit au lissage de la surface ; un recuit trop important conduit au démouillage sous forme de filaments alignés selon [001] (voir également la Réf.9).
- Pour $T > 600$ K la croissance se poursuit principalement par la formation de plots compacts, de forme essentiellement homothétique au cours du dépôt. Ce sont ces plots que nous utilisons pour les études micromagnétiques, et dont les caractéristiques structurales sont rapportées dans les paragraphes suivants. Selon cette description, le mode de croissance devrait être qualifié de *Stranski-Krastanov*, c'est à dire croissance tri-dimensionnelle au-delà d'un ou plusieurs PA de mouillage. En réalité nous avons observé, en plus du PA de mouillage et des plots compacts, des 'galettes', de hauteur *totale* 7 PA, et très étendues latéralement. Ce point, original et à la base du principe de formation de bandes auto-organisées épaisses, sera abordé dans la partie 3.3.
- Enfin, dans un régime de température intermédiaire et certainement étroit, la croissance procède couche par couche, au moins jusqu'à 6 PA.

Ces résultats sont qualitativement identiques pour le système Fe/W(110) (voir un aperçu dans la partie 3.3) ; en particulier la coexistence de trois entités distinctes (couches de mouillage, plots compacts, galettes) est confirmée. Ceci laisse présager une certaine généralité de nos résultats.

[RÉFÉRENCES : 3, 10, 11]

2.2.3 Maîtrise de la densité et la taille des plots

La FIG. I.3a montre une vue AFM à grand champ de plots compacts. La répartition des plots est aléatoire sur la surface (voir note I.1 p.26). Leur densité peut être ajustée par le choix de la température de dépôt, typiquement de $1 \mu\text{m}^{-2}$ à 300°C à $0.1 \mu\text{m}^{-2}$ à 450°C . Leurs dimensions peuvent quand à elles être ajustées par la quantité de matériau déposé [12].

[RÉFÉRENCES : 12]

2.2.4 Analyse de la forme des plots

a. Données expérimentales

Pour une température de croissance supérieure à 350°C les plots compacts présentent une forme facettée très régulière (FIG. I.3b). Les facettes correspondent aux familles de plans d'atomes les plus denses de la structure cubique centrée simple, $\{110\}$ et $\{001\}$ principalement (FIG. I.3b), et qui possèdent en conséquence l'énergie de surface la plus faible (TAB. I.1). Ces facettes sont formellement identifiées en RHEED sous la forme de raies de diffractions inclinées [12]. L'angle de ces raies inclinées, identifiable au degré près à l'orientation de plans du cristal massif, ainsi que leur finesse, permet de conclure que les facettes des plots sont planes à l'échelle atomique et de haute qualité cristallographique.

Étudions les proportions des plots. Appelons L , l et h leur longueur, largeur et hauteur, respectivement, et introduisons leurs rapports d'aspect latéral $r = l/L$ ^{1.3} et vertical $\eta = h/L$. Ces deux rapports d'aspect sont quasiment indépendants de la taille des plots au-delà des premiers stades de croissance ($\Theta > 1.5$ nm), ainsi que de la température de dépôts (FIG. I.4). Ceci suggère que la forme des plots est une forme d'équilibre. L'objet du paragraphe suivant est de modéliser cette forme.

^{1.3}L'anisotropie des plots dans le plan de croissance provient de la symétrie uniaxiale de la surface (110)

TAB. I.1: Les différentes facettes pouvant intervenir dans la minimisation de l'énergie de surface/interface d'un cristal de fer bcc, et les densités d'énergie correspondantes, d'après [13]

Facettes Fe (bcc)	{100}	{310}	{110}	{211}	{111}
γ (J.m ⁻²)	2.222	2.393	2.430	2.589	2.694

b. Modélisations

Le problème de la détermination de la forme d'équilibre d'un cristal a été résolu par Wulff pour le cas d'un cristal isolé, puis généralisé par la suite par Kaichev dans le cas d'un cristal déposé sur une surface (Réf.14 et références incluses). Le résultat, connu sous le nom de théorème Wulff-Kaichev, consiste en une construction géométrique qui décrit la distance h_i de chaque facette i au centre (éventuellement hypothétique) du cristal :

$$\frac{\gamma_i}{h_i} = \frac{(\gamma_{\text{int}} - \gamma_s)}{h_{\text{int}}} = \text{constante} \quad (\text{I.1})$$

où γ_i est l'énergie libre de la facette i , γ_s celle de la surface libre du substrat, et γ_{int} l'énergie libre

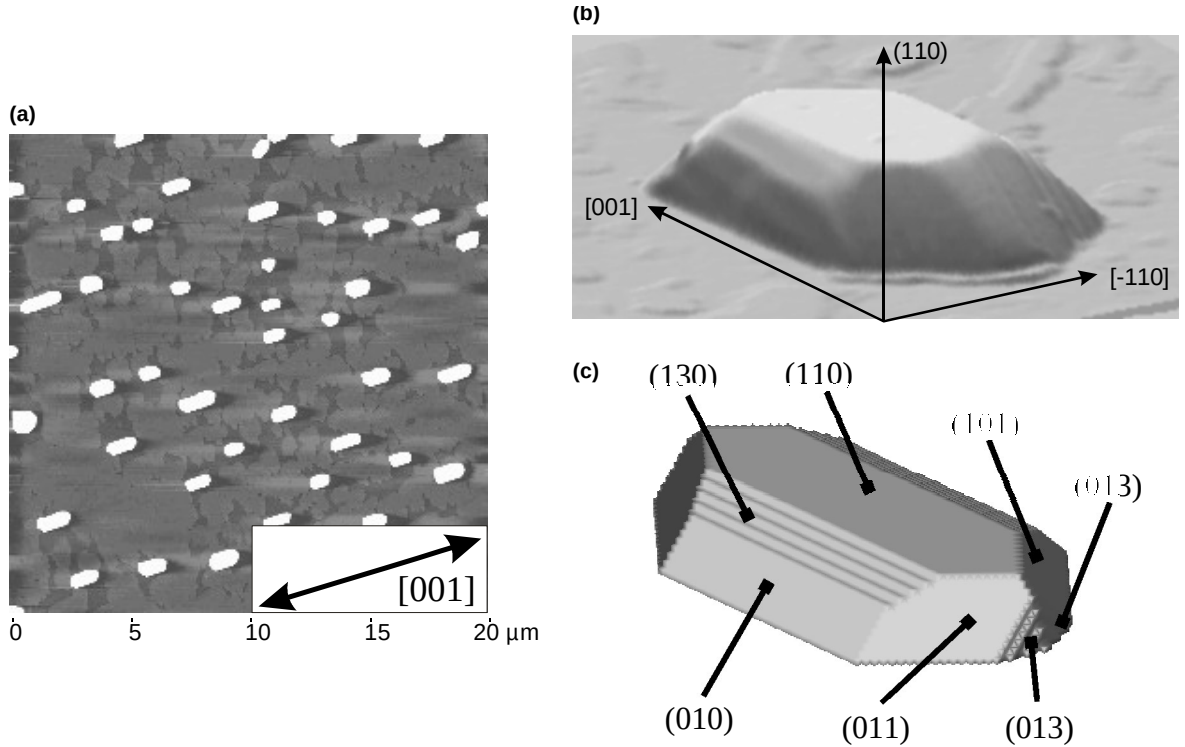


FIG. I.3: (a) Image AFM $20 \times 20 \mu\text{m}$ de Fe/Mo(110) déposé à 450°C pour une épaisseur nominale $\Theta = 8 \text{ nm}$. Outre les plots apparaissant en blanc, le fond de la couche montre un contraste bicolore, révélant la monocouche atomique de mouillage (contraste foncé) et les 'galettes' de hauteur 6 PA (contraste clair). (b) Représentation 3D d'une image AFM d'un plot de longueur $\sim 1 \mu\text{m}$. La direction verticale est à l'échelle 1. (c) orientation des facettes.

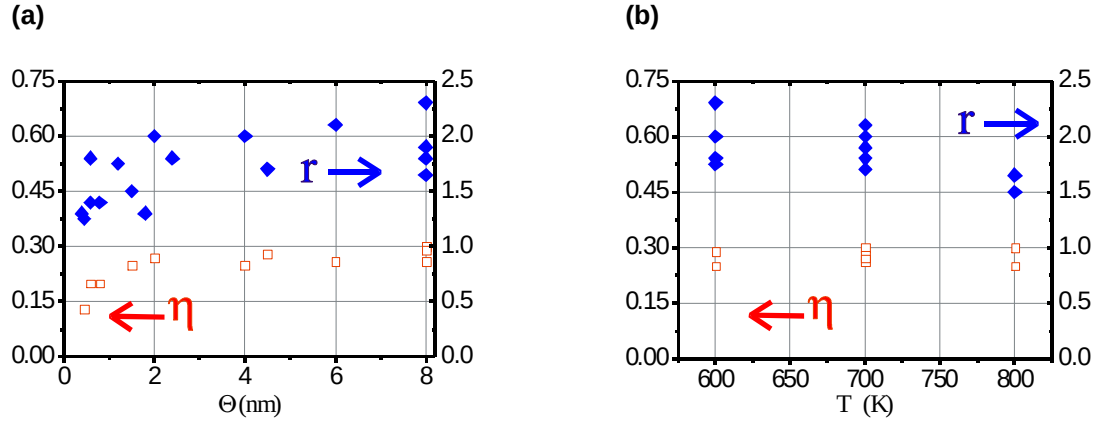


FIG. I.4: Rapports d'aspect vertical η et latéral r des plots compacts Fe/Mo(110) en fonction (a) du taux de dépôt effectif Θ pour $T = 350^\circ\text{C}$ et (b) de la température de dépôt pour $\Theta > 2\text{ nm}$.

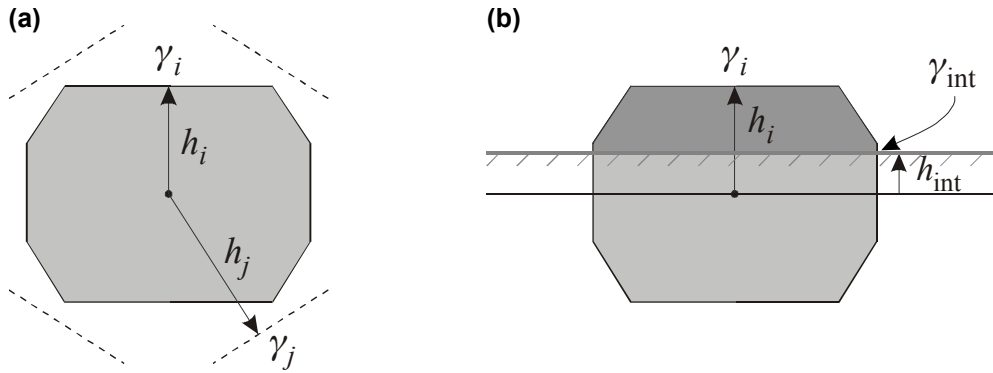


FIG. I.5: Définition des notations utilisées dans le théorème de Wulff (a) et Wulff-Kaichev (b).

d'interface plot/substrat^{I.4}. h_{int} est la distance entre le centre du cristal et l'interface (FIG. I.5). Les rapports d'aspect r et η peuvent alors être calculés sans difficulté. Expérimentalement ce sont les surfaces libres de type $\{110\}$ et $\{100\}$ qui sont prédominantes, et ce sont les formules restreintes à leur seule prise en compte que nous présentons ici :

– pour $0 < \gamma_{\text{int}} < \gamma_{\{110\}}(\sqrt{2} - 1)$ ($\simeq 1\text{ J.m}^{-2}$)

$$r = \frac{L}{l} = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{(\gamma_{\text{int}} + \gamma_{\{110\}})}{(\gamma_{\text{int}} - \gamma_{\{110\}} + \sqrt{2}\gamma_{\{001\}})} \quad (\text{I.2})$$

$$\eta = \frac{h}{l} = \frac{1}{2} \frac{\gamma_{\text{int}}}{(\gamma_{\text{int}} - \gamma_{\{110\}} + \sqrt{2}\gamma_{\{001\}})} \quad (\text{I.3})$$

^{I.4} γ_{int} est la même quantité que celle qui intervient dans le critère de Bauer prédisant le mouillage favorable d'un matériau A sur B : $\gamma_B - \gamma_A - \gamma_{\text{int}} > 0$.

– pour $\gamma_{\{110\}}(\sqrt{2} - 1) < \gamma_{\text{int}} < 2\gamma_{\{110\}} - \sqrt{2}\gamma_{\{001\}}$ ($\simeq 1.72 \text{ J.m}^{-2}$)

$$r = \frac{L}{l} = \frac{\gamma_{\{110\}}}{(\gamma_{\text{int}} - \gamma_{\{110\}} + \sqrt{2}\gamma_{\{001\}})} \quad (\text{I.4})$$

$$\eta = \frac{h}{l} = \frac{1}{2} \frac{\gamma_{\text{int}}}{(\gamma_{\text{int}} - \gamma_{\{110\}} + \sqrt{2}\gamma_{\{001\}})} \quad (\text{I.5})$$

– et pour $2\gamma_{\{110\}} - \sqrt{2}\gamma_{\{001\}} < \gamma_{\text{int}} < \gamma_{\{110\}}$ ($= 2.43 \text{ J.m}^{-2}$)

$$r = \frac{L}{l} = 1 \quad (\text{I.6})$$

$$\eta = \frac{h}{l} = \frac{\gamma_{\text{int}}}{2\gamma_{\{110\}}} \quad (\text{I.7})$$

Des formules plus générales sont présentées dans la référence 15 ; elles ne modifient que peu les résultats pour le Fe/Mo(110).

Le théorème de Wulff-Kaichev ne prend pas en compte la possible accumulation d'énergie élastique résultant du désaccord paramétrique^{I.5}. Or l'accumulation d'énergie élastique dans l'ensemble d'un plot favorise un rapport d'aspect vertical plus important pour augmenter les surfaces libres du plot, qui permettent la relaxation élastique. L'énergie élastique peut donc influencer la forme, voire l'existence même, des plots obtenus dans le régime de croissance Stranski-Krastanov [14, 16]. Il est donc essentiel de vérifier que cette énergie est négligeable ici, pour pouvoir appliquer le théorème de Wulff-Kaichev. Or ce dernier prédit la forme d'un plot, mais ne donne pas explicitement la valeur de son énergie de surface/interface totale. Nous avons calculé directement cette énergie, dans le cas des plots de Fer et en ne prenant en compte que les facettes $\{110\}$ et $\{100\}$:

$$E_{\text{tot}} = (V_0)^{2/3} \frac{[\gamma_{\text{int}}(-1/(2\sqrt{2}) + r) + \gamma_{\{110\}}(-\sqrt{2}\eta^2 + \eta 2\sqrt{2} - 2\eta r) + 2\eta\gamma_{\{001\}}(-1 + \sqrt{2}r)]}{[r\eta - \eta/(2\sqrt{2}) - r\eta^2 + \eta^3\sqrt{2}/3]^{2/3}} \quad (\text{I.8})$$

c. Analyse des données expérimentales

La FIG. I.6 représente la variation de η et r en fonction de la valeur de l'énergie d'interface plot/substrat, prédites par le théorème de Wulff-Kaichev, et en prenant en compte un nombre croissant de facettes. Les valeurs expérimentales et leurs dispersions sont représentées : $\eta = 0.27 \pm 0.03$ et $r = 1.6 \pm 0.1$ pour Fe/Mo ; $\eta = 0.07 \pm 0.03$ et $r = 2.7 \pm 0.8$ pour Fe/W. Chaque dispersion expérimentale, lisible sur l'axe des ordonnées, est convertie en une gamme d'énergie d'interface γ_{int} compatible avec les observations, le tout symbolisé par un rectangle. Pour chacun des deux systèmes, les valeurs observées de η et r correspondent à une gamme similaire de γ_{int} . Cette observation est rassurante car, le modèle ne comportant qu'un seul paramètre, γ_{int} , un raisonnement erroné aurait conduit à deux valeurs différentes de $\gamma_{\text{int}}(\eta)$ et $\gamma_{\text{int}}(r)$. Les valeurs déduites sont : $\gamma_{\text{int,Mo}} = 0.65 \pm 0.15 \text{ J.m}^{-2}$ et $\gamma_{\text{int,W}} = 0.10 \pm 0.05 \text{ J.m}^{-2}$.

Revenons sur l'hypothèse, implicite dans le théorème de Wulff-Kaichev, consistant à négliger l'énergie élastique volumique. Des mesures du paramètre de maille des plots selon trois directions principales permettent d'estimer les déformations résiduelles, et donc l'énergie élastique volumique $E_{\text{El.}}$. $E_{\text{El.}}$ est un ordre de grandeur plus faible que l'énergie de surface/interface. En supposant que 10% de cette énergie pourrait être gagnée en modifiant la forme des plots, et par comparaison avec la nappe d'énergie théorique

^{I.5}Désaccord paramétrique total, ou bien résiduel après introduction de dislocations à l'interface. Le rôle des dislocations d'interface est discuté dans le paragraph d.

de surface/interface en fonction de η et r [Eq. (I.8)], nous avons montré que les modifications attendues sont plus faibles que la dispersion de données expérimentales.

En conclusion, le modèle de Wulff-Kaichev peut être utilisé pour les plots Fe/Mo(110). Les valeurs de γ_{int} déduites sont discutées dans le paragraphe suivant.

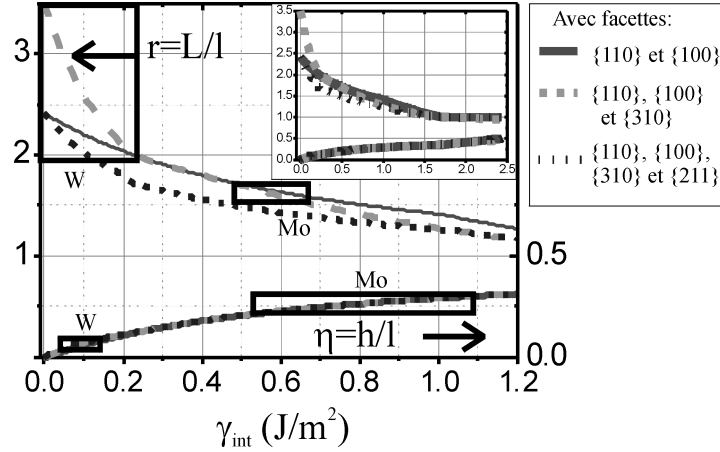


FIG. I.6: Rapports d'aspect vertical η et latéral r des plots compacts, en lignes pour les valeurs prédites par le modèle de Wulff-Kaichev ; sous forme de rectangles pour les valeurs expérimentales de Fe/Mo(110) et Fe/W(110). La hauteur des rectangles représente la dispersion de valeurs observée ; la largeur utilise la courbe théorique $\{110\} - \{001\} - \{310\}$ pour convertir cette distribution en une gamme d'énergie de surface compatible avec l'expérience.

d. Discussion des valeurs d'énergie d'interface

La croissance de Fe/Mo(110) débute par la formation d'une monocouche atomique de Fe pseudomorphe (FIG. I.2, p.28). Une fois cette monocouche formée, on aurait pu s'attendre à son mouillage par les adatoms suivants, et donc à une croissance plan atomique par plan atomique. Or on observe une croissance en plots, se traduisant par une valeur positive de γ_{int} , déduite dans le paragraphe précédent. En fait, cette valeur positive vient du fait que l'accroissement de la base des plots nécessite l'extension du réseau de dislocations d'interface, et par conséquent implique un coût d'énergie élastique. Les déformations élastiques associées à ces dislocations décroissent exponentiellement avec la distance à la fois dans les plots et dans la couche tampon de Mo, avec une portée comparable à l'espacement interdislocations, soit environ 3 nm ici. En conséquence, pour des plots de hauteur supérieure à une dizaine de nanomètres, nous pouvons considérer que les déformations élastiques liées aux dislocations sont localisées à l'interface Fe/Mo, et que leur effet est pris en compte dans la grandeur phénoménologique γ_{int} déduite dans le paragraphe précédent. Dans cette approche, la croissance de type SK est expliquée par une énergie d'interface négative à l'échelle de la couche pseudomorphe (origine purement chimique), alors que pour les couches ultérieures l'énergie d'interface devient positive du fait des dislocations, déclenchant la croissance de plots (voir également la Réf.17). Notons que l'existence d'une forte densité d'énergie élastique à l'interface ne remet pas en cause la faiblesse de l'énergie élastique stockée dans le volume du plot, et qui nous a permis d'appliquer le théorème de Wulff-Kaichev.

Existe-t-il une contribution chimique (hybridation) à γ_{int} ? Un argument erroné serait de considérer une énergie d'hybridation Fe-Mo. En effet les plots de Fer s'étendent non pas sur un substrat nu, mais sur la monocouche de mouillage de fer. Si l'on assimile naïvement la monocouche de Fe à une surface (110) de cristal de Fe massif, la contribution d'hybridation devrait être nulle par définition, et seule l'énergie

élastique contribuerait à γ_{int} . Ceci peut être réfuté au vu de nos résultats : $\gamma_{\text{int,W}}$ est bien plus faible que $\gamma_{\text{int,Mo}}$, alors que la densité du réseau de dislocation est légèrement plus importante pour Fe/W(110). Ceci signifie que le mouillage de fer sur une monocouche pseudomorphe Fe/W(110) est plus favorable que le mouillage sur une monocouche Fe/Mo(110), et peut être rapproché des énergies de la surface (110) des éléments considérés : $\gamma_{\text{Fe}} = 2.430 \text{ J.m}^{-2}$, $\gamma_{\text{Mo}} = 3.454 \text{ J.m}^{-2}$ et $\gamma_{\text{W}} = 4.005 \text{ J.m}^{-2}$ pour les valeurs théoriques, et $\gamma_{\text{Fe}} \sim 2.45 \text{ J.m}^{-2}$, $\gamma_{\text{Mo}} \sim 2.95 \text{ J.m}^{-2}$ et $\gamma_{\text{W}} \sim 3.45 \text{ J.m}^{-2}$ pour des déterminations expérimentales (Réf.13 et références incluses).

En conclusion, en analysant la forme des plots auto-assemblés compacts de Fe/Mo(110) et Fe/W(110), nous avons déterminé une énergie d'interface pour ces deux systèmes. Cette énergie est une grandeur phénoménologique qui comprend, outre une énergie d'hybridation Fe-Fe(1 PA/cc(110)) (Voir discussion du paragraphe précédent sur la signification de l'énergie d'hybridation), l'énergie élastique *intégrée* du réseau de dislocations interfaciales. Ces deux contributions sont du même ordre de grandeur, et leur séparation nécessite des expériences complémentaires.

[RÉFÉRENCES : 12]

2.3 Magnétisme des structures à fermeture de flux

2.3.1 Introduction

Le confinement des domaines magnétiques dans des motifs plats de matériau magnétique doux a été très étudié [18–20]. Cependant jusqu'au début des années 1990 seuls des échantillons de taille très supérieure au micron avaient été étudiés, ignorant la structure interne des parois et vortex, traités comme des singularités [19, 20]. Depuis peu, l'amélioration des techniques d'imagerie magnétique [21, 22] et les gains considérables de puissance de calcul permettent aux expériences et simulations micromagnétiques de se recouvrir dans la gamme 50-1000 nm. Dans le même temps, des modèles analytiques se développent pour tenter de décrire les inhomogénéités de l'aimantation à l'origine de l'hystérésis dans les nanostructures [23–26]. Ainsi il est maintenant envisageable d'utiliser les plots magnétiques sub-microniques pour lever le voile sur des phénomènes magnétiques décrits jusqu'alors phénoménologiquement, comme la nucléation^{I.6}.

De plus, nombre de phénomènes magnétiques dépendent à la fois de paramètres connus (anisotropie et aimantation, forme de l'objet) et de paramètres moins contrôlables (microstructure, rugosité, défauts, etc.), que l'on pourrait qualifier d'extrinsèques. La séparation du rôle de ces deux types de paramètres est difficile expérimentalement, et la comparaison avec des modèles ou simulations est délicate du fait des paramètres inconnus.

C'est dans ce contexte que nous avons étudié des plots auto-assemblés censés se rapprocher de l'objet idéal (rugosité locale nulle, pas d'oxydation, structure épitaxiale, forme facettée). Notre objectif est de comprendre des comportements micromagnétiques *intrinsèques* des nanostructures magnétiques, dans un dialogue permanent expériences-simulations.

Les études rapportées dans les sections suivantes ouvrent progressivement la porte à la compréhension de l'origine microscopique des processus de nucléation.

2.3.2 Configurations à rémanence

En magnétométrie d'assemblée, les plots compacts présentent une rémanence essentiellement nulle après aimantation dans n'importe quelle direction. L'imagerie MFM d'une assemblée a révélé deux

^{I.6}Dans cette partie, 'nucléation' doit être compris au sens des théories phénoménologiques d'activation thermique et de renversement d'aimantation, c'est à dire un processus irréversible par lequel s'initie localement le renversement de l'aimantation, associé à une discontinuité de la courbe d'aimantation, et qui implique la plupart du temps de fortes inhomogénéités de direction de l'aimantation. Cette notion phénoménologique diffère de la notion micromagnétique plus académique de la nucléation, qui la définit comme le premier écart, même infime, à un état d'aimantation strictement uniforme (quand un tel état existe). Cette notion sera utilisée à son tour dans la partie 4.5

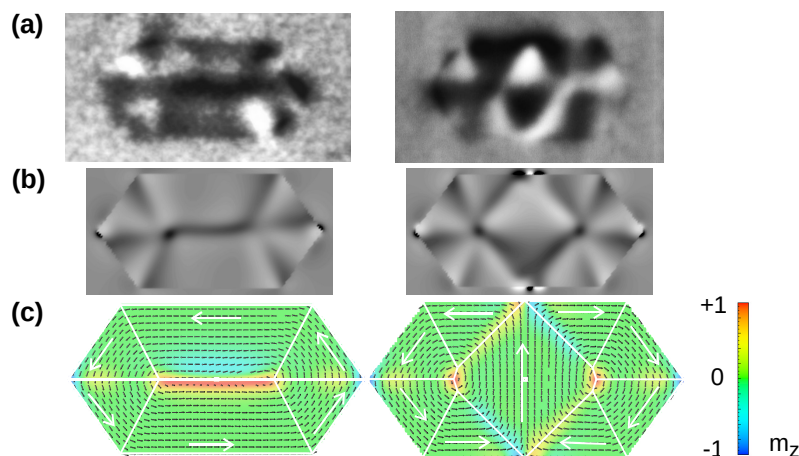


FIG. I.7: (a) images MFM de plots distincts de longueur environ 600 nm après saturation selon [001], *c.à.d.* la grande longueur des plots (b) cartes simulées de dH_d/dz pour une hauteur de vol de 30 nm (c) les configurations micromagnétiques correspondantes, représentées à mi-hauteur du plot, et superposées avec la constructions de Van den Berg. Notons pour a-b le contraste bipolaire des parois de Néel, et le contraste monopolaire de la paroi de Bloch. Pour c la couleur code la composante verticale de l'aimantation, et les flèches blanches indiquent la direction planaire de l'aimantation.

principaux types de configurations rémanentes à fermeture de flux (FIG. I.7a), identifiées par simulation (FIG. I.7b-c) et que l'on peut assimiler à des états répertoriés pour les plots largement microniques : état *Landau* (ÉL, gauche) et état *losange*, ou *diamond* en anglais (ÉD, droite). La fermeture du flux est assurée respectivement par deux vortex pour l'ÉD, une paroi de Bloch pour l'ÉL.

Des simulations numériques ont été effectuées^{I.7} sur des plots de taille extérieure $600 \times 300 \times 60$ nm. Le lieu des parois et vortex dans les états simulés est remarquablement reproduit (FIG. I.7c) par le modèle de Van de Berg (VdB) [19], alors que celui-ci repose sur trois hypothèses dont aucune n'est valide ici : 1. matériau parfaitement doux 2. plot infiniment fin 3. dimensions latérales tendant vers l'infini. Nous pensons que les violations de ces hypothèses se compensent mutuellement : ayant une forme compacte (point 1), le plot est le siège de champs dipolaires puissants qui dominent l'anisotropie (point 2) et compriment les parois (point 3).

Examinons maintenant la structure interne des parois et vortex. La configuration aux surfaces de l'ÉL est très différente de celle à mi-hauteur, du fait de la formation de domaines de fermeture de Néel autour de la paroi de Bloch (FIG. I.8a), une configuration permettant de diminuer les charges magnétiques de *surface* [18]. Une coupe suivant la grande longueur du plot révèle également que la paroi de Bloch a une topologie identique à un vortex, dont on aurait continûment éloigné les parties débouchantes inférieure et supérieure. Enfin, une coupe suivant la largeur (FIG. I.8c) révèle que cette paroi de Bloch a adopté une forme dite asymétrique [18], qui permet elle de réduire les charges de *volume*. Notons que ces effets avaient déjà été mentionnés dans le cas de plots de matériau doux [27]. Des coupes de l'ÉD sont également fournies (FIG. I.8b).

[RÉFÉRENCES : 28]

^{I.7}Code et simulations de J.-C. Toussaint

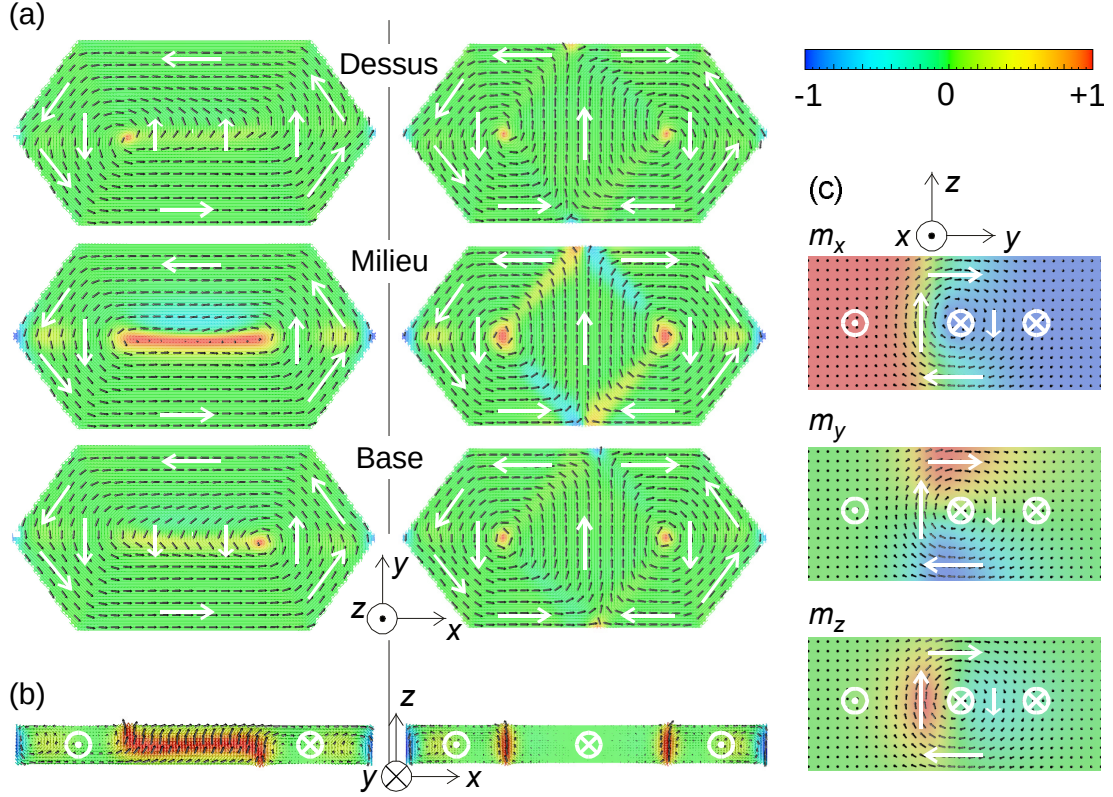


FIG. I.8: Coupes de simulations d'ÉL (gauche) et d'ÉD (right). $x = [001]$, $y = [1\bar{1}0]$, $z = (110)$. Les flèches blanches indiquent la direction planaire de l'aimantation. Le code de couleur correspond à m_z pour (a-b), et à successivement chacune des directions dans (c). (a) Vues du plan xy au dessus du plot, au milieu et à la base (b) coupe médiane selon xz (c) coupe médiane selon yz . Dans (c), selon y seule une partie de la coupe est représentée

2.3.3 Processus de nucléation

Interrogeons-nous sur la coexistence dans la même assemblée de deux configurations rémanentes, l'ÉL et l'ÉD, alors que l'énergie simulée de l'ÉL (et même de chacun de ses constituants : échange, dipolaire et anisotropie) est inférieure à celle de l'ÉD (Table I.2). Ceci illustre un comportement très général et bien connu des systèmes magnétiques [18, 29, 30] : l'histoire magnétique détermine l'état rémanent, qui n'est pas nécessairement l'état fondamental. L'ÉL contient un seul objet magnétique (une paroi, *c.à.d.* un vortex déformé) alors que l'ÉD en contient deux (vortex). De cette simple constatation il vient à l'esprit que la sélection de l'ÉL ou l'ÉD dépend du nombre de vortex qui rentrent dans le plot durant le processus de désaimantation. Nous avons pu vérifier cette intuition par des simulations numériques (pour éviter tout blocage numérique, avec le champ appliqué désaxé dans le plan à 0.1° de l'axe de symétrie $[001]$). L'ÉD est sélectionné pour un plot symétrique (deux vortex entrent simultanément en deux lieux symétriques du plot, ont donc un sens de circulation opposé, qui conduit naturellement à l'ÉD) alors que l'ÉL peut être sélectionné en brisant la symétrie du plot. Suivant l'asymétrie introduite, plusieurs scénarii peuvent conduire à la formation d'une paroi de Bloch : rentrée de deux vortex du *même* côté du plot par rapport au plan xz médian, vortex qui possèdent alors un même sens de circulation et peuvent par exemple fusionner ; dans le cas d'une plus forte asymétrie, par exemple géométrique, un vortex peut rentrer avant

TAB. I.2: L'énergie totale $U(0)$ et ses constituants pour l'ÉD et l'ÉL, prédits par simulation numérique (J.-C. TOUSSAINT). Pour comparaison, $\frac{1}{2}\mu_0 M_s^2 = 1.925 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}$.

État rémanent	$U(0)(10^4 \text{ J.m}^{-3})$	$U_{\text{ex}}(10^4 \text{ J.m}^{-3})$	$U_{\text{d}}(10^4 \text{ J.m}^{-3})$	$U_{\text{an}}(10^4 \text{ J.m}^{-3})$
Losange (ÉD)	3.381	1.488	0.959	0.934
Landau (ÉL)	2.810	1.415	0.707	0.688

l'autre, et se développer dans le plot pour se transformer en parois de Bloch, empêchant la rentrée d'un second vortex. Nous montrons donc que l'état rémanent peut dépendre de variations infinitésimales et subtiles apportant une brisure de symétrie. Cette brisure de symétrie, modélisée par des paramètres simples dans les simulations, peut être induite par des paramètres extrinsèques et incontrôlables dans la réalité : rugosité de bord, défauts, activation thermique, etc. Cette constatation motive l'utilisation de plots modèles pour minimiser les sources de brisure de symétrie. Notons qu'un parallèle peut être fait entre ce résultat et la démonstration de la sélection de la configuration, pour des plots plats, rectangulaires et de matériau doux, par l'application d'un champ transverse : état 'C' sans champ transverse, état 'S' avec champ transverse. La sélection de l'état rémanent est alors cruciale pour le processus de renversement de l'aimantation en champ négatif, qui peut aboutir à un blocage par création d'une paroi à 360° à partir de l'état 'C' [31].

Pour valider ce schéma, la variation angulaire du champ de nucléation H_n a été mesurée par micro-SQUID sur un plot individuel (FIG. I.9a), puis simulée en reproduisant dans les calculs la forme exacte du plot, dissymétrique, visualisée par AFM (FIG. I.9b). Conformément à l'intuition, H_n est plus faible pour un champ appliqué proche de la plus grande longueur du plot. Un aspect plus remarquable sont les discontinuités de H_n observées pour certains angles (par exemple $+45^\circ$). Notons en premier lieu que ces discontinuités ont par nature une origine très différente de celles observées lors du renversement d'aimantation de macrospins à anisotropie d'ordre élevé [32], car le système considéré ici n'est pas un macrospin. En second lieu, un argument souvent rencontré dans la littérature pour expliquer un comportement *a priori* non interprétable dans un modèle simple, comme ces discontinuités, est d'invoquer des défauts structuraux liés à la lithographie (amorphisation, oxydation, etc), défauts dont le rôle exact reste

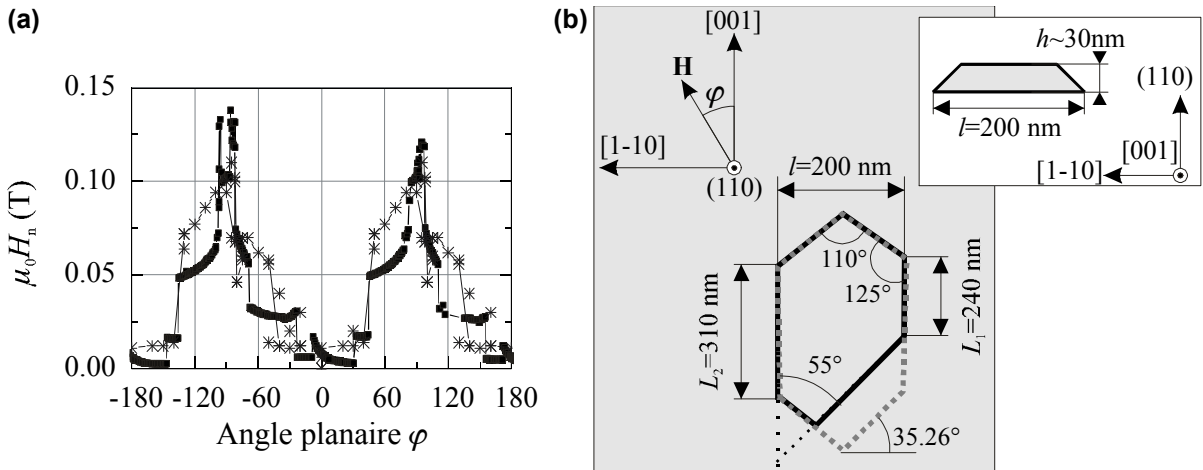


FIG. I.9: (a) variation angulaire planaire expérimentale (carrés) et simulée (croix) du champ de nucléation^{I.9} d'un plot individuel. (b) géométrie du plot étudié, et définition de l'angle φ .

obscur. Nous avons montré par simulation numérique que ces discontinuités pouvaient être expliquées par l'effet intrinsèque de forme du plot sans défaut. Illustrons le principe d'une discontinuité en suivant l'évolution de la configuration micromagnétique près d'un bord de plot, d'un champ de saturation à champ nul. Initialement l'aimantation suit essentiellement la direction du champ extérieur $\mathbf{H}_{\text{ext}}$ (FIG. I.10, en haut). Lorsque H_{ext} est réduit le champ démagnétisant H_d devient non négligeable, en valeur relative, et l'aimantation $\mathbf{M}$ pivote progressivement parallèlement au bord du plot pour suivre $\mathbf{H} + \mathbf{H}_d$ (FIG. I.10, en bas). Ainsi, $\mathbf{M}$ pivote vers la gauche ou la droite suivant l'orientation de $\mathbf{H}_{\text{ext}}$ par rapport à la normale au bord du plot, cette dernière déterminant l'orientation de $\mathbf{H}_d$. Cet effet s'apparente à une *bifurcation* vers deux configurations micromagnétiques distinctes, qui suivront pour H_{ext} décroissant vers zéro des parcours différents, caractérisés par des champs de nucléation distincts, expliquant la discontinuité. Notons que les discontinuités peuvent être expliquées par un plot symétrique, du seul fait de la non-uniformité de l'aimantation et de l'existence de facettes. Le recours à une dissymétrie, ici de forme, n'est nécessaire que pour expliquer la dissymétrie des champs de nucléation entre angles positifs et négatifs d'une part, et pour proposer un schéma conduisant à un état rémanent ÉL.

En conclusion, nous avons montré par comparaison d'expériences sur plot individuel et simulation numérique, que *les discontinuités angulaires des processus d'aimantation peuvent être des phénomènes intrinsèques*, ne requérant pas d'invoquer des défauts. Le processus en cause est la *bifurcation* vers différentes configurations micromagnétiques, déterminée par la direction du champ extérieur avec la normale des différents bord de plot.

[RÉFÉRENCES : 28]

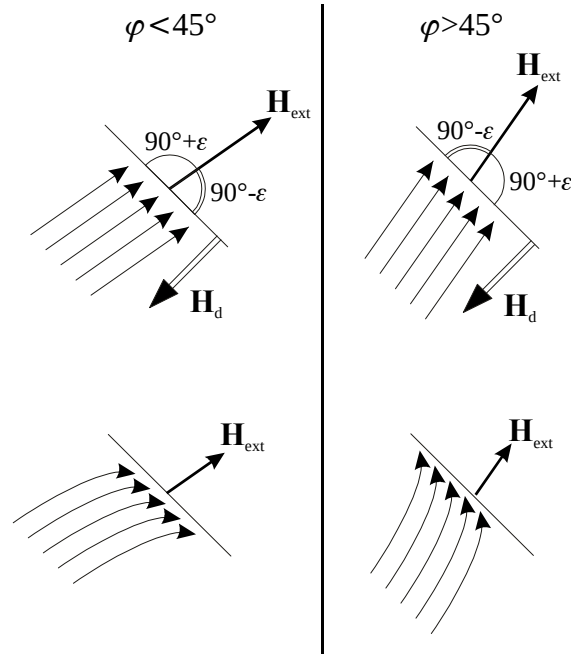


FIG. I.10: Schéma de principe du rôle d'un bord, ici incliné à 45° , sur la bifurcation d'histoires magnétiques.

3 Auto-organisation : des surfaces vers les matériaux

3.1 Contexte

Les premiers cas de croissance auto-organisée (AO) sur métaux ont été rapportés par leurs auteurs presque furtivement, présentés comme des imperfections des premiers stades de nucléation d'une couche continue [33, 34]. Rapidement cependant l'AO a reçu une attention particulière. Pour la communauté scientifique en général cette attention est largement expliquée par les seuls aspects esthétique et spectaculaire. Pour les spécialistes l'OA a permis de mener des études à caractère fondamental : compréhension des mécanismes de l'AO, et fabrication de systèmes modèles pour des études physiques. Nous pouvons classer ces études en deux catégories, que nous illustrons dans le domaine du magnétisme : 1. réalisations expérimentales de systèmes classiques en physique théorique, par exemple l'étude de l'ordre ferromagnétique en dimension réduite, dans des bandes [35] ou fils [36] 2. étude d'effets existant dans des nanostructures traditionnelles, mais qui généralement y sont difficiles à mener du fait de la complexité et de la distribution de propriétés des structures ; citons par exemple les modifications de moment de spin et orbital ainsi que de l'anisotropie, aux surfaces voire aux marches atomiques [36–39].

Ainsi jusqu'à présent les études sont restées académiques, contrastant avec le domaine des semiconducteurs où les boîtes quantiques semiconductrices sont d'excellents candidats pour réaliser des lasers à haut rendement [40]. En magnétisme, le phénomène de superparamagnétisme^{I.10} est un obstacle fondamental à l'utilisation directe de systèmes AO dans des dispositifs : les nanostructures sont de hauteur souvent mono-atomique, ont donc un volume extrêmement faible, et sont superparamagnétiques à température ambiante. Ces nanostructures ne possèdent pas à 300 K les fonctionnalités d'un matériau magnétique, telles que coercitivité et rémanence.

Si l'on veut espérer utiliser un jour l'AO pour des dispositifs magnétiques, il est indispensable de lever le verrou technologique de l'extrême finesse des structures créées. C'est à ce problème que nous nous sommes attaqués, et pour lequel nous avons proposé à ce jour deux pistes, présentées dans les deux parties suivantes : croissance colonnaire par dépôts alternés, et auto-organisation de structures 'épaisses' par mise à profit des contraintes élastiques. On pourrait s'étonner de nous entendre qualifier de *fonctionnels* des systèmes qui restent très académiques, et sans doute mal optimisés. En fait, en tant qu'équipe de recherche fondamentale nous considérons que notre rôle n'est pas de fabriquer des dispositifs, mais de lever les verrous qu'il faudrait franchir si l'on voulait en fabriquer. Il s'agit donc d'*études à caractère démonstratif*.

Enfin, nous montrerons que l'AO peut s'avérer intéressante non pas pour obtenir des propriétés physiques particulières, mais simplement parce que l'ordre à longue distance peut être exploité pour réaliser des expériences de diffraction sur super-maille et appliquer les outils d'analyse classiques de la cristallographie.

3.2 Plots et colonnes de Co/Au(111)

3.2.1 Contexte

Le système Co/Au(111) est un des plus fameux exemples d'auto-organisation dans les systèmes métalliques [34, 37, 38, 41–45]. L'auto-organisation est obtenue grâce à une reconstruction spontanée de la surface d'Au(111), qui densifie son plan terminal d'atomes en faisant alterner terminaisons fcc et hcp [46, 47]. Le motif ainsi formé est de taille environ 10 nm (FIG. I.11a), bien supérieure aux reconstructions de surface habituelles ; c'est ce qui fait son originalité pour la formation de nanostructures. Le

^{I.10}Par analogie avec le paramagnétisme, on qualifie de superparamagnétique tout système (généralement nanoscopique) qui possède à chaque instant un moment magnétique non nul, mais dont la moyenne s'annule à l'échelle de temps d'observation de l'expérimentateur sous l'effet de fluctuations temporelles de la direction de ce moment, résultant de la seule agitation thermique. La température au-dessous de laquelle le moment magnétique se fige pour l'observateur, du fait de la diminution de l'agitation thermique, est appelée température de blocage et notée T_B

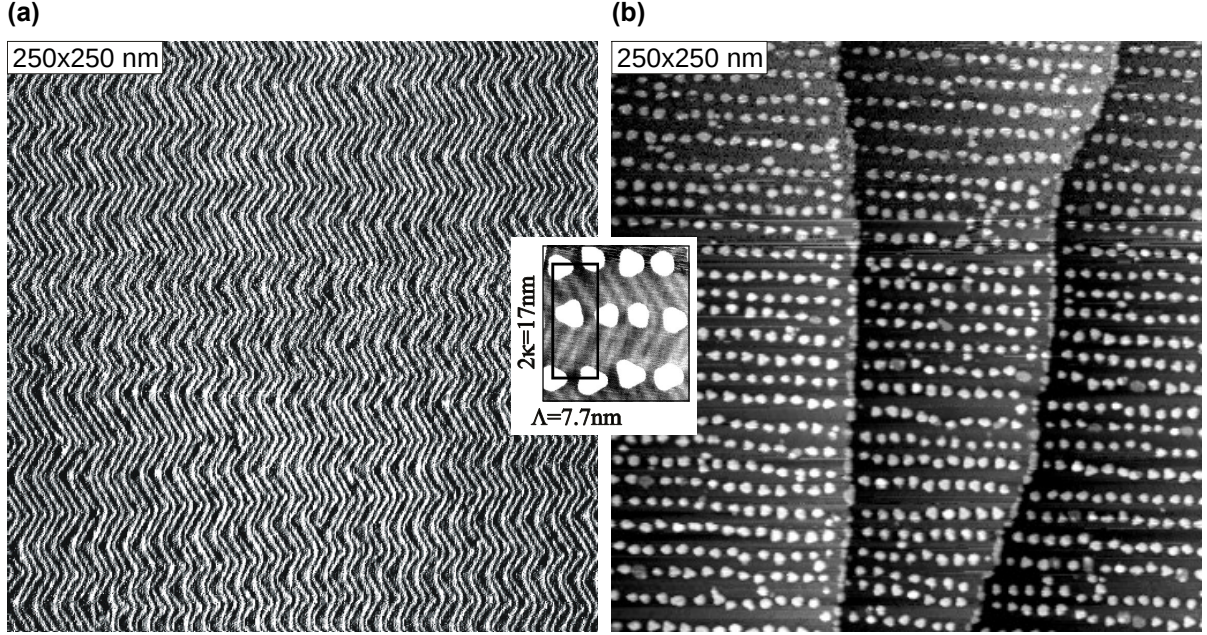


FIG. I.11: (a) surface d'Au(111) reconstruite; la corrugation est de l'ordre de 0.03 nm (b) Réseau auto-organisé de plots de Co (hauteur 0.4 nm). Le zoom en encart montre le lien entre la reconstruction et les plots de Co.

dépôt de Co ne fait que reproduire ce gabarit : dans le régime de croissance sub-PA les atomes de Co nucléent des plots de hauteur 2 PA (soit ~ 0.4 nm) en rapport avec la reconstruction de l'Au, et forment au final un super-cristal de maille rectangulaire à deux plots, où des chaînes de plots sont clairement identifiables (FIG. I.11b). Même si les dépôts de Co ont été les plus étudiés, le Fe [33] et le Ni [48] reproduisent également l'auto-organisation de Au(111), sous forme de plots de hauteur 1 PA.

Les études d'auto-organisation de Fe, Ni et Co ont eu à ce jour plusieurs finalités :

- mécanismes de nucléation des premiers adatoms [48, 49].
- mécanismes de percolation $0D > 1D > 2D$, étudiés structuralement et sous l'angle du magnétisme [34, 42, 44].
- détermination de la température de blocage (limite superparamagnétique) des plots [37].
- Etude par dichroïsme de la modification de la valeur de moment de spin et orbital, interprétée principalement sous forme d'effets de surface (brisure de symétrie de système 2D type couche mince, rencontré pour l'intérieur des plots) et de bord (brisure de symétrie 1D) [37, 38, 50].

Ces études concordent pour conclure que les réseaux AO de plots de Co sont toujours superparamagnétiques à température ambiante, avec une température de blocage T_B ne dépassant pas 100 K.

3.2.2 Croissance colonnaire par dépôts alternés

a. Introduction

Schématiquement $T_B = KV/25k_B$ où K est la densité volumique d'anisotropie et V le volume du système, ce dernier étant le paramètre la plus facilement contrôlable. Ainsi T_B est très faible pour des faibles taux de recouvrement. Il est donc naturel de chercher à augmenter la quantité de Co déposé.

Cependant au cours du dépôt les plots de Co croissent latéralement tout en gardant une hauteur essentiellement de 2 plans atomiques (PA), si bien qu'au-delà d'environ 1 PA déposé les plots percolent pour former des chaînes puis une couche continue. T_B passe alors au-dessus de 300 K, mais le système perd de son intérêt car il s'agit alors d'une couche mince, non plus de plots AO [44]^{I.11}.

Ainsi il semble à première vue impossible de vaincre le superparamagnétisme sans compromis sur l'intégration, c'est à dire sur la densité du réseau de plots, une problématique analogue à celle des grains des disques d'enregistrement magnétique. L'idéal serait de faire croître les îlots en hauteur plutôt que latéralement. Ceci est-il possible ? Une piste nous vient de la communauté des semiconducteurs, qui a observé que lors de la fabrication de multicouches de plots auto-assemblés, les plots des couches successives montrent une tendance à s'aligner verticalement sous l'effet de champs de contraintes (FIG. I.12) [51]^{I.12}. Même s'il pouvait être adapté aux métaux, ce procédé n'apporterait rien au magnétisme car nous n'aurions rien d'autre qu'une assemblée tri-dimensionnelle de plots superparamagnétiques. Nous avons proposé une variante de ce procédé, qui consiste à diminuer au maximum l'épaisseur d'un séparateur non magnétique pour amener les plots de couches successives en contact, physique ou magnétique par échange, afin de stabiliser une entité magnétique unique et verticale, de fort volume et donc ferromagnétique à 300 K.

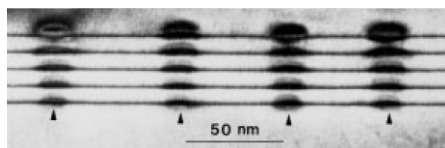


FIG. I.12: Empilement de plots InAs/GaAs par dépôts alternés. Tiré de [51].

b. Description du procédé

Le procédé, réalisé jusqu'à présent par épitaxie MBE sur monocristal d'Au à l'institut Max-Planck de Halle, comporte les étapes suivantes :

1. Une quantité sub-PA 2τ de Co est déposée à 300 K, formant un réseau de plots plats (FIG. I.13a) ($\tau < 1$ PA).
2. Un dépôt ultérieur à 450 K de $(4 - 2\tau)$ PA d'Au produit une surface essentiellement plane. Le réseau enterré de Co est intact, attesté par un réseau de dépressions de profondeur ~ 0.06 nm, résultant de la différence de hauteur atomique entre les deux plans d'atomes de Co et ceux d'Au autour des plots (FIG. I.13b).
3. 2τ de Co est déposé à 500 K. Aucun nouveau plot n'est observé, mais les dépressions ont maintenant une profondeur de 0.12 nm, soit *quatre* fois la différence de hauteur entre plans de Co et d'Au (FIG. I.13c). Ceci suggère que les nouveaux adatoms de Co déposés ont remplacé les atomes d'Au recouvrant les plots existant, augmentant ainsi leur hauteur de 2 PA. Certaines dépressions sont également recouvertes d'un PA. Ces deux étapes fonctionnent également bien pour un dépôt de $(3 - 2\tau)$ d'Au puis τ de Co, résultant alors en des dépressions de profondeur 0.09 nm. Le schéma d'échange atomique proposé, argumenté ci-dessus par la seule analyse de la hauteur des dépressions, a été confirmé directement par Spectroscopie à Effet Tunnel (STS, en anglais) : du Co est effectivement trouvé en surface, tant dans les dépressions que les bosses, et ceci uniquement à la verticale du réseau de plots initial (FIG. I.14).

^{I.11}Il faut noter que la prétendue observation du ferromagnétisme de plots à 300 K mentionnée dans quelques publications résulte d'une mauvaise estimation du seuil de percolation : les chiffres (et/ou leur analyse) tirés des publications mêmes permet de se rendre compte que le système est bien au-delà de la percolation pour les mesures présentées.

^{I.12}D'autres effets d'ordre vertical sont connus : croissance colonnaire par ségrégation aux joints de grains, modulation latérale de composition, instabilités de Grinfeld, etc.

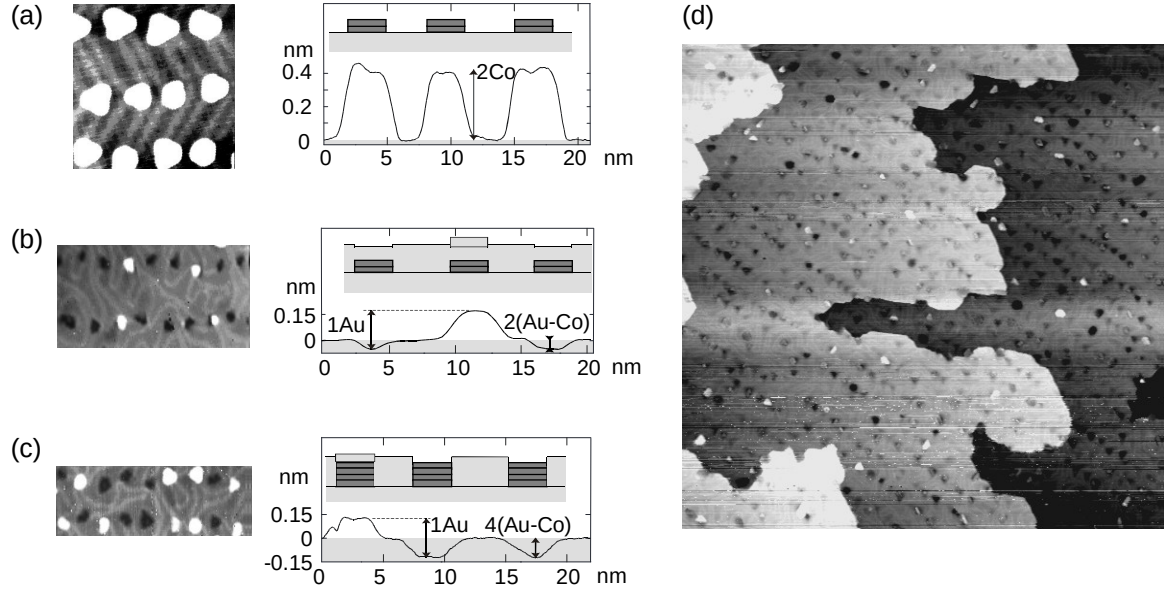


FIG. I.13: Illustration de la croissance colonnaire. (a) plots de Co (b) premier redépôt d'Au (c) second dépôt de Co (d) surface de colonnes enterrée de hauteur 4.5 nm

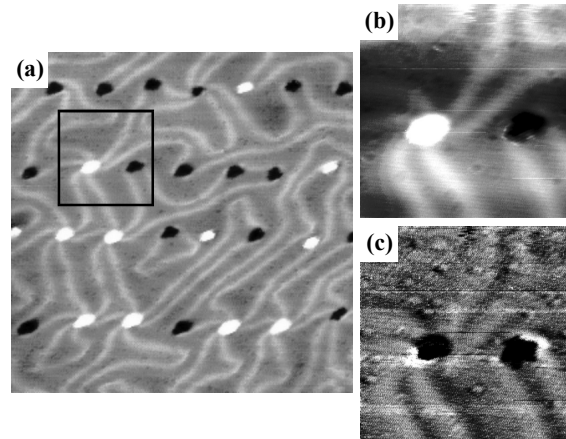


FIG. I.14: (a) Imagerie STM après le second dépôt de Co (b-c) zoom de la partie encadrée : topographie et spectroscopie STM.

4. La température est maintenue à 500 K. $(1 - \tau)$ d'Au puis τ de Co sont déposés, donnant lieu au même effet que celui décrit aux étapes 2-3. L'étape 4 est répétée un grand nombre de fois. À chaque étape le Co déposé contribue à augmenter la hauteur des plots existants de 1 PA, transformant progressivement les plots plats en colonnes.

Ce procédé a été utilisé pour faire croître des colonnes de quelques PA à plus de 15 nm. La FIG. I.13d montre le dessus d'un réseau de colonnes de hauteur 4.5 nm : la régularité est dégradée par rapport au réseau de plots plats, mais reste correcte. Nous verrons que la continuité des colonnes sera confirmée par les mesures magnétiques (paragraphe a.).

c. Mécanismes atomistiques

Des procédés d'échange atomique en surface sont rapportés couramment dans la littérature, pour les couples d'éléments miscibles [52] aussi bien qu'immiscibles [53]. Ces derniers, qui paraissent à première vue surprenants, tiennent au fait que l'immiscibilité est une notion de matériau massif, et qu'en surface des modifications de structure de bande et des effets stériques différents peuvent intervenir. Toujours pour les matériaux immiscibles, une succession d'échanges atomiques peut aboutir aussi bien à la formation d'un alliage de surface qu'à des agrégats enfouis [54], et ceci peut également dépendre de l'orientation de la surface considérée pour un couple d'éléments donné. Pour le système Co/Au(111) un recuit à 400 K induit des échanges atomiques significatifs, et l'enfouissement complet des plots est obtenu par recuit à 600 K [43]. La facilité des échanges devrait être encore augmentée lors de dépôts, les adatoms arrivant alors un par un. À cette température les atomes d'Au éjectés rejoignent probablement les marches atomiques résiduelles d'Au, conformément aux études de diffusions publiées.

Interrogeons-nous sur le mécanisme atomistique permettant l'échange. Sur les surfaces ouvertes^{I.13} il est communément admis que les échanges sont facilités par la rugosité atomique naturelle du plan atomique. Les atomes y sont plus faiblement liés, permettant des mécanismes de remplacement quasiment par glissement latéral, un peu comme deux boules de billards. En revanche la surface hexagonale est la plus compacte pour les cfc [face (111)] comme l'Au et certaines couches minces de Co, et les hcp [face (0001)] comme le Co massif. Ainsi, même si un échange est thermodynamiquement favorable, la barrière d'énergie à franchir peut empêcher le processus. En pratique, le phénomène qui permet à l'échange atomique d'avoir lieu sur des surfaces fermées est l'accumulation de contraintes, liées à la différence de paramètre de maille ou d'énergie de surface (à l'échelle atomique) entre les deux espèces [53, 55].

Des images STM de haute résolution de plots plats de Co recouverts d'un ou deux plans d'Au, donne un indice sur le facteur facilitant l'échange atomique dans notre cas (FIG. I.15). Pour l'essentiel des plots de Co, on s'aperçoit que le plot est imparfaitement recouvert, ceci aussi bien pour un que pour deux plans d'Au, permettant l'accès direct au dessus du plot par les adatoms de Co. En termes de nombre de liaisons par atome, ces trous ne seraient pas justifiés. Leur existence est à rechercher dans une énergie d'interface Co-Au importante et/ou dans les contraintes liées au paramètre de maille, de l'ordre de 14%. En particulier les plots de Co contiennent des dislocations, visibles sur le bas de la FIG. I.15. Le système Au(1-2 PA)/Co(2 PA+disloc.)/Au(bulk) est sans doute encore plus sujet aux tensions.

d. Versatilité, robustesse et limitations

Le procédé de croissance colonnaire est fondé sur la répétition d'un grand nombre de cycles. La qualité de la réplique à chaque étape doit être irréprochable pour permettre une bonne réplique verticale du réseau initial de plots plats de Co/Au(111). Citons deux facteurs, nécessaires à cette bonne qualité, et que l'on observe en pratique :

^{I.13} On appelle surface ouverte une surface cristalline présentant un plan d'atomes peu dense, c'est à dire d'indices de Miller pas les plus faibles. Citons par exemple (100) et surtout (110) pour les cfc, et (111) pour les cc.

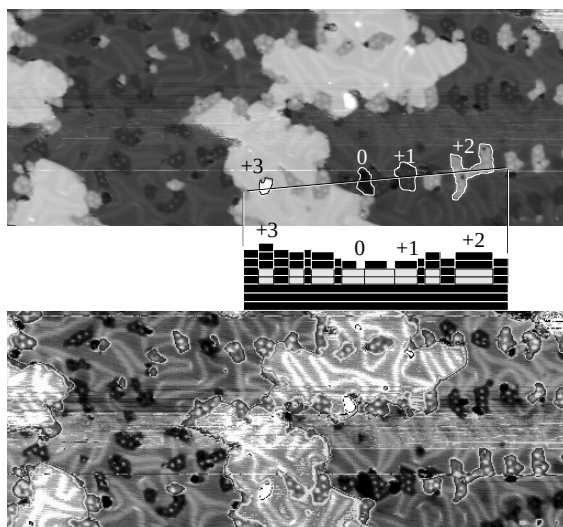


FIG. I.15: Images STM 58×150 nm de Au((2.5]PA)/ Co(0.65 PA)/ Au(111). Dans l'image du bas un contraste de gris multi-échelles a été utilisé pour mettre en lumière les détails de chaque niveau atomique. Une coupe schématique explique la structure de l'échantillon.

- Dès le premier dépôt d'Au, les reconstructions de surface sont modifiées et deviennent irrégulières (FIG. I.14a). On constate qu'au-dessus d'environ 100°C le Co ne nucléé plus sur les coudes de reconstruction^{I.14}. Si ce n'était pas le cas, à chaque étape de nouveaux plots seraient nucléés, déstabilisant à terme l'ordre du réseau.
- À chaque étape les marches atomiques de l'Au déposé sont piégées autour du dessus des colonnes (FIG. I.13d) (ceci confirme d'ailleurs que la couverture des colonnes par l'Au n'est pas très favorable). Ainsi les adatoms de Co qui atteindront une marche d'Au ne décoreront pas les marches en créant des bandes, mais par diffusion le long de la marche contribueront à faire croître des colonnes existantes.

Pour ouvrir des perspectives, discutons la versatilité du procédé. Le diamètre et la hauteur des colonnes peuvent être maîtrisés indépendamment, par le biais de la quantité de Co déposé à chaque étape d'une part, et du nombre de cycles d'autre part. L'examen des effets atomistiques suggère que le procédé devrait être transposable à d'autres couples d'éléments, pourvu qu'ils soient immiscibles et/ou présentent un fort désaccord paramétrique. Enfin la réplique verticale ne nécessite pas d'organisation latérale du réseau initial. Pour des éléments adaptés, il devrait donc être utilisable pour répliquer verticalement tout motif plat obtenu par auto-assemblage, substrat structuré [56, 57], etc.

[RÉFÉRENCES : 58–60]

3.2.3 Propriétés magnétiques des colonnes de cobalt

Les études magnétiques ont été conduites *in situ* par effet Kerr, dans un champ magnétique pouvant atteindre 0.75 T et dans la gamme de températures 60 – 300 K. Les systèmes colonnaires présentent une anisotropie essentiellement perpendiculaire. Seules les mesures par effet Kerr polaire sont présentées dans ce manuscrit.

^{I.14}En fait, un examen minutieux des images STM montre que le processus d'incorporation de quelques atomes aux coudes de la reconstructions se produit comme pour les surfaces nues d'Au(111) [48], mais c'est l'accrochage d'un plot en surface qui ne se fait plus, du fait de la température plus élevée.

a. Analyse du régime superparamagnétique

Pour les assemblées des colonnes les plus petites T_B reste inférieure à 300 K. Rappelons que la fonction de Langevin ne peut être utilisée pour ajuster des courbes superparamagnétiques de systèmes classiques que dans le cas d'une anisotropie strictement nulle. Quand l'anisotropie est non nulle il n'existe en général pas de fonction analytique pour décrire l'aimantation du système. De manière surprenante nous n'avons pas trouvé traité analytiquement dans la littérature le cas d'un champ appliqué suivant la direction de facile aimantation d'une anisotropie uniaxiale, ce qui est le cas de notre système. Nous avons pu dériver des équations exactes décrivant $M(H)$ dans ce cas (voir l'annexe 1), dont la solution asymptotique à basse température ($T \lesssim 5T_B$) est la fonction de Brillouin 1/2, et la solution asymptotique à haute température ($T \gtrsim 25T_B$) est la fonction de Langevin. Ici nous nous contentons d'ajuster la susceptibilité initiale χ des courbes d'aimantation, qui donne la même information qu'un ajustement de la courbe complète, et nous utilisons la forme asymptotique basse température, légitimée en annexe. La pente pouvant être déduite d'un ajustement polynomial sur une part significative du cycle d'aimantation, donc prenant en compte un grand nombre de points, l'incertitude expérimentale résultant de l'analyse de la pente ou bien de l'ensemble de la courbe doit être comparable. Finalement, en prenant également en compte un éventuel champ dipolaire inter-entités superparamagnétiques $H_{\text{dip.}}$, on a :

$$1/\chi = -\mu_0 H_{\text{dip.}} + \frac{k_B T}{\mu} \quad (\text{I.9})$$

où μ est le moment magnétique moyen d'une entité superparamagnétique, et $\chi = dm/d(\mu_0 H)$ est la susceptibilité calculée pour une aimantation m normalisée à 1. En ajustant entre T_B et 300 K la courbe expérimentale d'un échantillon dont on suppose d'après les études STM qu'il est constitué de colonnes de hauteur 6 nm et de diamètre 3 nm, on détermine $H_{\text{dip.}} = -42$ mT et $N = 2800$ le nombre d'atomes de Co impliqués, en supposant qu'ils portent le moment magnétique du massif (FIG. I.16b). Ces chiffres sont très proches de ceux calculés en supposant que les entités magnétiques sont effectivement des colonnes : $H_{\text{dip.}} = -32$ mT et $N = 3300$. L'analyse magnétique confirme ainsi que le procédé de dépôts alternés permet effectivement de fabriquer des colonnes, et que chaque colonne se comporte comme une entité magnétique indépendante.

b. Température de blocage

Il est possible de contrôler le diamètre et la hauteur des colonnes, donc leur volume V . L'encart de la FIG. I.16a montre la variation de T_B avec V des colonnes de divers échantillons (TAB. I.3). La FIG. I.16c rapporte les cycles d'hystérésis correspondants. T_B augmente effectivement avec V pour dépasser 300 K vers $V = 100 \text{ nm}^3$. La tendance à la saturation pour des volumes plus importants pourrait être le signe du passage d'un renversement d'aimantation cohérent à un régime de nucléation-propagation. Ajoutons enfin une note moins optimiste. La rémanence reste modérée même dans les échantillons de forte T_B (FIG. I.16a,c), et sa variation avec le volume et la géométrie des colonnes est difficile à interpréter. Ceci peut révéler tout à la fois une dégradation de la régularité des colonnes durant la croissance, de fortes distributions d'anisotropie, et une direction d'anisotropie pas exactement normale à la couche. Ces phénomènes devraient également être pris en compte dans l'interprétation de l'évolution de $T_B(V)$.

c. Cycles mineurs et interactions dipolaires

L'analyse de la dépendance thermique de $1/\chi$ au paragraphe a. a suggéré l'existence d'interactions dipolaires $H_{\text{dip.}}$ négatives, comme attendu pour un réseau planaire de (macro)spins d'Ising à aimantation perpendiculaire au plan. Bien que $H_{\text{dip.}}$ est en accord quantitatif avec la valeur attendue d'après les caractéristiques géométriques des colonnes, il est intéressant de chercher une confirmation par un autre type de mesure. En effet, dans certaines conditions l'analyse de $1/\chi$ peut faire interpréter comme

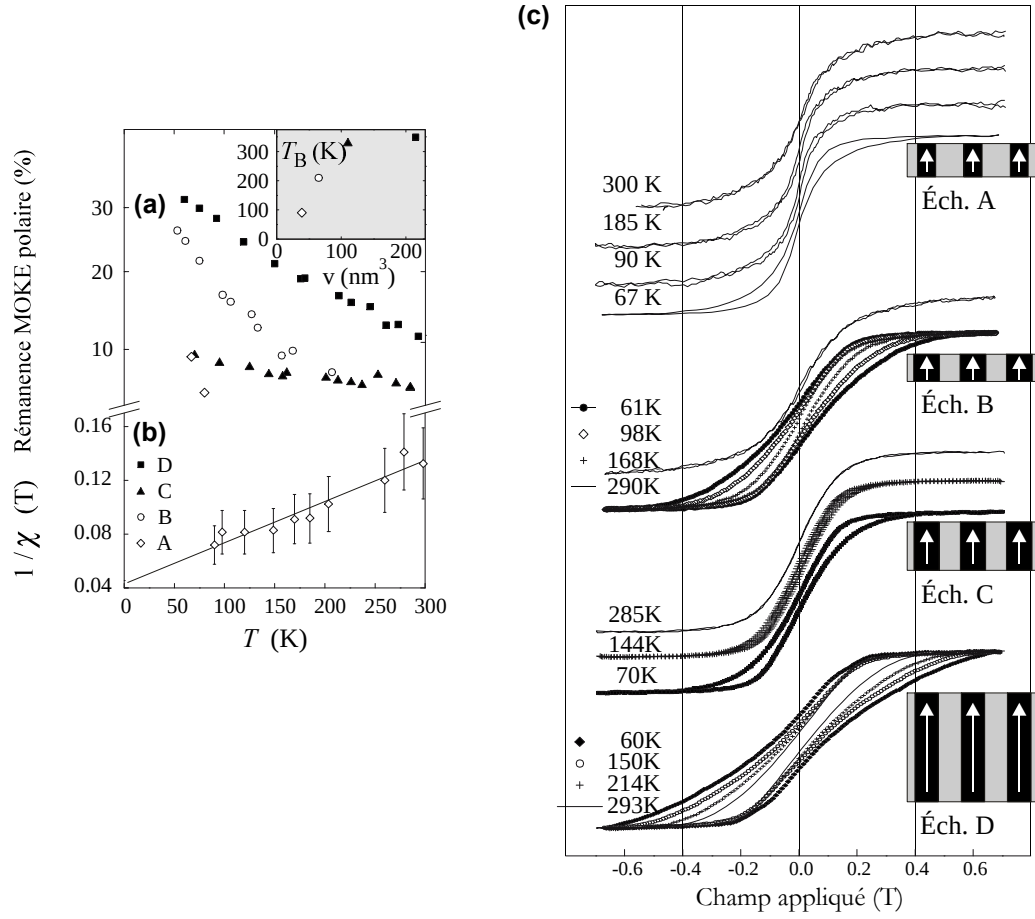


FIG. I.16: Propriétés comparées de plusieurs échantillons en colonnes (voir TAB. I.3 p.46) (a) Rémanence, et T_B en encart (b) $1/\chi$ pour l'échantillon A (c) cycles d'hystérésis, et vue schématique en coupe des colonnes.

TAB. I.3: Caractéristiques d'échantillons en colonnes, appelés A-D.

Échantillon	Diamètre (nm)	Hauteur (nm)	Volume (nm ³)	T_B (K)
A	3	5.5	40	80
B	4.3	4.5	65	210
C	4.2	8	110	300
D	3.9	18	215	350

interactions dipolaires des effets angulaires entre un axe d'anisotropie et le champ appliqué [61]. Il existe des procédures d'aimantation/désaimantation rigoureuses pour caractériser les interactions dipolaires, telles les graphes de Henkel [62], mais ces procédures sont souvent longues. Nous avons utilisé de simples cycles mineurs pour confirmer la valeur de H_{dip} . Pour des entités sans interaction, le cycle d'hystérésis de chaque entité est carré, et les cycles mineurs sont symétriques.

La FIG. I.17a présente des cycles mineurs dans le régime hystérétique. Les cycles mineurs ne sont pas symétriques : l'hystérésis du demi-cycle retour s'effectue à champ plus élevé, et ceci d'autant plus que le champ de rebroussement est faible. En d'autres termes, le renversement des premières colonnes intervient précocement, du fait de l'action démagnétisante des autres colonnes encore non renversées, alors que celui des dernières colonnes (ou lors du retour en champ pour les premières colonnes) est retardé.

Les effets démagnétisants peuvent être illustrés d'une autre manière. Considérons des systèmes dominés par des interactions dipolaires démagnétisantes, comme un plot doux à configurations à fermeture de flux (voir par exemple la partie 2). Pour ce type de système l'aimantation rémanente est nulle ou très faible. Un cycle d'hystérésis comporte des événements de nucléation à champ encore positif, puis d'annihilation à champ inverse, et est caractérisé par deux poches d'hystérésis sur les courbes $M(H)$. Pour l'échantillon à colonnes mentionné ci-dessus, la différence entre les branches aller et retour du cycle fait effectivement apparaître deux maxima symétriques, à un champ proche du H_{dip} , déjà déterminé (FIG. I.17b).

En conclusion, un ensemble de mesures de magnétométrie suggère que les réseaux de colonnes de Co/Au(111) sont le siège d'interactions dipolaires démagnétisantes. Après un processus de désaimantation adapté ces réseaux doivent présenter une amorce d'ordre antiferromagnétique dipolaire. La mise en évidence expérimentale de cet ordre reste aujourd'hui un défi à relever.

[RÉFÉRENCES : 58, 59, 63]

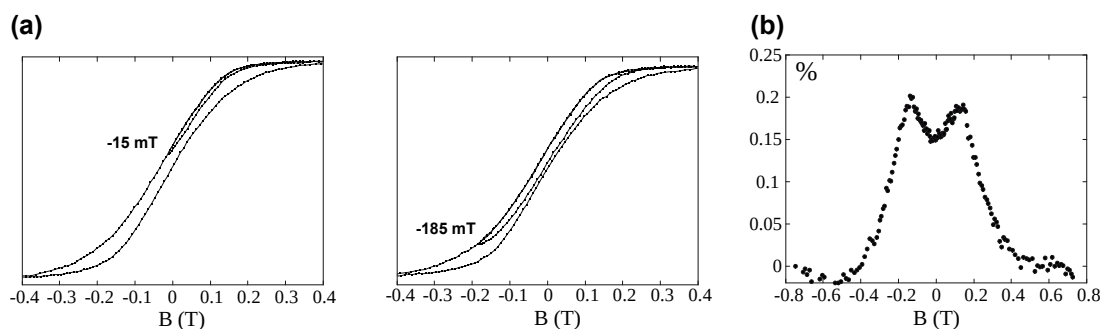


FIG. I.17: Propriétés magnétiques à 60 K de colonnes de diamètre 4.2 nm et de hauteur 8 nm (a) exemples de cycles mineurs (b) différence entre le cycle retour et le cycle aller, normalisé par l'aimantation à saturation

3.2.4 'Super'-diffraction sur les systèmes Co/Au(111)

a. Introduction

La cristallographie permet de sonder finement les matériaux à l'échelle atomique, en analysant la position, la forme et l'intensité de pics de diffraction. Les objets nanométriques sont eux plutôt caractérisés individuellement dans l'espace réel en utilisant des microscopies, notamment à sonde locale. Cependant, malgré les progrès récents et spectaculaires des microscopies, des informations restent masquées. Il est séduisant de chercher à utiliser des systèmes auto-organisés, c'est à dire présentant un ordre à moyenne

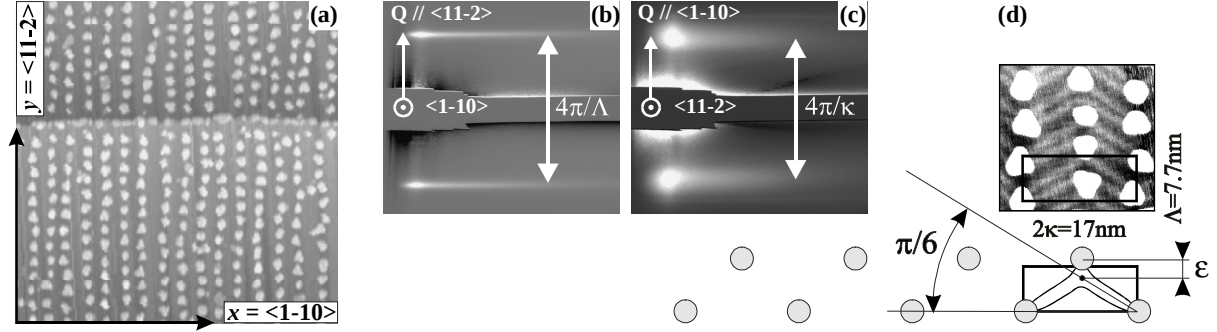


FIG. I.18: (a) Image STM $[150 \times 150]nm$ de Co/Au(111) pour $\tau = 0.4$ PA. (b-c) clichés GISAXS pour $\tau = 1$ PA, avec l'azimut du faisceau X selon $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ et $\langle 11\bar{2} \rangle$, respectivement. La surface de l'échantillon est verticale et sur la gauche des clichés (d) Illustration de la super-cellule du réseau, et des origines de rangées utilisées pour calculer F_{liq} .

voire longue distance, pour pratiquer des études de diffraction^{I.15} utilisant la période de la super-maille du réseau. Dans ce cas, l'ordre n'est pas recherché pour des propriétés physique particulières, mais utilisé comme un outil pour pouvoir appliquer les puissantes méthodes d'analyse de la cristallographie. Cette approche est récente et prometteuse pour les études structurales [56, 64], chimique [65], magnétiques [66], etc. Nous avons pour notre part réalisé les premières études de 'super'-diffraction *in situ* sous UHV et en temps réel.

b. Le GISAXS

GISAXS est l'acronyme anglais de diffusion de rayons X en incidence rasante et aux petits angles (Grazing Incidence Small Angle X-ray Scattering). L'incidence rasante est utilisée pour la sensibilité à la surface, tandis que l'aspect petits angles permet d'étudier par rayons X durs des objets de taille largement supérieure à celle des atomes. La technique en elle-même est décrite dans l'annexe 3. Pour suivre l'analyse des résultats présentés ci-après, il suffit de réaliser l'analogie existant entre le GISAXS et le RHEED, caractérisés tous deux par l'incidence rasante et les petits angles. Ils donnent donc lieu à des clichés de diffractions similaires, le RHEED révélant l'ordre atomique, tandis que le GISAXS sonde l'ordre du réseau AO.

c. Super-diffraction sur des plots auto-organisés Co/Au(111)

Les expériences ont été réalisées sur la ligne ID32 de l'ESRF, sur un dispositif expérimental spécialement conçu pour ces études, et monté sur la ligne à cette occasion.

Des clichés GISAXS ont été pris en cours de dépôt de Co/Au(111), depuis les premiers stades de nucléation en plots auto-organisés, jusqu'aux des couches continues, et ce pour divers azimuths. La FIG. I.18b-c montre deux clichés typiques, pris pour $\tau = 1$ PA. Le faisceau X a été aligné successivement suivant $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ et $\langle 11\bar{2} \rangle$, permettant de sonder respectivement l'ordre des plots au sein des rangées, et l'ordre entre ces rangées. La finesse des pics suivant l'azimut $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ ($\Delta q/q = 3\%$, Δq étant la largeur à mi-hauteur) montre que l'ordre au sein des rangées est à longue portée, et que la taille des

^{I.15}Nous parlerons dans ce manuscrit de diffraction (ou super-diffraction, par analogie avec les super-réseaux), mais ce terme est sujet à polémique dans la communauté scientifique. En effet, on parle plutôt de diffusion pour les études autour de l'origine de l'espace réciproque, même si elles révèlent des pics très fins, et de diffraction lors d'études autour de pics de diffraction atomique, prenant la forme de pics satellites.

domaines est au moins d'une trentaine de plots (la résolution expérimentale est dix fois plus faible que la largeur du pic observé). Ceci est compréhensible car l'écart entre plots au sein d'une rangée ($\Lambda \sim 7.7$ nm) est directement relié à la reconstruction primaire $N \times \sqrt{3}$ de l'Au(111) ($N \sim 23$ [46, 47]). Pour l'azimut $< 11\bar{2} >$ les pics sont bien plus larges, suggérant un ordre liquide. Une première analyse dans un modèle de désordre liquide unidimensionnel montre que la distance moyenne entre rangées est $\kappa = 8.5$ nm avec une déviation standard $\sigma_\kappa = 2.1 \pm 0.1$ nm. Le désordre suivant cette direction est attribué au fait que la distance inter-rangées est déterminée par la sur-reconstruction de l'Au(111), dite en arêtes de poisson, dont la demi-période κ selon $< 1\bar{1}0 >$ est déterminée par un équilibre énergétique plus subtil que la reconstruction principale $N \times \sqrt{3}$. Nous avons observé des raies fines et larges alternant tous les 30° d'azimut, conformément à la symétrie 3 de la surface (111), et reflétant l'existence, bien connue, de trois domaines de reconstructions tournés les uns par rapport aux autres de 120° [46, 47]. Ces informations permettent de dresser une carte qualitative de l'espace réciproque d'un réseau auto-organisé Co/Au(111) (FIG. I.19a). On trouve un accord satisfaisant entre cette carte et la transformée de Fourier (FIG. I.19b) d'images STM à grand champ (FIG. I.19c). Sur cette dernière image les trois domaines de reconstruction sont présents. L'analogie entre cette image STM et la microstructure d'un matériau vue en microscopie électronique à transmission est frappante. Elle nous fait prendre conscience de la similarité entre une approche cristallographique et notre étude, qui s'apparente à de la diffraction sur un polycristal de surface.

d. Intensité des pics expérimentaux de super-diffraction

Analysons l'intensité des pics fins, *c.à.d.* caractérisant l'ordre des plots au sein des rangées. Notons respectivement $I_1(\tau)$ et $I_2(\tau)$ les intensités des pics de premier ordre (vecteur de diffusion $q = 2\pi/\Lambda$) et de second ordre (vecteur de diffusion $2q = 4\pi/\Lambda$, hors du champ sur la FIG. I.18b). Les intensités sont celles obtenues en effectuant une coupe verticale des clichés GISAXS au niveau du pied des pics, puis en intégrant l'aire totale de chaque pic. La FIG. I.20 montre l'évolution de $I_1(\tau)$ et de l'intensité normalisée de second ordre $I_2(\tau)/I_1(\tau)$, en fonction du taux de couverture de Co τ . Pour interpréter ces courbes une modélisation analytique du réseau réciproque est proposée dans le paragraphe suivant.

e. Modélisation des intensités

La direction perpendiculaire aux rangées (resp. parallèle) est appelée x (resp. y). Avant le début de la percolation ($\tau \sim 1$ PA^{I.16}) l'amplitude diffusée par le Co peut être décomposée en trois sommes imbriquées. La première (le facteur de forme F_{plot}) somme les amplitudes de diffusion sur les atomes au sein d'un plot, une enveloppe à la variation lente, la seconde (F_{rang}) somme sur une rangée de plots parfaitement ordonnée, donnant lieu à un peigne de Dirac pour $q_y = 2\pi/\Lambda$, et la troisième (F_{liq}) somme sur les origines des rangées selon x , donnant lieu à une fonction de type liquide (FIG. I.18d). L'intensité diffusée totale est

$$I = |F_{\text{plot}}|^2 \times |F_{\text{rang}}|^2 \times |F_{\text{liq}}|^2. \quad (\text{I.10})$$

F_{plot} contribue à la variation des intensités la plus significative au cours de la croissance. En assimilant les plots à des cylindres de hauteur 2 PA, une loi géométrique de conservation du volume de Co déposé permet d'en déduire le diamètre avant coalescence : $d = \sqrt{2\Lambda\kappa\tau/\pi}$, et par transformée de Fourier :

$$|F_{\text{plot}}(\mathbf{q})|^2 = |f|^2 \frac{2\pi\Lambda\kappa\tau}{q^2} J_1^2 \left(q \sqrt{\Lambda\kappa\tau/2\pi} \right) \quad (\text{I.11})$$

^{I.16}Du fait de la hauteur bi-atomique des plots, il faudrait une quantité de Co $\tau \sim 2$ PA pour recouvrir tout le substrat. La percolation s'effectue évidemment avant la couverture totale de l'Au, et on la constate expérimentalement vers $\tau \sim 1$ PA.

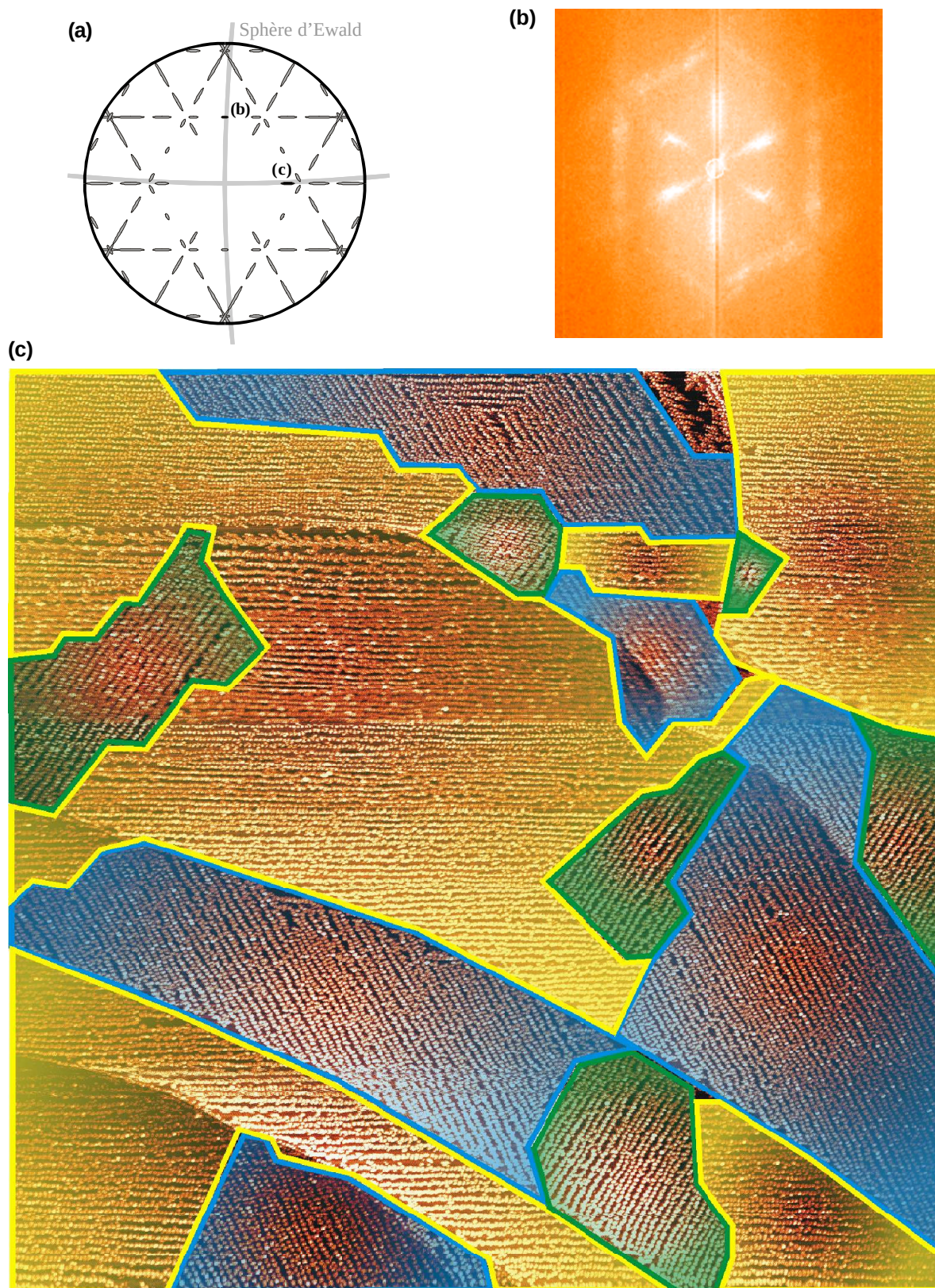


FIG. I.19: (a) schéma du réseau réciproque expérimental Co/Au(111) Les points b/ et c/ se rapportent aux clichés FIG. I.18b-c (b) Transformée de Fourier de : (c) image STM $1.5 \times 1.5 \mu\text{m}$ de plots Co/Au(111). Les trois orientations de domaines sont soulignées par trois couleurs différentes.

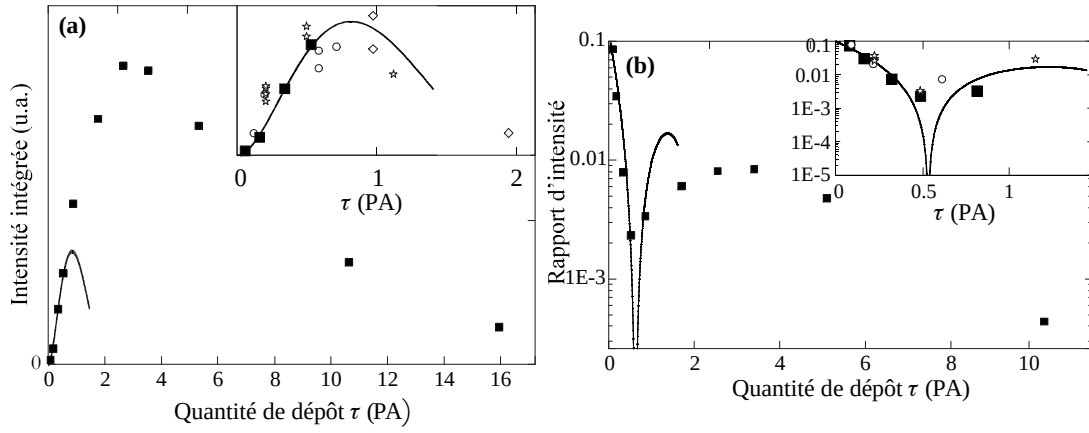


FIG. I.20: Variation de (a) $I_1(\tau)$ et (b) $I_2(\tau)/I_1(\tau)$ au cours d'un dépôt. L'évolution avant coalescence entre plots est montrée en encart. Carrés pleins : GISAXS expérimental ; trait : modélisation analytique ; symboles vides : intensité calculés à partir d'image STM (chaque symbole correspond à un groupe de croissance : Halle, Strasbourg ou Jussieu). Il n'a pas été possible de calculer $I_2(\tau)/I_1(\tau)$ pour toute la gamme d'épaisseur, car les pics de second ordre sont de très faible intensité.

Le calcul de F_{liq} est dérivé en annexe 3.2^{I.17}.

La simulation de $I_1(\tau)$ et $I_2(\tau)/I_1(\tau)$ est représentée sur la FIG. I.20. L'annulation de $I_2(\tau)/I_1(\tau)$ résulte de la coïncidence du second pic de Dirac de F_{rang} avec le premier zéro de J_1 dans F_{plot} . La courbe expérimentale $I_2(\tau)/I_1(\tau)$ présente effectivement un minimum marqué, dont la position nous permet d'ailleurs d'effectuer un affinement très précis de la calibration de τ durant les expériences. Cette calibration est très importante pour la discussion qui va suivre.

f. Défauts de percolation sondés par combinaison de GISAXS et STM

Le modèle reproduit de manière convaincante les données expérimentales avant la coalescence [~ 1 PA (encarts de FIG. I.20a-b)]. Au-delà $I_1(\tau)$ n'atteint son maximum que vers 3 PA. Or l'observation par STM d'une coalescence le long des rangées vers $\tau = 1$ PA [44] laissait présager une annulation beaucoup plus rapide. Comme le modèle de plots disjoints ne peut plus être appliqué dans cette gamme d'épaisseur, nous avons analysé des images STM. Le STM confirme la persistance d'une rugosité en rapport avec la période du réseau initial de plots (FIG. I.21). Nous avons alors utilisé de telles images pour estimer les intensités GISAXS $I_1^{STM}(\tau)$ et $I_2^{STM}(\tau)$ associées à la rugosité résiduelle. Avant la coalescence $I_1^{STM}(\tau)$ et $I_2^{STM}(\tau)/I_1^{STM}(\tau)$ sont en bon accord avec les expériences et les simulations, validant la méthode de calcul. Après la coalescence $I_1^{STM}(\tau)$ décroît rapidement pour s'annuler vers 4 PA. L'intensité GISAXS expérimentale n'étant plus explicable par la topographie, son origine doit être enterrée et invisible au STM, prenant la forme d'une microstructure périodique. Des images STM de haute résolution révèlent effectivement des depressions sur la surface entre les plots de Co, confirmant les imperfections de coalescence (FIG. I.22). La nature de ces depressions n'est pas claire, même si divers indices de la littérature plaident pour des atomes d'Au extraits du substrat [67–69]. En tout cas, l'intensité diffusée directement par les défauts de coalescence inclus *dans* la couche de Co doit être comparable à celle de plots disjoints de Co/Au(111) de taille équivalente (1-2 nm) (théorème de

^{I.17}Jouant le rôle d'un facteur de structure, F_{liq} module l'intensité des pics expérimentaux, dont l'analyse permet d'obtenir des informations sur la position des plots au sein de la super-maille du réseau. Cet aspect n'est pas développé dans le manuscrit.

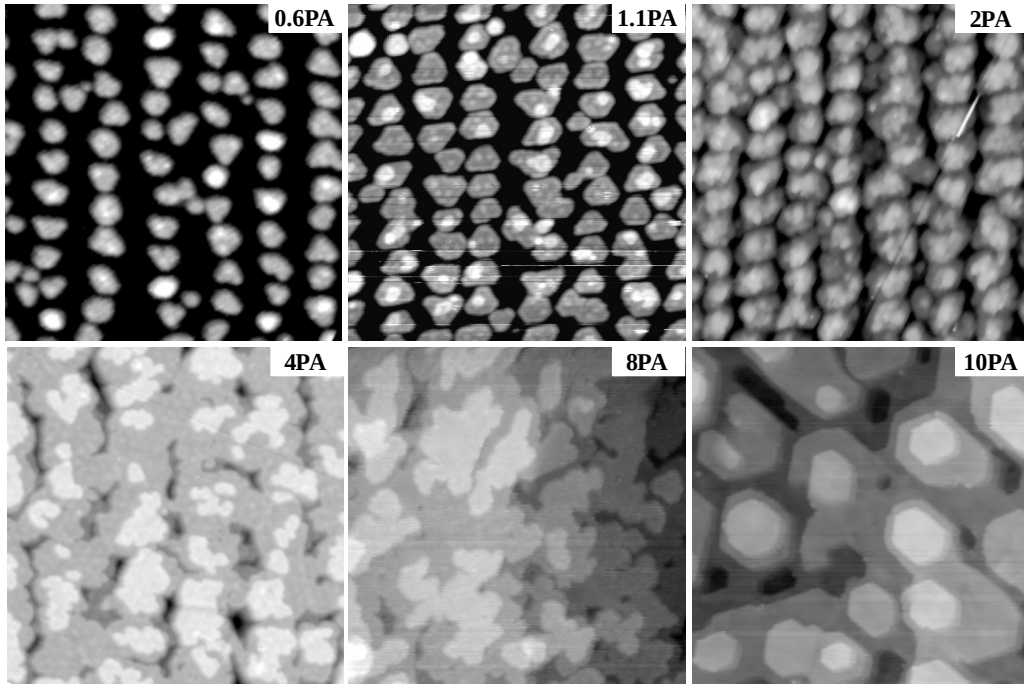


FIG. I.21: Images STM 70×70 nm de dépôts Co/Au(111) à différents taux de couverture τ . La première image provient de Halle, la troisième de Strasbourg, les autres de Jussieu.

réciprocité de Babinet), largement plus faible que celle observée expérimentalement. L'origine physique de $I_1(\tau)$ aux fortes épaisseurs est donc à rechercher ailleurs. De rapides calculs de minimisation d'énergie élastique suggèrent qu'aux fortes épaisseurs $I_1(\tau)$ est expliqué par la déformation périodique du substrat d'Au répondant à la déformation encore importante du Co à ces épaisseurs (3 – 4 %, voir [70, 71]), cette modulation périodique et les défauts aux joints de grains du Co se stabilisant mutuellement. La possibilité d'observer ces modulations par diffraction est crédible du fait de l'observation, dans d'autres systèmes expérimentaux, de pics satellites liés à la modulation périodique d'une matrice [72] ou d'un substrat [73] en réponse à une contrainte périodique de plots ou d'adsorbats.

En conclusion, l'étude du super-réseau réciproque de dépôts Co/Au(111) nous a permis de mettre à jour des détails intimes des processus de croissance, inaccessibles par des techniques telles que le STM seul. Alors que cette information a pu être obtenue en n'analysant que deux pics, et considérés selon une coupe seulement, cela permet de penser que le réseau réciproque Co/Au(111) reste largement sous-

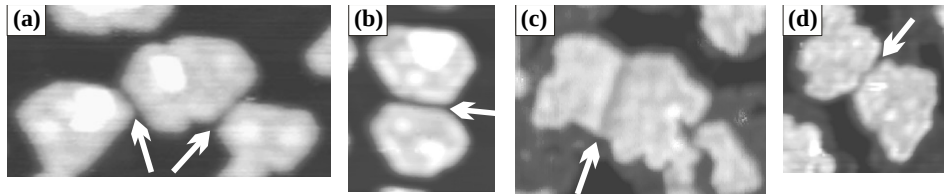


FIG. I.22: Images STM Co/Au(111) pour (a-b) 1.1 PA and (c-d) 4 PA. Les flèches montrent les joints de grain se formant entre les plots.

exploité. Une analyse cristallographique complète de cet espace réciproque, et plus généralement d'autres systèmes auto-organisés, pourrait être un outil très puissant d'étude des processus de croissance. Un couplage de cette approche à des techniques de diffusion anormale et/ou de dichroïsme étendrait encore son utilité.

[RÉFÉRENCES : 60, 74, 75]

3.3 Bandes épaisses de Fe/c.c.(110)

3.3.1 Mise en évidence d'une épaisseur métastable

Rappelons que la croissance Stranski-Krastanov de Fe/Mo(110) à $T > 300^\circ\text{C}$ s'accompagne de galettes plates et fines (7 PA), en plus des plots 3D et de la couche de mouillage (p.29). La proportion de surface recouverte par ces galettes augmente au cours du dépôt, ce qui démontre la stabilité de ces structures. Pour une croissance à 700°C (FIG. I.23) on observe même uniquement la couche de mouillage et les galettes, et l'absence de plots 3D. Pour comprendre le comportement de croissance des galettes nous avons procédé à un dépôt de Fer à température ambiante, suivi d'un recuit à 450°C . Pour $\tau < 7$ PA on observe que, outre la couche de mouillage, le Fer s'est rassemblé uniquement en galettes plates (FIG. I.24). La proportion de surface couverte par ces galettes augmente avec τ , jusqu'à l'obtention d'une couche continue quasiment parfaitement plate pour $\tau = 7$ PA. Nous en concluons que la hauteur de 7 PA est une hauteur énergétiquement favorable. Pour $\tau > 7$ PA il y a formation d'îlots 3D pour accueillir la quantité supplémentaire de Fer. On observe que les galettes sont littéralement absorbées autour de ces îlots. Nous en concluons que la hauteur de 7 PA correspond à une *hauteur métastable* pour le système Fe/Mo(110), qui peut se former au cours du dépôt, mais qui n'est pas stable vis-à-vis de la formation de plots 3D plus épais. Le comportement du système Fe/W(110) est qualitativement identique, mais conduit à des galettes de hauteur 5-6 nm.

3.3.2 Origine de l'épaisseur métastable

L'hypothèse de la formation d'un alliage à l'interface Fe/Mo peut être *a priori* éliminée pour trois raisons : 1. La diffraction de rayons X en incidence rasante montre que les galettes sont constituées de Fer avec des paramètres de maille proches de ceux du massif ; 2. une étude Auger a montré qu'il n'y a pas d'alliage de surface Fe-Mo aux températures où nous travaillons [4] ; 3. le système Fe/W(110) donne lieu au même phénomène alors qu'aucun alliage n'est observé jusqu'à la désorption thermique du Fer. Il faut donc chercher une explication intrinsèque.

Des croissance bimodales d'îlots ont été rapportées dans l'auto-assemblage de semi-conducteurs (Réf.76 et références incluses). Cependant dans les semi-conducteurs la croissance SK s'effectue dans le domaine de faible ou nulle relaxation plastique (pas de dislocations). L'aspect tridimensionnel du plot est favorisé car il permet une relaxation *élastique* (sans dislocation). Au cours de la croissance le compromis entre gain en énergie élastique volumique et coût en énergie surfacique se modifie, résultant en des formes stables appelées 'huttes' et 'dômes', dont les tailles caractéristiques sont très différentes entre elles [76]. L'existence des galettes de Fe/cc(110) ne peuvent pas être expliquées par les mêmes arguments, car du fait de leur rapport d'aspect très plat (plus de 1 : 100, voir FIG. I.23) la relaxation élastique aux facettes latérales est négligeable.

L'existence d'une épaisseur (méta)stable pour une couche mince nécessite un terme d'énergie qui croît avec l'épaisseur déposée, comme l'énergie élastique. Pour les systèmes Fe/W(110) [77, 78] et Fe/Mo(110) [5, 6] un réseau de dislocations bidimensionnel nucléé à 2 PA et permet dès 4 PA d'annuler l'essentiel du désaccord paramétrique. L'énergie élastique *résiduelle* au-delà de ces épaisseurs est donc faible, mais pas complètement nulle puisque les paramètres cristallins des couples d'éléments ne sont *a priori* pas commensurables. Nous avons postulé que la raison de l'existence d'une épaisseur métastable est une *transition du réseau de dislocations d'interface de commensurable à incommensurable*. L'arrangement commensurable

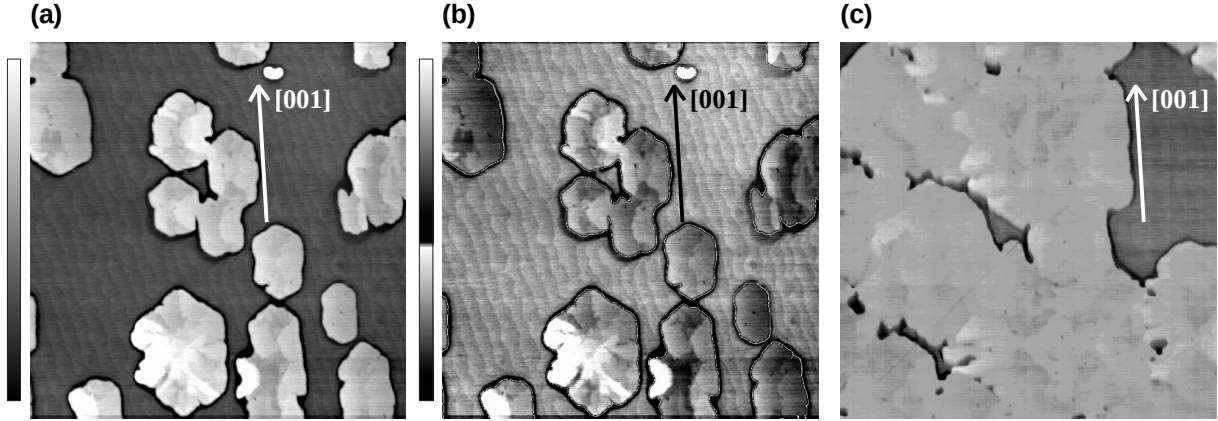


FIG. I.23: Images AFM $10 \times 10 \mu\text{m}$ d'un dépôt Fe/Mo(110) à 700°C (a) $\tau \sim 0.8 \text{ nm}$ (b) même image que a), mais avec deux niveaux de gris pour permettre la visualisation à la fois des marches atomiques du substrat, et du dessus des galettes (c) $\tau \sim 1.5 \text{ nm}$.

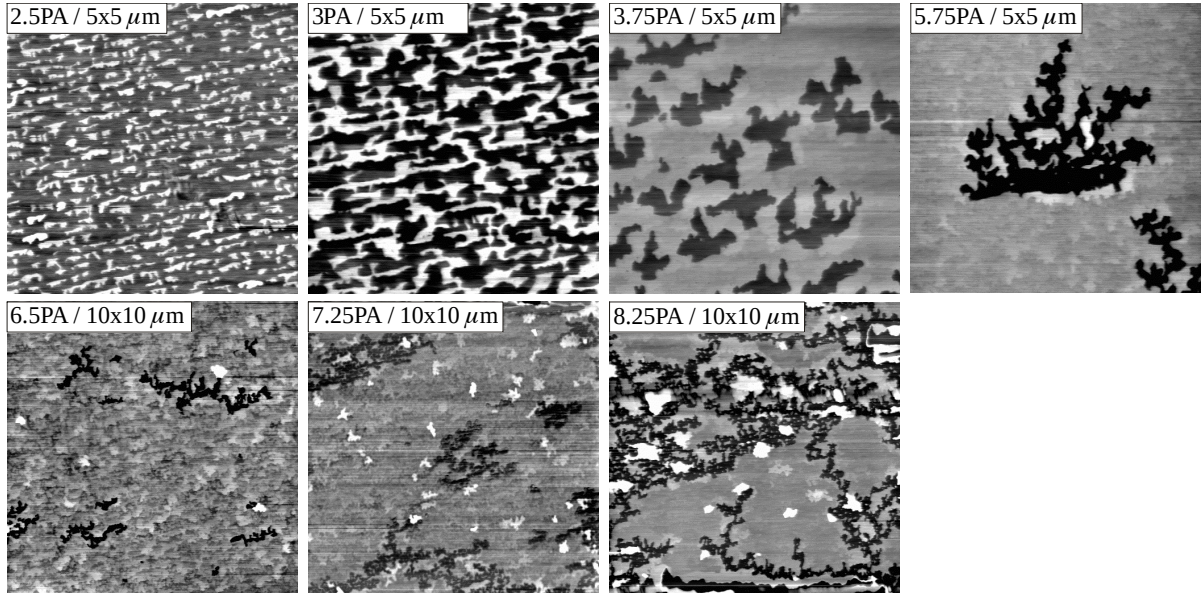


FIG. I.24: Images AFM de Fe/Mo(110) déposé à température l'ambiante et recuit à 450°C , à plusieurs stades de la croissance. Noter les différentes échelles entre les images.

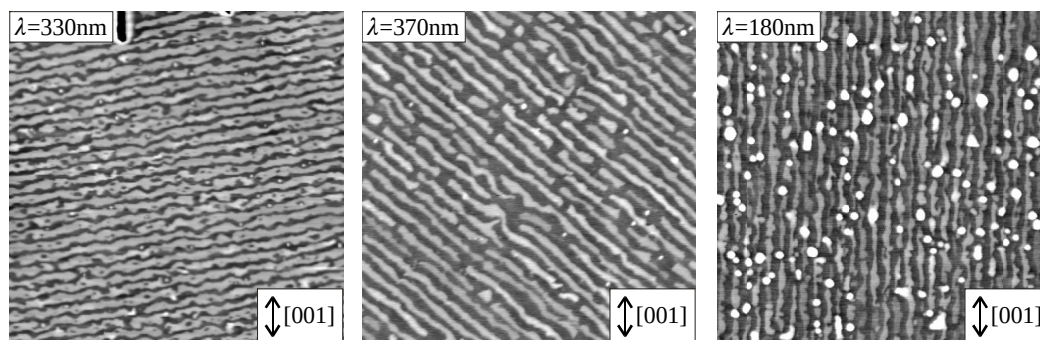


FIG. I.25: Images AFM $10 \times 10 \mu\text{m}$ de Fe/Mo(110), pour des couches tampon présentant des largeurs (λ , indiquées en encart) et des orientations de terrasse différentes. Le fer est déposé à 150°C puis recuit à 150°C .

serait le plus stable à faible épaisseur, où les interactions des deux plus proches dislocations dominant, tandis qu'un réseau incommensurable serait favorisé dans un plot épais pour permettre d'annuler au mieux l'énergie élastique dans l'essentiel du plot, l'interaction dislocation-dislocation devenant négligeable *en valeur relative*. Cette hypothèse a le mérite d'être compatible avec l'observation de valeurs d'épaisseurs critiques très différentes pour Mo et W, de paramètre cristallin pourtant très proche : $3.145 \text{ \AA}$ et $3.165 \text{ \AA}$. Des expériences sont en cours pour vérifier la validité de cette hypothèse (perspectives, p.81).

3.3.3 Mise à profit : fabrication de bandes épaisses par décoration de marches atomiques

Les galettes ont une forme plutôt isotrope dans le cas d'un dépôt à haute température. Pour un dépôt à 25°C suivi d'un recuit les galettes ont une forme allongée (FIG. I.24). Pour un dépôt à 150°C suivi d'un recuit à 450°C les structures sont les plus régulières, prenant la forme de bandes (FIG. I.25). L'orientation et la période des bandes sont identiques à celles du réseau de marches mono-atomiques présent à la surface de la couche tampon (voir partie 2.2.1). La FIG. I.26 montre des images STM de la surface de fer avant recuit. 150°C est la frontière entre la croissance rugueuse à basse température, et le développement d'instabilités SK à haute température. La croissance se fait plan atomique par plan atomique, sauf au voisinage des marches du Mo où des sillons se constituent, probablement du fait de fortes contraintes élastiques s'exprimant aux marches atomiques [55, 79, 80]. Ces sillons servent de sites de nucléation pour le démouillage lors du recuit, conduisant à des bandes lorsque la quantité de Fer est suffisante. La formation de bandes par recuit d'une couche continue avait déjà été mentionnée dans le cas Fe/W(110) [9]. Cependant les bandes obtenues étaient plus irrégulières en forme et hauteur, et n'étaient pas en rapport avec les marches atomiques du substrat ; il s'agissait d'auto-assemblage. L'orientation des bandes, selon [001], résultait de l'anisotropie cristallographique uniaxiale des surface (110). La hauteur des bandes, polydisperse et allant jusqu'à 17 nm, ne correspond pas à la hauteur métastable de 5-6 nm constatée pour le système Fe/W(110). Le paragraphe suivant souligne la différence avec notre procédé.

Certaines caractéristiques des bandes peuvent être contrôlées. L'orientation et la période du réseau sont déterminées par la vicinalité du substrat de saphir (FIG. I.25). Ces deux points sont importants si l'on veut pouvoir contrôler l'angle entre les bandes et les axes d'anisotropie magnétique, ou bien encore la force des interactions dipolaires inter-bandes. Il est possible d'obtenir des bandes de hauteur 1.5 nm et 5.5 nm, en utilisant une couche tampon respectivement de Mo ou de W. Nous verrons dans les perspectives qu'il pourrait être possible de contrôler continûment cette hauteur (voir p.86).

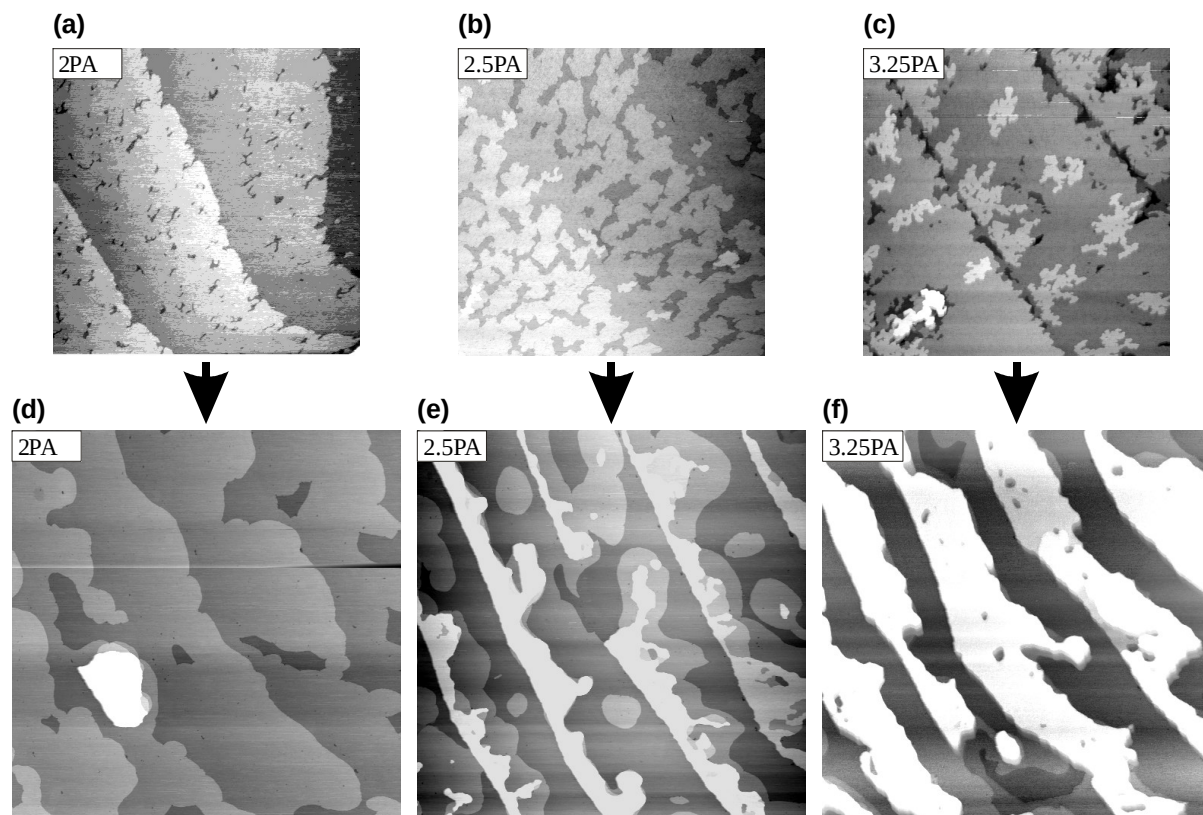


FIG. I.26: (a-c) Images STM 750×750 nm de Fe/Mo(110) après dépôt à 150°C pour 2, 2.5 et 3.25 PA (d-f) Images STM 950×950 nm d'un échantillon similaire après recuit à 450°C , échantillon recuit directement après la croissance, sans examen STM, pour ne pas influencer le recuit par d'éventuels adsorbats

3.3.4 Fonctionnalité magnétique à température ambiante des bandes de fer.

a. Introduction

L'originalité des bandes de Fe est la hauteur de plusieurs nanomètres, alors que les procédés classiques de décoration de marches atomiques conduisent à des bandes le plus souvent monocouches [35, 36, 81]. Rappelons que les bandes auto-organisées classiques ne sont pas ferromagnétiques à température ambiante [81]. *Le procédé développé permet donc de tirer parti d'effets de sciences des surfaces, tout en disposant in fine de systèmes dont les comportements s'apparentent à ceux de matériaux fonctionnels à température ambiante, du fait de leur épaisseur conséquente.*

Deux propriétés magnétiques essentielles des matériaux sont la coercitivité et la rémanence, pour les matériaux dits durs, et les structures en domaines, pour les matériaux dits doux. Ces deux caractéristiques ont été mises en évidence à température ambiante dans les bandes de fer ; elles sont présentées dans les paragraphes suivants.

b. Hystérésis et rémanence

La FIG. I.27a montre la morphologie d'un réseau de bandes Fe/W(110) de hauteur 5.5 nm, de période 300 nm et parallèles à [001]. La structure exacte de l'échantillon est $\text{Al}_2\text{O}_3 \setminus \text{Mo}(1 \text{ nm}) \setminus \text{W}(7 \text{ nm}) \setminus$

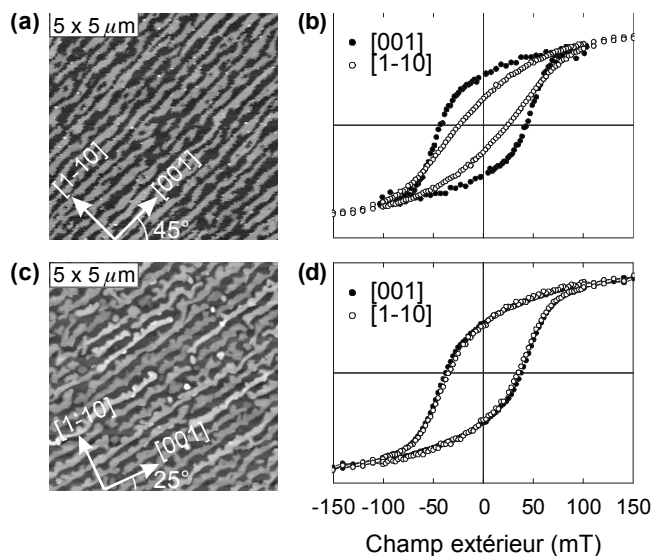


FIG. I.27: (a, resp.c) Images AFM $5 \times 5 \mu\text{m}$ de bandes de hauteur 5.5 nm (resp.c) et alignées selon [001]. La description exacte de la séquence des échantillons est indiquée dans le texte (b, resp.d) cycles d'hystérésis à 300 K effectué selon deux directions planaires.

Fe(3 nm) \ Mo(1 nm) \ Al(4 nm). La couche tampon de W est utilisée pour contrôler la hauteur des bandes ; le nanomètre de Mo inséré en début de croissance assure la croissance monocristalline du W ; le Fer est déposé à 150 °C et recuit à 450 °C ; le nanomètre de Mo de couverture joue un rôle d'interface chimique dont la contribution d'anisotropie d'interface, plus forte que celle du W, s'ajoute à celle du massif pour obtenir un axe de facile aimantation parallèle à [001], c'est à dire le long des bandes ; l'Al sert de protection à basse densité électronique pour assurer une protection contre l'oxydation tout en facilitant les études par PEEM (voir paragraphe suivant). La FIG. I.27c montre quant à elle la morphologie d'un réseau de bandes de hauteur 4.5 nm, de période 300 nm et de direction à 20 ° de [001]. Le procédé de l'échantillon est $\text{Al}_2\text{O}_3 \setminus \text{Mo}(8 \text{ nm}) \setminus \text{W}(1 \text{ nm}) \setminus \text{Fe}(2.5 \text{ nm}) \setminus \text{Mo}(1 \text{ nm}) \setminus \text{Al}(4 \text{ nm})$. Les cycles d'hystérésis réalisés à température ambiante montrent une hystérésis conséquente de 50 mT et une rémanence significative (FIG. I.27b;d). Pour FIG. I.27b la direction perpendiculaire aux bandes est magnétiquement plus difficile que la direction parallèle aux bandes. Pour FIG. I.27d les deux directions ont le même comportement. La différence de comportement magnétique entre ces deux échantillons est liée à une différence d'anisotropie, qui comprend des effets magnétocristallins, magnétoélastiques, d'interface et dipolaires. Ces effets dépendent d'une manière complexe des épaisseurs, matériaux tampon, d'interface et de couverture, et ne seront pas discutés ici.

Des mesures ont également été réalisées sur des bandes de Fe/Mo(110), de hauteur 1.5 nm. Les courbes d'aimantation quasistatiques à température ambiante n'ont pas montré d'hystérésis, sans doute du fait de l'épaisseur réduite et de la faible dimensionnalité du système (des couches continues de même épaisseur montrent une rémanence de 100%). L'hystérésis est apparue pour des cycles pratiqués à 1 kHz ou plus. Ce système est donc encore à la limite du superparamagnétisme à température ambiante.

c. Domaines magnétiques

La FIG. I.28a montre la morphologie à grande échelle de l'échantillon présenté en FIG. I.27c. Cet échantillon a subi une désaimantation quasistatique en champ alternatif décroissant, puis a été imagé à

300 K par microscopie PEEM^{I.18} à l'anneau synchrotron ELETTRA de Trieste (Italie), sur la ligne de lumière 'Nanospectroscopy'. Le faisceau est polarisé circulairement (angle d'incidence proche de 20°) et les mesures sont effectuées au seuil L_3 du Fer. Du fait de la résonance au seuil une image prise avec une polarisation donnée montre les bandes de Fer en clair par rapport au fond de W (FIG. I.28b,d). La différence normalisée d'images acquises en polarisation circulaire droite puis gauche fait apparaître une structure en domaines, caractérisée par trois types de contrastes : blanc (resp. noir) pour une aimantation parallèle à la direction du faisceau, *c.à.d.* $[1\bar{1}0]$ (resp. antiparallèle, soit $[\bar{1}10]$), et gris pour une aimantation perpendiculaire au faisceau ($[001]$ et $[00\bar{1}]$) (FIG. I.28c,e).

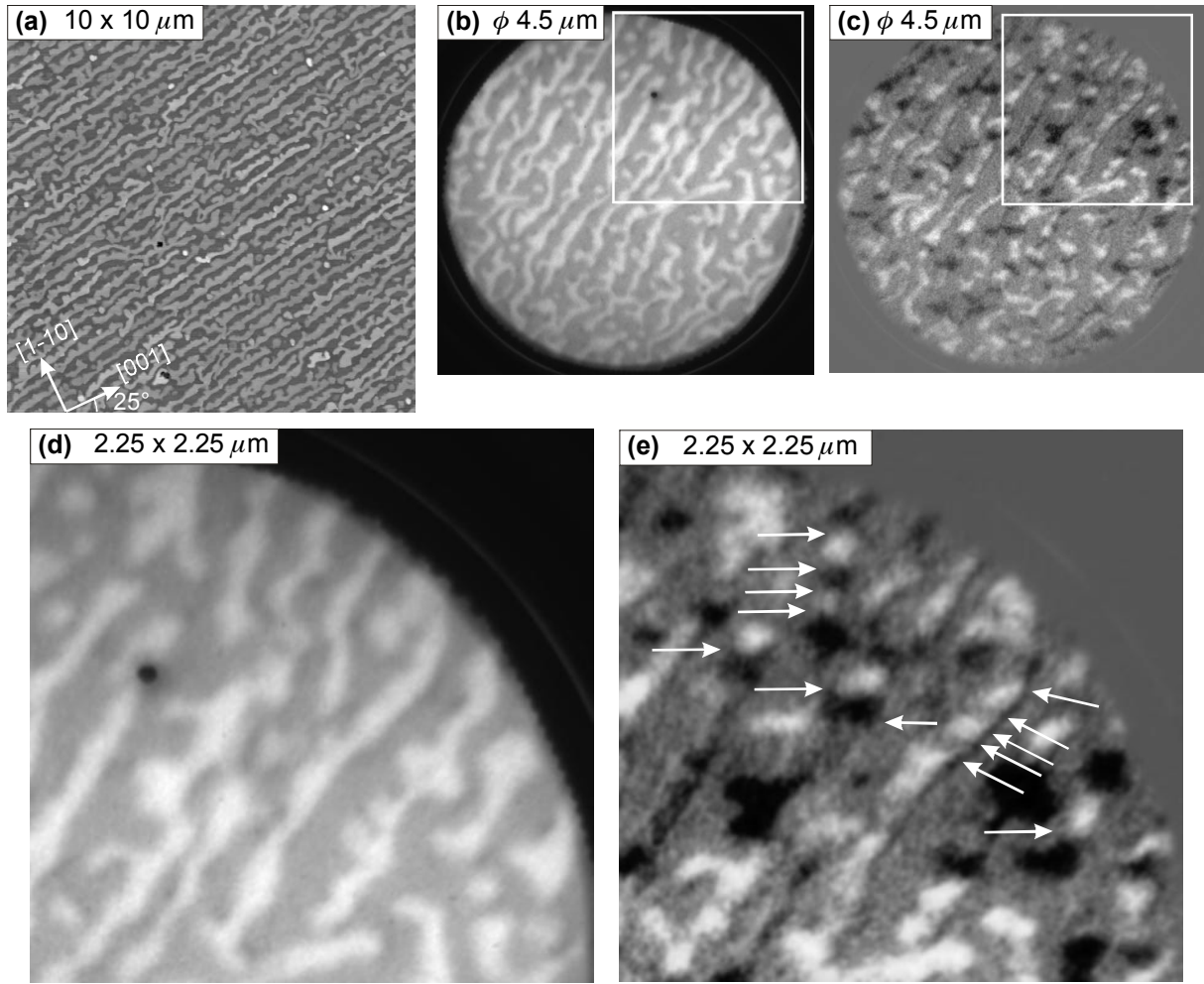


FIG. I.28: Bandes de Fe(110) de période 300 nm, de hauteur 4.5 nm, et alignées à 20° de $[001]$ (a) image AFM (b-c) en PEEM, images somme (contraste chimique) et différence (contraste magnétique) (d-e) zoom sur les zones encadrées dans b-c. Les contrastes blanc et noir codent l'aimantation perpendiculaires aux bandes; le contraste gris code l'aimantation parallèle aux bandes. Les flèches pointant vers la droite montrent des exemples de parois à 180° ; celles pointant vers la gauche montrent des exemples de parois à 90° .

^{I.18}Photo-Electron Emission Microscope

Des domaines orientés selon les deux directions planaires $\langle 001 \rangle$ et $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ sont observés, en accord avec la similarité des cycles d'hystérésis suivant ces deux directions (FIG. I.27d). La formation des domaines est favorisée par le processus de désaimantation, et influencée par les effets dipolaires liés à la forme et l'orientation locale des bandes. Dans les portions rectilignes on observe ainsi des domaines d'aimantation selon $[001]$, ou bien des domaines tête-bêche, perpendiculaires aux bandes et séparés par des parois à 180° . En revanche dans les portions inclinées d'environ 45° on observe une alternance de domaines séparés par des parois à 90° . Ces arrangements, bien connus à l'échelle micronique, permet une compensation optimale des charges de bord (charges de surface) et des charges dans les parois (charges volumiques). Prenons pour définition de la largeur de paroi la largeur de l'asymptote linéaire centrale, *c.à.d.* celle qui donne une largeur de $\pi\sqrt{A/K}$ pour une paroi dans le cas d'une anisotropie uniaxiale^{I.19}. L'analyse des images montre une largeur de paroi dans la gamme $\lambda_{90} = 40 - 60$ nm pour les parois à 90° , et $\lambda_{180} = 100 - 120$ nm pour les parois à 180° . Ces valeurs sont proches de celles attendues dans le matériau considéré. De plus, la relation $\lambda_{180} \sim 2\lambda_{90}$, relation attendue et observée, suggère que la valeur expérimentale de λ_{90} n'est pas dominée par la résolution expérimentale de l'appareil.

En conclusion, les bandes auto-organisées sont susceptibles de présenter à température ambiante les mêmes types de domaines et parois qu'un matériau conventionnel.

[RÉFÉRENCES : 63, 82, 83]

4 Micromagnétisme analytique

4.1 Introduction

Le micromagnétisme est l'étude des configurations magnétiques à l'échelle du micron. À cette échelle quatre énergies magnétiques au moins peuvent rentrer en compétition : l'énergie d'échange E_{ex} , l'énergie d'anisotropie magnétique locale E_a , l'énergie Zeeman d'interaction avec le champ extérieur E_Z , et l'énergie d'interaction dipolaire E_{dip} . Il n'existe pas de solution générale à la minimisation de l'énergie micromagnétique totale, et seulement un nombre très restreint de problèmes idéalisés ont une solution analytique. Il faut dans le cas général recourir à des approximations pour résoudre un problème. Alors que l'approche calculatoire a longtemps été le seul outil micromagnétique, la puissance des ordinateurs permet aujourd'hui de simuler des problèmes micromagnétiques pour des tailles inférieures au micron. Le calcul analytique doit néanmoins continuer de décrire les situations simples, que l'on pourrait qualifier de 'pures'. De son côté, seule la simulation peut décrire les situations complexes. Cependant ses résultats ne prendront leur maximum de signification que s'ils sont comparés aux situations 'pures' du calcul analytique, en particulier pour déterminer si le comportement du système est réellement 'complexe', ou bien si des ingrédients très simples permettent d'en rendre compte.

Le développement d'un modèle analytique de renversement de l'aimantation répond à des résultats expérimentaux qui posaient un problème d'interprétation : une loi de retournement angulaire proche de l'astroïde de Stoner-Wohlfarth avait été observée dans des plots ultra-minces sub-microniques lithographiés [84, 85]. Pourtant le renversement ne semblait pas pouvoir procéder de manière cohérente puisque d'une part la taille latérale des plots était très grande devant toutes les longueurs magnétiques caractéristiques, et d'autre part les volumes de nucléation déterminés par traînage magnétique étaient bien

^{I.19}Le calcul de cette expression est un problème standard pour les matériaux magnétiques dits durs. Cette expression est dérivée dans le cas d'école où l'énergie dipolaire est négligée. C'est le cas des parois de Bloch à 180° dans les matériaux massifs, où l'aimantation tourne autour de l'axe perpendiculaire au plan de la paroi, et c'est pourquoi cette longueur est souvent appelée largeur de paroi de Bloch λ_{Bl} . Cependant dans les couches très minces comme considérées ici, les parois sont de type Néel, l'aimantation restant toujours dans le plan de la couche. Néanmoins dans la limite des couches ultraminces l'énergie dipolaire devient à nouveau négligeable car l'essentiel du flux magnétique se boucle hors de la couche (voir partie 4.2 p.60). Ainsi pour une même constante d'anisotropie K le profil de l'aimantation est identique dans une paroi de Bloch et dans une paroi de Néel d'une couche très mince.

plus petits que le plot [86]. Depuis nous avons développé l'activité de croissance auto-assemblée, et le modèle a été étendu à de nouvelles géométries pour pouvoir à l'avenir décrire leur comportement.

Ce manuscrit se contente de décrire les fondements et les résultats du modèle de manière pédagogique, en omettant les détails de calculs. Ceux-ci peuvent être trouvés dans les articles publiés [25, 85].

4.2 Principe du modèle

Pour décrire le renversement de l'aimantation dans des plots ultraminces (épaisseur $T < 5$ nm) à anisotropie uniaxiale planaire, et par un champ extérieur appliqué le long de la direction d'anisotropie, trois simplifications sont introduites :

1. du fait de la faible épaisseur l'aimantation reste dans le plan de la couche, et est uniforme dans l'épaisseur.
2. *dans les systèmes 2D les champs dipolaires H_d sont à courte portée.* Dans des plots plats, minces et uniformément aimantés, H_d est fortement non uniforme et ne prend des valeurs significativement non nulles que proche des bords. C'est donc le bord qui est le siège de la nucléation, et qu'il convient de décrire. Dans le but de décrire des plots essentiellement carrés nous simplifions la géométrie du problème à un plot semi-infini, dont le bord est perpendiculaire à la direction de facile aimantation, avec une symétrie de translation parallèlement au bord (FIG. I.29).
3. puisque H_d est non négligeable seulement très près du bord, l'effet démagnétisant est pris en compte sous forme d'un couple ponctuel appliqué exactement au bord, et H_d est considéré comme nul dans le reste du plot. Seules les charges magnétiques de surface sont prises en compte pour l'estimation du couple démagnétisant ; les charges de volume sont négligées. Cette troisième simplification enlève l'obstacle de la non-localité des équations, et permet la résolution.

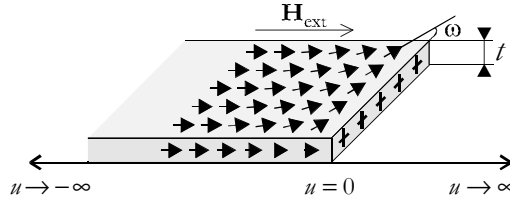


FIG. I.29: Schéma de la géométrie du modèle micromagnétique

À l'issue de ces simplifications il ne reste à déterminer qu'une fonction, l'angle planaire $\omega(u)$ que fait l'aimantation par rapport à l'axe de facile aimantation, en fonction de la distance au bord u comptée négativement à partir du bord (FIG. I.29). Utilisons les variables réduites $e = E/K$ pour les énergies, $h = \mu_0 M_s H / (2K)$ pour les champs magnétiques, et $l = L\sqrt{K/A}$ pour les longueurs, où K est la constante d'anisotropie uniaxiale planaire exprimée par unité de volume, et A la constante d'échange. t est ainsi l'épaisseur réduite du plot. Dans ce système d'unités le champ de renversement cohérent de l'aimantation vaut $h = -1$.

La résolution procède comme suit :

- l'angle $\omega_0 = \omega(u = 0)$ est fixé à une valeur *a priori*.
- le profil de l'aimantation $\omega(u)$ dans le plot est déterminé analytiquement en ne prenant en compte que E_a , E_z et E_{ex} (équation de minimisation d'Euler, exprimée dans le volume du plot). Ce profil dépend de ω_0 , qui impose la condition aux limites.
- connaissant la charge de surface $\cos(\omega_0)$, on calcule le champ dipolaire $h_d(u)$ en tout point du plot, champ qui dépend également de ω_0 .

- le couple démagnétisant total peut alors être calculé : $\Gamma_d(\omega_0) = \int_{-\infty}^0 \mathbf{m}(u) \times \mathbf{h}_d(u) du$.
- la condition de Brown est appliquée, exprimant l'équilibre du spin en bord de plot sous les effets conjugués de l'échange et du couple démagnétisant (équation de minimisation d'Euler en surface) : $\Gamma_d(\omega_0) + \Gamma_{ex}(\omega_0) = 0$. Cette équation permet la détermination auto-cohérente des solutions d'équilibre, stables et instables, du problème.

Pour permettre une résolution analytique, la condition de Brown est finalement développée au cinquième ordre, et du fait de la symétrie dans le plan par rapport à la normale au bord, le développement ne contient que des termes en ω_0 , ω_0^3 et ω_0^5 . Ainsi, *outre la solution d'aimantation uniforme* $\omega \equiv 0$, nous pouvons nous ramener à une fonctionnelle de Landau :

$$A \left(\frac{\omega_0}{2} \right)^4 + B \left(\frac{\omega_0}{2} \right)^2 + C = 0 \quad (\text{I.12})$$

4.3 Estimation du domaine de validité

Dans ce paragraphe les trois simplifications introduites au paragraphe précédent sont réexaminées. Leur validité est traduite sous forme d'inégalités, qui vont déterminer le domaine de validité approximatif du modèle.

Pour satisfaire le point 1 la direction de l'aimantation ne doit pas pouvoir varier significativement sur la distance t , selon l'épaisseur du plot. Celle-ci doit donc être raisonnablement inférieure aux distances magnétiques caractéristiques que sont la largeur de paroi λ_{Bl} et la longueur d'échange λ_{ex} . Deux conditions à satisfaire sont donc $t \lesssim \sqrt{A/K}$ et $t \lesssim \sqrt{2A/\mu_0 M_s^2}$ ^{I.20}.

Pour satisfaire le point 2 la longueur du bord siège de la nucléation doit être significative devant λ_{Bl} et λ_{ex} .

Le point 3 comporte deux aspects. La simplification du couple démagnétisant localisé requiert que le volume de nucléation, schématisé par une portion de paroi, soit grand devant la zone où le champ démagnétisant lié aux charges de bord est significatif. La condition est donc $\sqrt{A/K} \gtrsim t$, identique à celle déjà exhibée plus haut. Le second aspect est la non prise en compte des charges de volume, et donc que la forme du volume de nucléation est identique à celle d'une portion de paroi déterminée par A , K et H seuls^{I.21}. Il faut donc que le champ d'anisotropie $2K/\mu_0 M_s$ soit en tout point significatif devant le champ démagnétisant H_d lié aux charges de volume. Deux estimations de H_d sont proposées, la première un peu trop restrictive (hypothèse pessimiste), la seconde un peu trop lâche (hypothèse optimiste).

La densité de charge magnétique de volume est $\text{div}(\mathbf{M}_S) \sim M_s \sqrt{K/A}$. La portée des interactions n'est significative que sur une distance de l'ordre de t , si bien que le champ dipolaire ressenti est proche de celui généré par un volume de taille $t \times t$ en coupe (un cylindre à case carré, couché dans le plan), soit $H_d \sim M_s t \sqrt{K/A}$ (FIG. I.30). Le critère de validité $H_d \lesssim 2K/\mu_0 M_s$ s'écrit alors $K \gtrsim \mu_0 M_s^2 (t/\lambda_{ex})^2$, soit $t \lesssim \lambda_{ex} \sqrt{Q}$, où $Q = 2A/(\mu_0 M_s^2)$ est le facteur de qualité. Cette estimation est pessimiste car elle surestime sans doute la valeur de H_d . En effet, ce que l'on vient de calculer est H_d généré en un point P par une moitié (droite pour fixer les idées, soit l'élément $i+1$ sur la FIG. I.30) de la paroi. En réalité ce champ est partiellement compensé par un champ opposé issu de la moitié gauche de la paroi (élément i). Ainsi, ce n'est pas $\text{div}(\mathbf{M}_S)$ qu'il faut considérer, mais sa variation sur une distance t , soit $M_s \frac{\partial^2 \omega}{\partial x^2} t \sim M_s t (K/A)$.

^{I.20} La largeur de paroi est usuellement définie comme $\lambda_{Bl} = \pi \sqrt{A/K}$, voir note I.19 p.59. Cette longueur correspond à la largeur d'une paroi à 180° schématisée par ses asymptotes. La longueur d'échange est définie usuellement comme $\lambda_{ex} = \sqrt{2A/\mu_0 M_s^2}$, l'énergie dipolaire $\frac{1}{2} \mu_0 M_s^2$ remplaçant l'énergie d'anisotropie K . La différence d'un facteur π entre les deux définitions est une convention, et ne revêt par de signification physique particulière. La meilleure illustration est que le diamètre d'un vortex, permettant une rotation de l'aimantation de 180° en équilibrant les énergies démagnétisante et d'échange, est d'environ $3\lambda_{ex}$, soit proche de $\pi\lambda_{ex}$. [18]. Dans le texte on considère qu'une grandeur est 'significative' devant une autre quand leur rapport excède environ 3.

^{I.21} Tout comme pour la première partie de la simplification, on oublie dans la suite la dépendance de H afin de déterminer une inégalité simplifiée

Alors $H_d \sim M_s t^2 (K/A)$. Le critère de validité s'écrit alors $t \lesssim \lambda_{\text{ex.}}$, soit un critère déjà formulé pour le point 1.

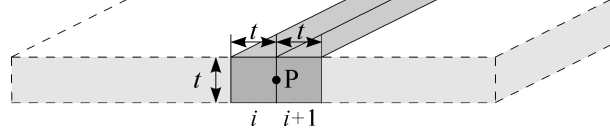


FIG. I.30: Illustration des portions de volume de nucléation prises en compte pour estimer les champs dipolaires internes (vue du plot en coupe).

En résumé, les conditions d'applicabilité du modèle sont que les bords ont une longueur significative devant la largeur de paroi $\lambda_{\text{Bl.}} = \pi \sqrt{A/K}$ et la longueur d'échange $\lambda_{\text{ex.}} = \sqrt{2A/\mu_0 M_s^2}$, et que l'épaisseur t soit elle inférieure à $\sqrt{A/K}$ et $\lambda_{\text{ex.}}$. Dans le cas de matériaux très doux, la dernière condition pourrait ne pas être assez restrictive, et $t \lesssim \lambda_{\text{ex.}} \sqrt{Q}$ peut être considérée comme une borne supérieure sûre (surestimée), où $Q = 2K/(\mu_0 M_s^2)$ est le facteur de qualité. En tous les cas, pour une valeur d'anisotropie non strictement nulle quelconque, le modèle est toujours applicable, pourvu que l'on considère une épaisseur suffisamment faible.

4.4 Résultats

À des valeurs opposées $\pm \omega_0$ correspondent deux configurations d'aimantation équivalentes, car symétriques par rapport à la normale au bord de plot. Il est donc suffisant de ne considérer qu'une seule de ces configurations. Arbitrairement, dans ce qui suit ω_0 est supposé positif.

Les valeurs prises par les variables A , B et C de l'équation I.12 dépendent du champ appliqué h . Suivant leurs valeurs, trois cas de figure sont rencontrés (FIG. I.31a) :

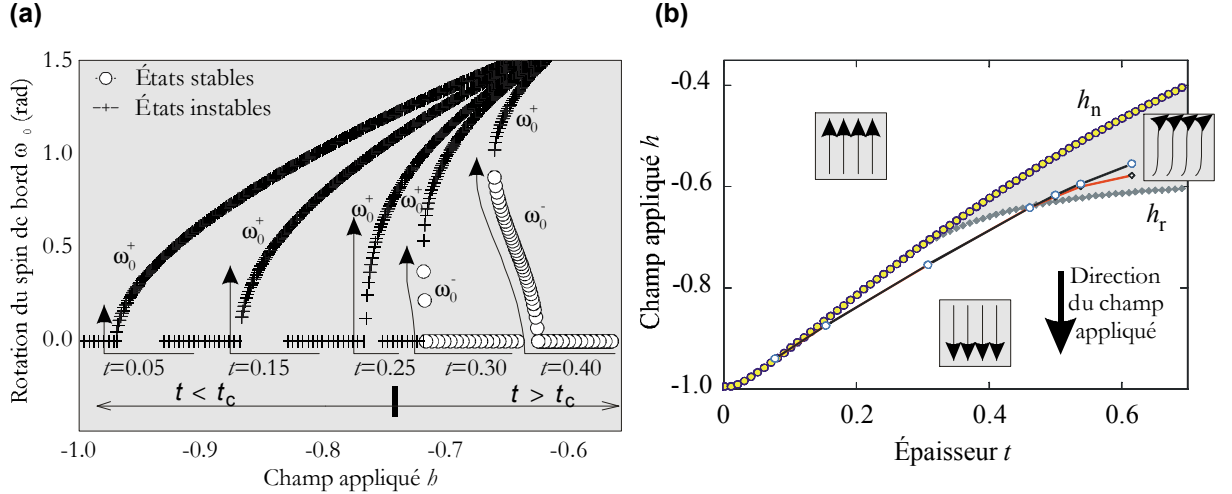


FIG. I.31: (a) Diagramme des états stables (o) et instables (+) dans le plan (h, ω_0) , calculés pour $m = 2.81$ (b) Diagramme des états prédits par le modèle, dans le plan (t, h) ; la zone d'aimantation non-uniforme est grisée, et délimitée par les champs de nucléation (disques) et de renversement (losanges). Les courbes portant des symboles plus espacés correspondent à la la simulation numérique.

1. Il existe trois solutions $\omega_0 = 0$, $\omega_0^- > 0$ et $\omega_0^+ > \omega_0^-$, qui sont respectivement instable, stable et instable. L'aimantation est non-uniforme près du bord, formant un volume de nucléation^{I.22}. Le renversement d'effectue pour la disparition de l'état stable, *c.à.d.* lorsque $\omega_0^+ = \omega_0^-$.
2. Il existe deux solutions $\omega_0 = 0$ et $\omega_0^+ > 0$, respectivement stable et instable. L'aimantation est strictement uniforme. Le renversement peut s'effectuer pour la disparition de l'état stable, soit pour $\omega_0^+ = 0$.
3. Il n'existe qu'une seule solution $\omega_0 = 0$, qui est instable. Le renversement a déjà eu lieu.

Le traitement numérique de ces trois cas permet de dresser un diagramme des configurations stables dans le plot, dont les frontières représentent les champs de nucléation h_n et de renversement h_r (FIG. I.31b). 'Nucléation' revêt ici son sens micromagnétique, c'est à dire le champ pour lequel on observe la première déviation à l'état strictement uniformément aimanté. À champ nul l'état du plot est strictement uniformément aimanté jusqu'au bord, contrastant avec les états de type 'S' ou 'C' observés pour les plots doux [31]. Pour les très faibles épaisseurs le renversement se fait sans étape de nucléation, directement de l'aimantation uniformément positive à l'aimantation uniformément négative en ce qui concerne les configurations statiques. Pour les épaisseurs plus importantes, typiquement $t > 0.25$, il existe une gamme de champ où l'aimantation devient non-uniforme près du bord du plot avant le renversement, et l'on peut définir un champ h_n distinct du champ h_r .

Le champ h_r prédit par le modèle est proche du champ de Stoner-Wohlfarth $h = -1$, et ce d'autant plus que l'épaisseur est faible, pour atteindre la limite mathématique $h_r(t = 0) = -1$. L'accord avec les expériences est bon et le modèle permet de réconcilier les observations expérimentales qui paraissaient contradictoires : le renversement n'est pas cohérent et s'effectue par nucléation d'un volume non-uniformément aimanté près d'un bord ; ceci concorde avec la détermination des faibles volumes de nucléation par traînage. La valeur élevée du champ de renversement est expliquée par le fait que h_d , moyenné sur le volume de nucléation, reste faible du fait de la faible épaisseur ; ainsi h_r , déterminé au niveau du volume de nucléation, est peu différent de celui déterminé seulement par l'anisotropie et le Zeeman seuls, *c.à.d.* le champ de SW. En d'autres termes, *le renversement est non-cohérent à l'échelle du plot entier, mais h_r est proche de celui de SW car les conditions dans le volume de nucléation sont proches de celles de la théorie de SW.* Le modèle donne une estimation d'autres phénomènes tels que les barrières d'énergie à franchir en présence d'activation thermique ; ces aspects ne sont pas abordés dans ce manuscrit.

Une loi d'échelle polynomiale approchée a été mise en évidence, qui reproduit les prédictions du modèle à quelques pour-cents près dans le domaine de validité du modèle (voir partie 4.3). En unité SI on a :

$$1 - \left| \frac{H_r}{H_a} \right| \simeq 0.0873 \left(\sqrt{\frac{\mu_0 M_s^2}{A}} \right)^{7/2} \left(\frac{A}{K} \right) T^{3/2} \times \left(1 - 0.596 T \sqrt{\frac{\mu_0 M_s^2}{A}} \right) \quad (\text{I.13})$$

Rappelons que T représente l'épaisseur du plot.

4.5 Liens entre modélisation et simulation

Les deux simplifications fondamentales du modèle sont la concentration de tous les effets démagnétisants en bord de plot (hypothèse du couple) et la géométrie semi-infinie avec symétrie de translation (hypothèse géométrique). L'avantage de la simulation numérique est de pouvoir tester l'effet de ces deux simplifications séparément. Dans un premier temps le renversement a été simulé dans une bande suffisamment large pour paraître semi-infinie vue du bord, avec symétrie de translation parallèlement au bord, pour tester l'hypothèse de couple de bord. Les simulations reproduisent le diagramme des états stables, avec un bon accord quantitatif pour h_n et h_r (FIG. I.31b). Ceci valide d'une part le concept de couple de

^{I.22}Voir note I.6, p.34

bord, et d'autre part notre estimation du domaine de validité, puisque $\lambda_{\text{Bl}} = 1$ et $\lambda_{\text{ex}} \simeq 0.5$ pour cet exemple. Dans une seconde étape la simplification géométrique est testée en comparant les simulations d'une bande, à celles effectuées sur des carrés de taille finie (FIG. I.32a). Les deux résultats se confondent pour une taille de carré suffisante (environ 150 nm), confortant l'hypothèse émise de la prédominance de l'effet d'un bord rectiligne.

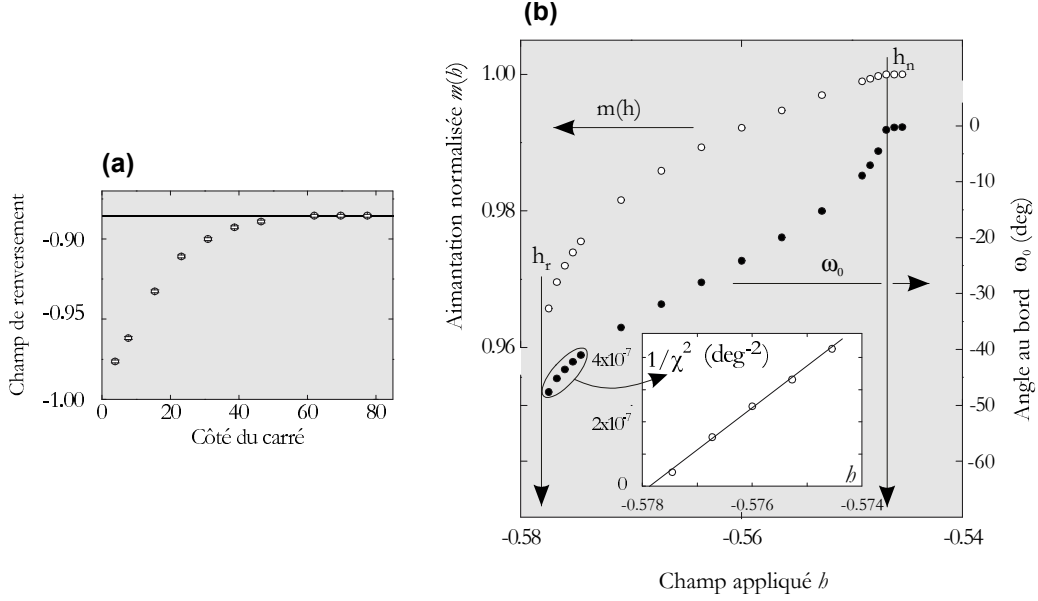


FIG. I.32: (a) simulation du champ de renversement h_r d'un carré en fonction de la longueur de son côté, pour $t = 0.15$ et $m = 2.81$. Le trait horizontal montre le h_r simulé d'une bande semi-infinie (b) Détail d'un cycle simulé $m(h)$ et de l'angle ω_0 pour un plot semi-infini (bande large). Les paramètres sont $t = 0.6$ et $m = 2.81$. En insert l'inverse de la susceptibilité carrée à l'approche du renversement

Le bon accord modèle/simulations/expériences peut paraître étonnant car le modèle est très simplificateur : il réduit la description d'un très grand nombre de degrés de liberté, tous couplés entre eux, par une loi à un seul degré de liberté, qui conduit à une fonctionnelle de Landau. Cette fonctionnelle a des signatures très particulières, en particulier l'existence d'exposants critiques $1/2$: $\omega_0 \sim (h_n - h)^{1/2}$ soit $1 - m \sim h_n - h$ proche de la nucléation, et $\omega_0 - \omega_0^r \sim (h - h_r)^{1/2}$ et $m - m_r \sim (h - h_r)^{1/2}$ à l'approche du renversement, où m_r et ω_0^r sont les valeurs de m et ω_0 extrapolées à la valeur de h_r . Les simulations numériques, qui traitent tous les degrés de liberté de manière exacte, révèlent que l'exposant critique $1/2$ est effectivement observé (FIG. I.32b). La fonctionnelle de Landau à un paramètre n'est donc pas réductrice, et peut décrire convenablement la physique de certains systèmes micromagnétiques. Cette observation est à rapprocher de méthodes utilisées empiriquement en micromagnétisme, méthodes de raffinement des valeurs de champs de renversement par des lois d'échelles [87, 88].

Un dernier point troublant concernant le modèle est le non-respect de la condition de Brown qui exprime l'équilibre d'un spin de bord à l'échelle microscopique : $\partial\omega/\partial\mathbf{n} = 0$ en bord de tout système micromagnétique. Cette condition n'est pas satisfaite dans notre modèle, puisque nous concentrons tous les effets démagnétisants sur ce spin de bord : $d\omega/du|_{u=0} = -\frac{1}{2}\Gamma_{\text{ex}} = \frac{1}{2}\Gamma_d$. L'examen de quelques modèles micromagnétiques décrivant des nanostructures (monodomaine doux [89], vortex dans disque doux [24]) révèle que la condition de Brown y est également violée, malgré un bon accord avec à la fois les simulations et les expériences. Rave *et al.* ont également évoqué une certaine notion de couple de bord, et de la validité du moyennage sur l'ensemble d'un volume de nucléation, pour décrire des comportements

globaux tels que le renversement d'aimantation [87]. Nous en concluons que *la prise en compte de la condition de Brown n'est essentielle que lorsque la description fine de la configuration proche des bords est requise, mais qu'elle n'influence pas ou peu la valeur du champ de renversement.*

[RÉFÉRENCES : 25]

4.6 Extension du modèle pour un bord incliné

Le modèle a été généralisé pour un angle quelconque β entre la direction d'anisotropie planaire et le bord du plot ($\beta = 90^\circ$ dans le modèle initial). Le champ extérieur h est toujours appliqué parallèlement à la direction d'anisotropie (FIG. I.33). L'objectif de cette extension est de décrire un ensemble plus large de situations expérimentales, tel que des bandes d'orientation quelconque, ou bien des plots non carrés dont on assimile localement l'orientation du bord à une bande semi-infinie. Notons que les configurations caractérisées par $+\omega_0$ et $-\omega_0$ ne sont maintenant plus équivalentes (voir schéma de la FIG. I.33). Néanmoins, comme précédemment seul un signe de ω_0 est à considérer, celui qui mène au champ de renversement le plus faible en valeur absolue.

La difficulté nouvelle est que le couple démagnétisant défini par $\Gamma_d(\omega_0, \beta) = \int_{-\infty}^0 \mathbf{m}(u, \beta) \times \mathbf{h}_d(u, \beta) du$, au lieu de converger rapidement comme précédemment, diverge logarithmiquement du fait de la décroissance de h_d en $1/u$ et de l'angle non nul $\pi/2 - \beta$ entre m et h_d . Il n'y a pas de contradiction physique ; c'est simplement du fait de l'hypothèse simplificatrice du couple de bord, et de la définition utilisée pour Γ_d que cette divergence apparaît. L'utilisation d'une longueur de coupure u_c dans l'intégrale ci-dessus permet de contourner ce problème. Une première méthode pour estimer la valeur de u_c physiquement pertinente à retenir, est de calculer la valeur de h_r en fonction de u_c dans le cas $\beta = 90^\circ$ où aucune divergence n'est attendue, et de noter la valeur de u_c qui permet effectivement la convergence. Une deuxième méthode est de calculer la valeur de champ h_r en fonction de u_c pour β quelconque, et de mettre en évidence un effet de saturation lente. Les deux méthodes s'accordent sur une valeur de $u_c = 5$, soit environ deux fois la largeur totale d'une paroi de profil Bloch^{I.23}. En pratique, le dépassement de cette valeur de longueur de coupure pour $\beta \neq 90^\circ$ est sans conséquence, car la divergence est très lente.

La FIG. I.33 montre les prédictions du champ de renversement en fonction de β , et pour plusieurs épaisseurs. La comparaison de ces courbes avec l'astroïde de SW est délicate car la géométrie est différente (ici h est toujours appliqué selon l'axe d'anisotropie). Un parallèle est le maximum local de h_r , observé pour un bord exactement perpendiculaire à l'axe de facile aimantation ($\beta = 90^\circ$) aux plus faibles épaisseurs, et qui présente un point de rebroussement. Une interprétation 'avec les mains' est que pour $\beta = 90^\circ$ la somme des composantes du champ local (échange, anisotropie, externe, dipolaire) est strictement parallèle à l'aimantation, alors que pour $\beta \neq 90^\circ$ elle s'en écarte progressivement du fait du champ dipolaire. Qualitativement, le minimum de h_r n'est cependant pas à 45° comme pour SW, car seule une (faible) composante de champ (la composante dipolaire) fait un angle avec l'aimantation. Les résultats sont en excellent accord avec les simulations sur toute la gamme de β (centre de la FIG. I.33).

^{I.23}Voir la note I.19 concernant la terminologie des largeurs de paroi

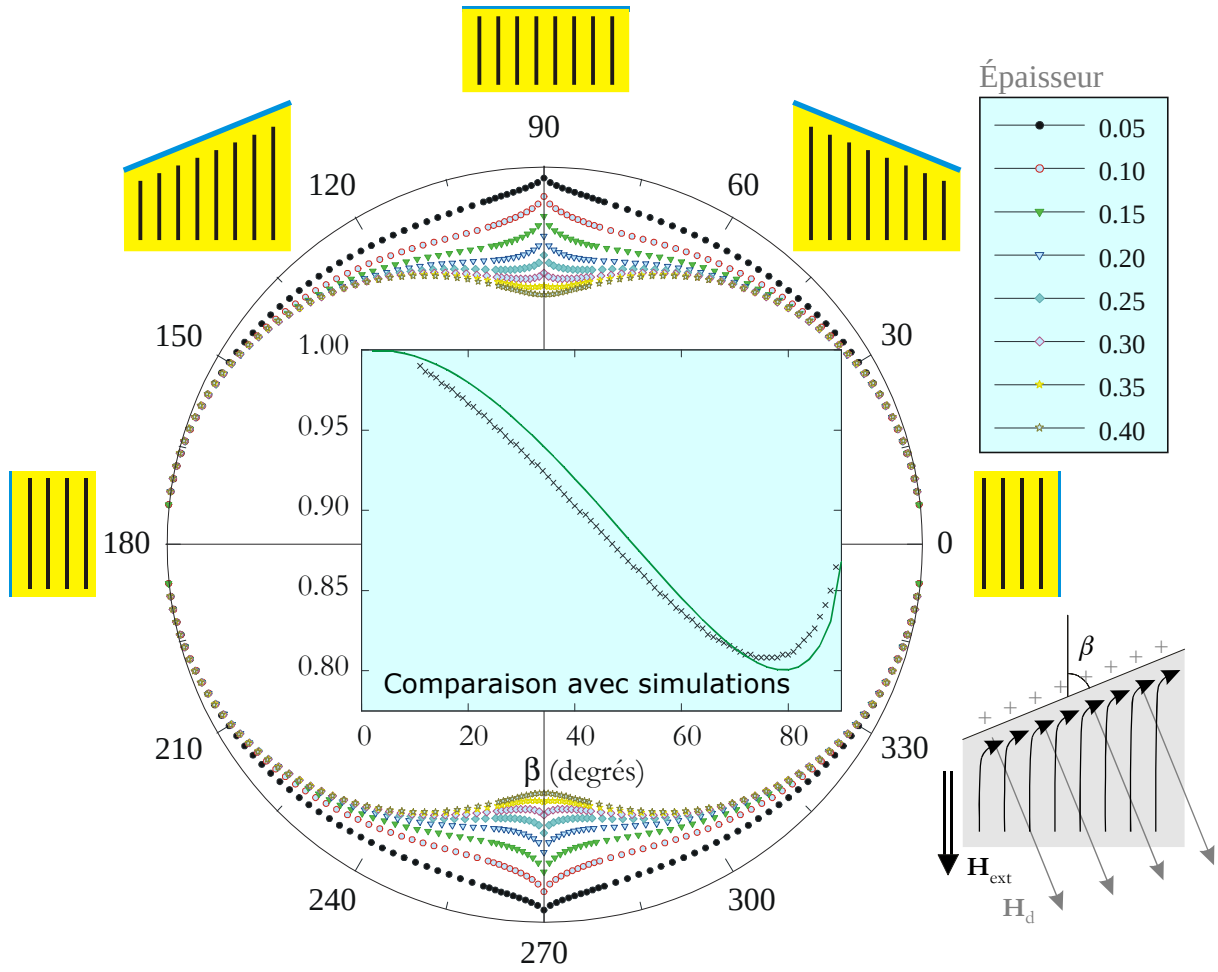


FIG. I.33: (a) valeurs du champ de renversement prédites par le modèle micromagnétique, représenté en coordonnées polaires en fonction de l'angle du bord par rapport à la direction d'anisotropie (schéma en bas à droite), et ceci pour plusieurs épaisseurs. Une comparaison avec une simulation (croix) est montrée au centre du disque, en coordonnées cartésiennes.

L'existence d'un minimum de h_r pour $\beta \neq 90^\circ$ a des implications intéressantes. Il est souvent considéré que le renversement d'aimantation est déclenché près des bords perpendiculaires à la direction d'anisotropie, que celle-ci soit d'origine magnétocristalline ou de forme [26]. Les résultats du modèle rappellent que ce qui déstabilise l'aimantation est le couple démagnétisant, et non pas directement l'intensité de h_d . Ainsi, ce couple $\mathbf{m} \times \mathbf{h}_d$ sera le plus efficace pour un angle β qui offre le meilleur compromis entre h_d fort (pour $\beta = 90^\circ$) et $\sin(\angle \mathbf{m}, \mathbf{h}_d)$ fort (pour $\beta = 0^\circ$). Le modèle prend en compte explicitement l'échange et l'anisotropie pour déterminer cet angle optimum, et le compromis n'est pas trouvé pour $\beta = 90^\circ$, sauf pour les fortes épaisseurs. L'implication de cette constatation est que l'extension du modèle permet de prédire le champ de renversement de toute nanostructure à anisotropie uniaxiale planaire cyclée dans sa direction d'anisotropie, si sa taille est suffisamment grande (quelques dizaines en unités réduites, voir FIG. I.31a). h_r sera alors le minimum des $h_r(\beta)$ calculés pour l'ensemble des orientations de bord existant pour un plot donné. Cet argument s'applique en particulier à des disques de diamètre suffisant. Il serait intéressant de corréler l'angle de plus faible h_r prédit par le modèle, au lieu d'entrée de vortex déterminé par simulation numérique.

En conclusion, *le modèle micromagnétique proposé permet entre autre de prédire le champ de renversement pour des bandes et plots minces de forme quelconque et à anisotropie uniaxiale planaire. Les conditions d'applicabilité du modèle sont que les bords ont une longueur significative devant la largeur de paroi $\lambda_{Bl} = \pi\sqrt{A/K}$ et la longueur d'échange $\lambda_{ex} = \sqrt{2A/\mu_0 M_s^2}$, typiquement une à quelques centaines de nanomètres, et que l'épaisseur soit elle inférieure à $\sqrt{A/K}$ et λ_{ex} . Dans le cas de matériaux très doux, la dernière condition pourrait ne pas être assez restrictive.*

Partie II

Annexes pédagogiques

1 Superparamagnétisme de nanoparticules : Brillouin 1/2 ou Langevin ?

1.1 Introduction

Par analogie avec le paramagnétisme, on qualifie de superparamagnétique un système portant un moment magnétique de norme $\mathcal{M} = M_s \times V$ essentiellement fixée, mais dont la direction fluctue au cours du temps d'observation t et à une température T donnée sous l'effet de l'agitation thermique. La moyenne temporelle de $\mathcal{M}_z = \mathbf{M} \cdot \mathbf{H} / H$, même dans une direction de facile aimantation, est nulle durant t . L'analyse de l'aimantation $M(H)$ d'une assemblée de particules superparamagnétiques nous informe sur leur moment $\mathcal{M}$ et éventuellement leur anisotropie. Nous discutons ici la loi qui doit être utilisée pour ajuster les courbes expérimentales.

Considérons une particule individuelle, classique, de moment $\mathcal{M}$, superparamagnétique à la température et dynamique de l'étude, possédant une anisotropie uniaxiale K , et soumise à un champ magnétique appliqué selon sa direction de facile aimantation. On utilisera les notations suivantes : $d = \beta K$, $h = \beta \mu_0 \mathcal{M} H$, avec $\beta = 1/(k_B T)$. L'enthalpie magnétique du système est $e = \beta E = -d \cos^2 \theta - h \cos \theta$, où θ est l'angle entre $\mathbf{M}$ et $\mathbf{H}$. Un argument parfois trouvé dans la littérature est qu'une particule classique est caractérisée par un continuum d'états, et donc qu'elle doit être décrite par une fonction de Langevin : $m(h) = \mathcal{L}(h) = \coth(h) - 1/h$ [90], où m est l'aimantation normalisée à 1. L'examen attentif des articles en question montre que cette approche conduit à une surestimation manifeste du moment magnétique porté par les entités superparamagnétiques [37, 38].

En réalité si T n'est guère supérieure à la température de blocage T_B , la plupart du temps la particule est soit quasiment dans un état 'up', soit quasiment dans un état 'down' (FIG. II.1a), puisque le poids statistique $\exp(-\beta E)$ des autres états est négligeable. Seules de rares fluctuations permettent de franchir la barrière d'énergie séparant les deux puits. Le système se comporte donc comme s'il était caractérisé par deux pseudo-états, $+\mathcal{M}$ et $-\mathcal{M}$. On conçoit intuitivement qu'une fonction de Brillouin 1/2 serait adaptée : $m(h) = \mathcal{B}(h) = \tanh(h)$. Cet argument est-il valable, et si oui dans quelle gamme de température ? Les paragraphes suivants répondent à cette question rigoureusement.

1.2 Dénombrement des états : du quantique au classique

Dans une description quantique les états magnétiques d'une particule sont quantifiés sur un axe z , de $-\mathcal{M}$ à $+\mathcal{M}$. Dans une description classique le vecteur aimantation est autorisé à explorer librement toutes les directions de l'espace, repérées par les angles polaires (θ, ϕ) . Comment relie-t-on les deux descriptions ?

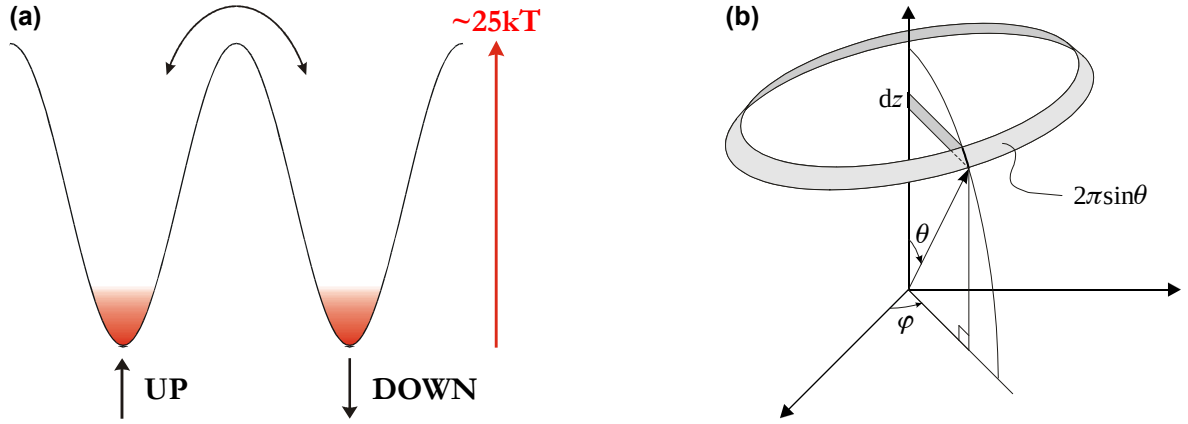


FIG. II.1: (a) superparamagnétisme en présence d'anisotropie uniaxiale (b) correspondance du dénombrement des états entre les variables z et θ .

Pour le calcul de la fonction de partition Z d'une particule classique la somme discrète peut être remplacée par une intégrale : $Z = \sum_{\mathcal{M}_z=-\mathcal{M}}^{+\mathcal{M}} \exp(-\beta E) = \frac{1}{2}(2\mathcal{M} + 1) \int_{-1}^1 \exp(-\beta E) dz$, dz étant la représentation continue d'un nombre d'états. Or, $z = \cos \theta$ et donc $dz = -\sin \theta d\theta$. En représentation sphérique $\sin \theta d\theta$ est précisément à 2π près l'élément infinitésimal de surface de la sphère unité compris entre θ et $\theta + d\theta$, c'est à dire un dénombrement des états dans une description classique (FIG. II.1b). On associe ainsi rigoureusement ces deux dénombrements, et l'on fait le lien entre descriptions quantique et classique.

1.3 Calcul analytique et comportements limites

Nous n'avons pas trouvé de résolution analytique de ce problème dans la littérature. Il en existe une à condition de considérer que la fonction erreur imaginaire $\text{Erfi}(x) = (2/\sqrt{\pi}) \int_0^x e^{t^2} dt$ est analytique^{II.1}. La fonction de partition du système s'écrit :

$$Z = (\sqrt{\pi}/2\sqrt{d}) \exp(-h^2/4d) \times \left[\text{Erfi}(\sqrt{d} + h/2\sqrt{d}) + \text{Erfi}(\sqrt{d} - h/2\sqrt{d}) \right] \quad (\text{II.1})$$

d'où il découle l'aimantation normalisée projetée suivant $\mathbf{h}$:

$$m = -h/2d + (2/\sqrt{\pi d}) \times \frac{\exp(d + h^2/4d) \sinh(h)}{\text{Erfi}(\sqrt{d} + h/2\sqrt{d}) + \text{Erfi}(\sqrt{d} - h/2\sqrt{d})} \quad (\text{II.2})$$

ainsi que la susceptibilité initiale $\chi = dm/dh$:

$$\chi = -1/2d + \exp(d)/(\sqrt{\pi d} \text{Erfi}(\sqrt{d})). \quad (\text{II.3})$$

Ces expressions sont valables dans toute la gamme de champ, et étendent les valeurs de susceptibilité initiale dérivées dans la référence 92. Dans la limite des hautes températures l'équation II.2 tend vers la fonction de Langevin $\mathcal{L}(h)$, et $\chi \sim 1/3 + 4d/45$. Dans cette limite l'agitation thermique est si grande

^{II.1}La fonction Erfi est simplement déduite de la fonction Erf avec un argument imaginaire : $\text{Erfi}(x) = -i\text{Erf}(ix)$. Elle peut être évaluée par son développement de Taylor : $\text{Erfi}(x) = (2/\sqrt{\pi}) \sum_{k=1}^{\infty} \frac{x^{2k-1}}{(2k-1)(k-1)!}$ [91].

que toutes les directions du macrospin $\mathbf{M}$ deviennent quasiment équiprobables. Dans la limite des faibles températures l'équation II.2 tend vers la fonction Brillouin 1/2, bien entendu avec la valeur du macrospin dans l'argument, et non un spin 1/2 : $m(h) \rightarrow \mathcal{B}(h) = \tanh(h)$, et $\chi \sim 1 - 1/d$. Dans cette limite le macrospin reste la plupart du temps au fond d'un des deux puits d'anisotropie.

1.4 Illustration et conséquences expérimentales

La FIG. II.2 montre $\chi(T)$. Les lois asymptotiques constituent d'excellentes approximations de la loi exacte sur toute la gamme de température. La limite 'basse température' est $T = 5T_B$, ce qui est le cas de la plupart des systèmes expérimentaux, qui peuvent donc en principe être très correctement ajustés avec une fonction de Brillouin 1/2. *Ajuster une courbe $M(H)$ dans cette gamme de température avec une fonction de Langevin conduit à une surestimation de M d'un facteur 3.*

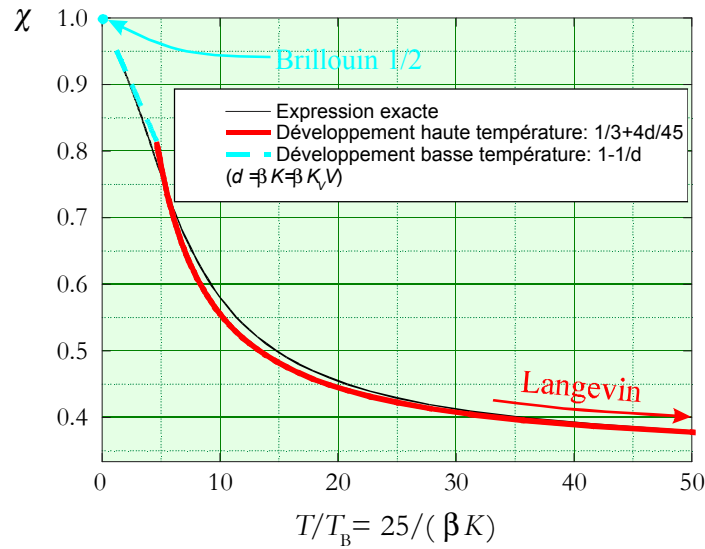


FIG. II.2: Susceptibilité initiale χ en fonction de la température.

La portée expérimentale de la FIG. II.2 prise telle quelle doit être modérée. En effet, jusqu'à présent nous avons négligé les variations thermiques de M_s et K . La susceptibilité initiale ne dépend que de K [Eq. (II.3)], qui généralement décroît avec la température^{II.2}, si bien que les susceptibilités réelles sont au-dessous de la courbe du modèle. La zone de la limite basse température est donc plus réduite expérimentalement que dans le modèle. La FIG. II.3 illustre ce point pour quelques matériaux caractérisés par une anisotropie uniaxiale essentiellement d'ordre 2. Expérimentalement, ce phénomène peut être difficile à quantifier du fait de la décroissance thermique accrue en basse dimensionnalité dans les systèmes superparamagnétiques.

[RÉFÉRENCES : 82]

^{II.2}L'anisotropie K peut rendre compte de termes microscopiques comme l'anisotropie magnéto-cristalline, comme d'effets dipolaires. Dans le cas de matériaux où l'anisotropie dipolaire est importante et où la décroissance thermique de M_s est plus rapide que celle de K , comme c'est le cas des ferrites se présentant sous forme de plaquettes avec un axe de facile aimantation perpendiculaire, on peut observer une hausse significative de K avec la température, du moins pas trop proche de T_C .

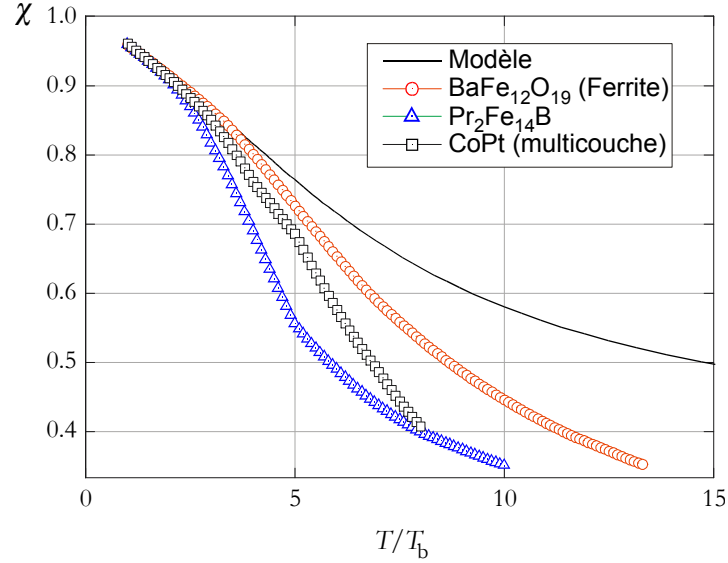


FIG. II.3: Comparaison des prédictions du calcul sans tenir compte de la variation thermique des grandeurs magnétiques (train plein), et en prenant en compte ces variations, pour trois matériaux. Une anisotropie dipolaire de forme de couches mince a été prise en compte pour la structure $[\text{Pt}(2\text{ nm})/\text{Co}(0.46\text{ nm})]_{\times 4}/\text{Pt}$, mais pas pour la ferrite, malgré la forme en général aplatie des cristaux. Les données sont tirées de [93] ($\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$), [94] ($\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$) et de [95] (PtCoPt).

2 Validité des coefficients de champ démagnétisant

Peu de temps après la première écriture de ce manuscrit, un article a été publié par M. Beleggia et M. De Graef, proposant un traitement plus rigoureux, extensif et général, du calcul des coefficients de champ démagnétisant [96]. Le contenu de la présente annexe reste cependant original en ce qui concerne la discussion des implications sur les cycles d'aimantation.

2.1 Introduction

Le modèle le plus simple de retournement de l'aimantation est la théorie de retournement cohérent de Stoner-Wohlfarth (SW) [97, 98], également utilisée par Néel [99]. Elle postule que tous les spins du système restent rigides et forment un macrospin, soumis à une anisotropie magnétique supposée uniaxiale planaire dans l'article original (généralisée depuis pour une anisotropie quelconque [100]). Une anisotropie uniaxiale peut-être d'origine magnétocristalline ou bien être un effet dipolaire de forme pour les nanoparticules, comme le rappelle le paragraphe suivant. C'est pourquoi le calcul de *coefficients de champ démagnétisant* N_i , ou *facteurs de forme*, qui quantifient le lien entre forme géométrique du système et énergie d'anisotropie dipolaire, a revêtu une grande importance, et que le calcul analytique des N_i a été effectué pour de nombreuses géométries : ellipsoïdes de révolution [101], parallélépipèdes rectangle [102], cylindres de longueur finie [103, 104] et d'éléments prismatiques [105]. Les valeurs de N_i , maintenant également calculées numériquement, sont très couramment utilisées en magnétométrie macroscopique pour corriger des courbes d'aimantation d'un effet de forme, et pour des nanostructures pour prédire la valeur de champs de renversement. Nous verrons que certaines précautions doivent être prises dans ces approches. Cette partie ne comporte que des arguments théoriques. Le paragraphe 2.7.1 p.76 peut être consulté pour un exemple expérimental de nanostructures.

2.2 Définition usuelle des coefficients de champ démagnétisant

Considérons un système uniformément aimanté, d'aimantation volumique $\mathbf{M}_s$, et intéressons-nous au champ dipolaire $\mathbf{H}_d(\mathbf{r})$ généré par cette distribution d'aimantation. Un théorème mathématique dit que $\mathbf{H}_d(\mathbf{r})$ est uniforme à l'intérieur du système magnétique si et seulement si la surface qui le délimite a une équation quadratique : en pratique des couches minces infinies (encore appelées *lames*), cylindres infinis à base ellipsoïdale, et ellipsoïdes tridimensionnels (dont les sphères). Si de plus $\mathbf{M}_s$ pointe selon une des trois directions principales i de ce volume, c'est à dire une direction de haute symétrie, alors $\mathbf{H}_d$ et $\mathbf{M}_s$ sont antiparallèles : $\mathbf{H}_d = -N_i \mathbf{M}_s$, ce qui constitue la définition des trois coefficients de champ démagnétisant. On montre également que $\sum_i N_i = 1$. La colinéarité entre $\mathbf{M}_s$ et $\mathbf{H}_d$ assure l'absence de contradiction avec l'hypothèse de l'aimantation uniforme, qui est effectivement sous l'effet d'un champ total uniforme colinéaire à $\mathbf{M}$, $\mathbf{H} + \mathbf{H}_d$.

Notons un point qui peut porter à confusion : les surfaces conduisant à un $\mathbf{H}_d$ uniforme doivent avoir une unique équation quadratique des trois coordonnées x , y et z pour l'ensemble de leur surface. Ainsi par exemple le champ démagnétisant dans un plot plat à base *ellipsoïdale dans le plan* (un cylindre plat) n'est *pas* uniforme, et montre des non-homogénéités d'autant plus fortes que le plot a un aspect aplati. Les conséquences sur le renversement d'aimantation de cette non-uniformité ont été discutées très élégamment dans le cas de matériaux doux dans la référence [26]. Elles sont discutées pour les matériaux durs dans la partie 4.

2.3 Extension de la définition des coefficients de champ démagnétisant

Dans le cas d'objets autres que lames, cylindres et ellipsoïdes, une aimantation uniforme génère un $\mathbf{H}_d$ non uniforme, rendant la définition précédente de N_i inutilisable. Il existe néanmoins une définition *mathématique* qui permet de généraliser le calcul de N_i pour une forme arbitraire, tout en maintenant $\sum_i N_i = 1$, et coïncidant avec la définition donnée ci-dessus dans le cas de lames, cylindres et ellipsoïdes. Cette définition est basée sur le calcul de l'énergie démagnétisante totale. Le champ $\mathbf{H}_d$, calculé à partir des charges de surface en supposant l'aimantation strictement uniforme, peut s'exprimer ainsi :

$$\mathbf{H}_d(\mathbf{r}') = \iint \frac{\mathbf{M}_s \cdot \mathbf{n}(\mathbf{r})}{4\pi |\mathbf{r}' - \mathbf{r}|^3} (\mathbf{r}' - \mathbf{r}) d^2\mathbf{r} \quad (\text{II.4})$$

où $\mathbf{n}(\mathbf{r})$ est la normale sortante à la surface de l'échantillon. Décomposons l'aimantation suivant ses composantes^{II.3} : $\mathbf{M}_s = M_i \mathbf{u}_i$. On a alors :

$$\mathbf{H}_d(\mathbf{r}') = \frac{M_i}{4\pi} \iint \frac{\mathbf{u}_i \cdot \mathbf{n}(\mathbf{r})}{|\mathbf{r}' - \mathbf{r}|^3} (\mathbf{r}' - \mathbf{r}) d^2\mathbf{r} \quad (\text{II.5})$$

L'énergie magnétostatique totale est $E = -\frac{1}{2}\mu_0 \int \mathbf{H}_d(\mathbf{r}') \mathbf{M}_s d^3\mathbf{r}'$, soit :

$$E = -\frac{\mu_0}{8\pi} M_i M_j \iint d^2\mathbf{r} \iint d^3\mathbf{r}' \frac{[\mathbf{u}_i \cdot \mathbf{n}(\mathbf{r})] \cdot [(\mathbf{r}' - \mathbf{r}) \cdot \mathbf{u}_j]}{|\mathbf{r}' - \mathbf{r}|^3} \quad (\text{II.6})$$

La double intégrale ne dépend que de caractéristiques géométriques du système, et des indices i et j . On peut ainsi écrire sous forme synthétique :

$$E = -\frac{1}{2}\mu_0 M_i M_j N_{ij} = -\frac{1}{2}\mu_0 {}^t\overline{\mathbf{M}} \cdot \overline{\overline{\mathbf{N}}} \cdot \overline{\mathbf{M}} \quad (\text{II.7})$$

^{II.3}pour alléger l'écriture, nous utilisons la notation d'Einstein, qui consiste à omettre le symbole de sommation Σ

en utilisant la notation tensorielle. Dans le cas général l'énergie d'anisotropie de forme est donc d'ordre 2. Par diagonalisation^{II.4} on trouve les trois axes principaux, pour lesquels on *définit* les coefficients de champ démagnétisant par : $E = -\frac{1}{2}\mu_0 M_s^2 N_i$. On montre que l'on a également toujours $\sum N_i = 1$. Notons que cette dernière relation exprime la trace du tenseur $\mathbf{N}$: $\text{Tr}(\mathbf{N}) = 1$.

Cette définition a le mérite d'être rigoureuse. Cependant elle est purement mathématique, car en principe du fait de la non-uniformité en norme *et surtout en direction* de $\mathbf{H}_d$ il n'est pas possible d'aligner parfaitement tous les moments magnétiques du système par un champ extérieur, quelle que soit sa force.

2.4 Considérations thermodynamiques

Ce paragraphe est consacré au lien entre les coefficients de champ démagnétisant et les courbes d'aimantation de systèmes constitués de matériaux doux. Soit U l'énergie interne par unité de volume d'un système magnétique (incluant les énergies d'échange U_{ex} , d'anisotropie microscopique U_{an} et démagnétisante U_d), et $G = U - TS - \mu_0 H M$ son enthalpie libre. H est un champ extérieur uniforme, et M la composante de l'aimantation volumique moyenne suivant la direction de $\mathbf{H}$. À température nulle on a $dU = \mu_0 H dM$ et $dG = -\mu_0 M dH$. Si l'équilibre est atteint en chaque point d'un cycle d'aimantation (pas d'hysteresis) de champ nul à un champ suffisamment élevé pour aligner quasiment parfaitement tous les spins du système, champ que nous appelons champ de saturation H^{sat} , alors l'aire *sous* la courbe d'aimantation vaut $\mu_0 \int_0^{H^{\text{sat}}} M dH = G(0) - G(H^{\text{sat}})$ (FIG. II.4). $G(H)$ est continue également pour des sauts d'aimantation anhystérétiques, si bien que cette intégrale est valide pour toute courbe d'aimantation anhystérétique. De la définition de G , et en utilisant $\int_0^{H^{\text{sat}}} M dH + \int_0^{M_s} H dM = H^{\text{sat}} M_s$, il découle que l'aire *au-dessus* de la courbe d'aimantation est :

$$\mu_0 \int_0^{M_s} H dM = \frac{1}{2} \mu_0 M_s^2 N_i + U_{\text{an}}(H^{\text{sat}}) - U(0). \quad (\text{II.8})$$

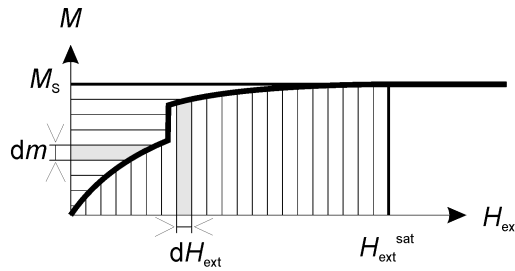


FIG. II.4: Illustration de M_s , H^{sat} , $\int_0^{H^{\text{sat}}} M dH$ (hachures verticales) et $\int_0^{M_s} H dM$ (hachures horizontales).

Pour simplifier la discussion seuls les matériaux sans anisotropie microscopique sont considérés dans la suite. Pour étendre la discussion à tout type de matériau, il suffit de considérer un $U_{\text{an}}(H^{\text{sat}})$ non nul, et une contribution de l'anisotropie à $U(0)$.

^{II.4}L'énergie dipolaire étant toujours un coût en énergie, la matrice $\mathbf{N}$ est positive : ${}^t\overline{\mathbf{M}} \cdot \overline{\mathbf{N}} \cdot \overline{\mathbf{M}} \geq 0 \quad \forall \overline{\mathbf{M}}$. De plus, on se convainc aisément que $\mathbf{N}$ est une matrice symétrique en calculant l'Eq. (II.6) par une double intégrale triple sur tous les dipôles constituant le système, et en invoquant le théorème de mutuelle inductance entre tous les dipôles microscopiques représentant l'aimantation du solide. Ainsi, la matrice $\mathbf{N}$, étant définie, positive et symétrique, est diagonalisable

2.5 Énergie d'aimantation et coefficients démagnétisants

2.5.1 Systèmes macroscopiques

Un système macroscopique doux ne présente pas de rémanence, et l'énergie des parois est négligeable, si bien que $U(0) = 0$. L'équation II.8 se réduit alors à $\mu_0 \int_0^{M_s} H dM = \frac{1}{2} \mu_0 M_s^2 N_i$. Cette relation permet donc une détermination rigoureuse des coefficients N_i dans tout système macroscopique de forme quelconque. De plus la somme des aires d'aimantation, déterminées dans trois directions perpendiculaires entre elles mais pas nécessairement des directions principales, reste égale à $\frac{1}{2} \mu_0 M_s^2$. Ceci vient de la propriété d'invariance de $\text{Tr}(\mathbf{N})$ par rotation.

2.5.2 Nanostructures

Dans les nanostructures l'énergie des parois et vortex existant à rémanence ne peut plus être négligée, puisque ceux-ci concernent une part significative du système. On a donc $U(0) > 0$. De ce fait, $\mu_0 \int_0^{M_s} H dM$ sous-estime la vraie valeur des N_i . Dans une nanostructure donnée, la sous-estimation sera d'autant plus forte en valeur relative que le champ est appliqué dans une direction de faible N_i , *c.à.d.* qui possède une énergie démagnétisante faible.

Cette sous-estimation pourrait être utilisée pour déterminer expérimentalement l'énergie rémanente de nanostructures, et en déduire l'énergie d'objets tels que des vortex et parois magnétiques (voir p.76). Cependant la détermination de $\mu_0 \int_0^{M_s} H dM$ porte une erreur systématique du fait des poches d'hystérésis associées aux événements de nucléation et annihilation.

2.6 Susceptibilité initiale et coefficients démagnétisants

La mesure de la susceptibilité $\chi = dM/dH$ est également parfois utilisée pour déterminer les N_i . Elle peut conduire à des erreurs significatives, comme argumenté ci-dessous.

2.6.1 Plaques, cylindres, et ellipsoïdes macroscopiques

La taille d'un système macroscopique étant grande devant la taille des domaines magnétiques, considérons en tout point une aimantation volumique effective $\mathbf{M}(\mathbf{r})$ qui résulterait de la juxtaposition intime de domaines dans des directions et sens différents [106]. Lors de l'application de $\mathbf{H}$, $\mathbf{M}$ aura tendance à suivre cette direction. Lorsque $\mathbf{H}$ est appliqué dans une direction principale, supposons qu'une aimantation effective $\mathbf{M}$ parallèle à $\mathbf{H}$ en résulte. Nous avons vu que $\mathbf{H}_d = -N_i \mathbf{M}$ dans cette direction. L'enthalpie libre du système est $G = \frac{1}{2} \mu_0 M^2 N_i - \mu_0 M H$. En minimisant G on trouve la valeur de M qui s'installe effectivement dans le système : $M = H/N_i$, et ceci jusqu'à la saturation $M = M_s$. Le champ total $\mathbf{H} + \mathbf{H}_d$ est nul, si bien que l'aimantation est à l'équilibre ; la configuration d'aimantation uniforme, postulée au départ, est effectivement une solution d'équilibre.

En conclusion, *la susceptibilité jusqu'à la saturation permet dans le cas de plaques, cylindres, et ellipsoïdes macroscopiques une détermination rigoureuse des N_i .*

2.6.2 Systèmes macroscopiques non ellipsoïdaux

Dans les systèmes autres que plaques, cylindres, et ellipsoïdes le champ démagnétisant n'est pas uniforme. La non-uniformité implique qu'il est impossible de saturer rigoureusement l'échantillon pour une valeur finie de H . On trouve numériquement que la courbe $M(H)$ est concave, avec pour les systèmes bi-dimensionnels une phase de susceptibilité constante à bas champ assez étendue, qui correspond à une phase d'expulsion totale du champ ($\mathbf{H} + \mathbf{H}_d = 0$) [107]. Comme l'aire totale au-dessus de la courbe $\mu_0 M(H)$ vaut $\frac{1}{2} \mu_0 M_s^2 N_i$, si la susceptibilité n'est pas constante jusqu'à la saturation, alors l'aire du triangle délimité par la susceptibilité initiale est plus faible que $\frac{1}{2} \mu_0 M_s^2 N_i$, d'où : $N_i > 1/\chi$.

En conclusion, pour des systèmes autres que plaques, cylindres, et ellipsoïdes, même de taille macroscopique, la détermination des coefficients de champ démagnétisant par la mesure de la susceptibilité initiale sous-estime les valeurs réelles des N_i , dans toutes les directions. Cette constatation peut expliquer pourquoi l'on obtient parfois des courbes $M(H)$ à pente négative lorsque l'on corrige des courbes brutes de matériaux d'une forme donnée par une méthode en $1/N$: la pente retranchée peut être plus forte que la pente réelle.

2.6.3 Nanostructures

La situation est encore plus complexe dans les nanostructures. La courbe anhystérétique (minimisant en tout point G) peut comporter un saut d'aimantation important proche de la saturation, du fait qu'une paroi ou un vortex ne peuvent s'expulser ou rentrer continûment. Dans ce cas, il n'est pas clair si $1/\chi$ sera plus ou moins grand que l'aire au-dessus de la courbe, et encore moins clair est le rapport avec N_i . Il faut donc éviter d'utiliser la susceptibilité initiale pour déterminer les N_i dans les nanostructures.

2.7 Illustration expérimentale

2.7.1 Analyse énergétique de processus d'aimantation simples

Des plots de Fe(110) de hauteur ~ 60 nm et à configuration à fermeture de flux (partie 2.3) sont utilisés pour illustrer les arguments développés ci-dessus.

La simulation numérique d'un cycle d'hystérésis d'un plot dans la direction [001] a confirmé la validité de l'équation II.8, dans une barre d'erreur de 5% attribuée aux faibles écarts à la saturation, écarts persistant jusqu'à des champs en toute rigueur infinis. Expérimentalement nous avons cyclé une assemblée de plots de hauteur ~ 60 nm dans trois directions, planaires [001] et $[1\bar{1}0]$, et perpendiculaire (110), sommé l'équation II.8 et utilisé le fait que $\Sigma N_i = 1$, pour donner une estimation de $U(0)$. En tenant compte d'une erreur systématique d'environ 5% de sous-estimation de l'aire au-dessus de la courbe d'aimantation, motivée par les résultats simulés décrits ci-dessus, on trouve $U(0) \sim 5 \times 10^4$ J.m⁻³. Cette valeur est effectivement positive, mais est 1.5 à 2 fois égale à la valeur attendue par simulation (Tab. I.2, p.37). Le désaccord quantitatif est imputé aux imprécisions de mesure, et également au fait que lors de mesures d'aimantation macroscopiques, les 'galettes' de hauteur 1.5 nm (voir partie 2.2.2) contribuent également au signal et perturbent donc l'analyse. Des échantillons et mesures plus adaptés sont en cours de réalisation.

Les mesures expérimentales ont montré que $1/\chi$ sous-estime $\mu_0 \int_0^{M_s} H_0 dM$ de 20% environ, dans toutes les directions. De plus, dans le cas d'une mesure d'assemblée il existe une distribution des rapports d'aspect des plots, et donc des N_i . Alors que l'on montre simplement que cette distribution ne modifie pas la détermination des N_i par l'aire d'aimantation, on a pour la susceptibilité initiale^{II.5} : $\langle \chi \rangle = (1 + \sigma/\langle N \rangle^2) \chi(1/\langle N \rangle)$ avec σ la variance sur N , et en supposant χ et $1/N_i$ proportionnels. En déterminant les distributions par analyse statistique d'images AFM, nous attendons dans notre cas un écart de 10% comme effet de distribution, ce qui laisse un écart de 10% attribuable purement à un effet physique, de forme non ellipsoïdale de l'échantillon.

[RÉFÉRENCES : 11]

3 Cristallographie et ordre liquide de surface

Cette annexe a pour but de fournir un modèle d'analyse pour les réseaux auto-organisés de surface de Co/Au(111), dont des études par diffraction ont été rapportées dans la partie 3.2.4.

^{II.5}La différence entre les deux méthodes, du moins pour les systèmes macroscopiques, tient au fait que l'aire d'aimantation est proportionnelle aux N_i , alors que dans le cas de la susceptibilité la relation est d'inverse proportionnalité, ce qui fait apparaître par un développement limité une correction de second ordre lors de la moyenne.

3.1 Parallèle entre GISAXS et RHEED

Le RHEED et le GISAXS sont deux techniques *a priori* très différentes, en dont pourtant l'interprétation des clichés de diffraction requiert les mêmes raisonnements. Ces techniques partagent deux caractéristiques essentielles :

- L'incidence rasante, qui apporte la sensibilité à la seule surface, et implique un espace réciproque constitué de lignes perpendiculaires à la surface sondée, tout du moins pour une surface plane.
- Le rapport élevé entre le rayon de la sphère d'Ewald, et les vecteurs de diffusion du réseau à sonder. Ainsi la sphère d'Ewald est presque tangente aux tiges de l'espace réciproque. Leur intersection, c'est à dire le cliché de diffraction, est un jeu de raies très allongées et perpendiculaires à la surface de l'échantillon.

3.2 Modélisation de l'ordre semi-liquide des plots Co/Au(111)

L'objectif est de modéliser l'ordre de réseaux auto-organisés de plots Co/Au(111), que l'on peut voir sur la FIG. I.11, p.40. La direction perpendiculaire aux rangées (resp. parallèle) est appelée x (resp. y). La diffraction a montré que l'ordre selon y était à longue distance, alors que celui selon x était à courte distance (Figs. I.18, I.20, pp.48,51). L'amplitude diffusée par le Co est décomposée en trois sommes imbriquées. La première (le facteur de forme F_{plot}) concerne les amplitudes de diffusion sur les atomes au sein d'un plot, une enveloppe à la variation lente. La seconde (F_{rang}) somme sur une rangée de plots parfaitement ordonnée, donnant lieu à un peigne de Dirac pour $q_y = 2\pi/\Lambda$. La troisième (F_{liq}) somme sur les origines des rangées selon x (FIG. I.18d), donnant lieu à une fonction de type liquide (FIG. I.18d). Λ est la période du réseau selon y . L'intensité diffusée totale est :

$$I = |F_{\text{plot}}|^2 \times |F_{\text{rang}}|^2 \times |F_{\text{liq}}|^2 \quad (\text{II.9})$$

La modélisation de F_{plot} et F_{rang} ne présente pas de difficulté, et n'est pas discutée ici. Du fait de l'ordre à courte distance selon q_x , $|F_{\text{liq}}|^2$ s'exprime commodément comme la transformée de Fourier de la fonction de Patterson^{II.6} de l'origine selon des rangées. Le calcul utilise la fonction de distribution de plus proches voisins [108] (FIG. I.18d), et s'assimile donc à un ordre liquide. Le calcul n'est pas aussi simple que celui d'un ordre liquide à une dimension, du fait que la super-maille moyenne, un rectangle de dimensions $2\kappa \times \Lambda$, contient deux sites (l'origine des rangées). De plus, la position du plot central n'est pas simplement celle du premier plot translatée le long de la direction $\pi/6$, direction de la double ligne de discommensuration de la reconstruction de l'Au(111). En effet, les deux sites de nucléation de plots ne sont pas équivalents (pour le Ni voir la Réf. 47). Sur le schéma de super-maille (FIG. I.18d) le plot central est déplacé selon y d'une quantité ϵ qui évolue durant la croissance, car les deux plots nucléent en des points non symétriques, et au cours de la croissance déplacent leur centre de gravité dans des sens opposés selon la direction y [109]. La fonction de distribution du plus proche voisin de droite du plot central (+) et de droite toujours, mais du plot en coin de maille (–), sont :

$$h^\pm(x, y) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma_\kappa^2}} \exp\left[-\frac{(x - \kappa)^2}{2\sigma_\kappa^2}\right] \delta(y \pm \frac{1}{2}x \pm \epsilon) \quad (\text{II.10})$$

Après quelques calculs on trouve :

$$|F_{\text{liq}}(\mathbf{q})|^2 = (\sinh c \cosh c + \cos a \cos b \sinh c \cosh d + \sin a \sin b \cosh c \sinh d) / (\sinh^2 c + \sin^2 a) \quad (\text{II.11})$$

avec $a = q_x \kappa$, $b = q_y(\frac{1}{2}\kappa + \epsilon)$, $c = (q_x^2 + \frac{1}{4}q_y^2)\sigma_\kappa^2/2$ et $d = q_x q_y \sigma_\kappa^2/2$.

^{II.6}fonction d'auto-corrélation des sites dans l'espace réel [108]

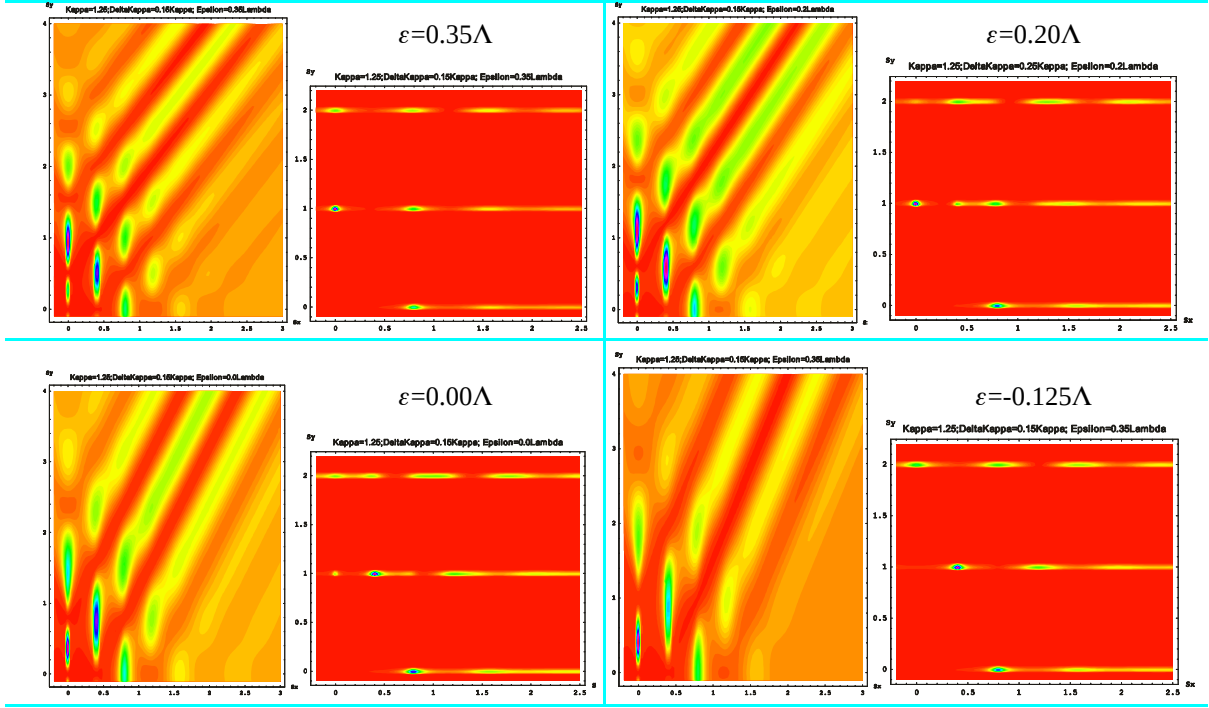


FIG. II.5: Illustration de l'effet de la position du second plot dans la super-maille, paramétrée par ϵ . Pour chaque quadrant, associé à une valeur donnée de ϵ , sont représentés $|F_{\text{liq}}|^2$ (gauche) et $|F_{\text{liq}}|^2 * |F_{\text{rang}}|^2$ (droite). Les calculs ont été effectués pour $\Lambda = 1$, $\kappa = 1.25$ (variables sans dimension, de même rapport que les valeurs expérimentales de la partie 3.2.4) et $\sigma_\kappa = 0.15\kappa$ ($\sigma_\kappa \sim 0.25\kappa$ dans les expériences).

3.3 Compétition entre le facteur de structure et le désordre à longue distance

Comme application de l'équation II.11, les Figs. II.5 et II.6 illustrent respectivement l'effet de la position du second site de la maille par le biais de ϵ , et du désordre selon x par le biais de σ_κ . Sur chacun des quatre cadrans, l'image de gauche représente $|F_{\text{liq}}|^2$, et celle de droite se rapproche de l'espace réciproque réel en représentant $|F_{\text{rang}}|^2 \times |F_{\text{liq}}|^2$.

Discutons d'abord de l'effet de ϵ (FIG. II.5). S'il n'y avait pas de désordre selon x , le réseau constituerait un monocristal de surface, caractérisé par des pics de diffraction très fins. Dans ce cas l'effet de ϵ serait celui d'un facteur de structure, qui ne jouerait que sur l'intensité des pics existants. Or la position des pics de l'espace réciproque (images de droite) dépend du désordre. La raison est la suivante. À petit q le désordre est négligeable; la position selon q_x des maxima de $|F_{\text{liq}}|^2$ reflète donc la période 2κ du réseau. Par exemple on retrouve un réseau réciproque rectangulaire centré pour un réseau direct rectangulaire centré, et un réseau rectangulaire côté centré tourné de 90° pour un réseau direct rectangulaire côté centré. À grand q , $|F_{\text{liq}}|^2$ est dominée par le désordre; l'intensité reste contrastée seulement selon un faisceau, dont l'angle est cette fois déterminé par une fonction de distribution à deux trous qui sont les deux sites de la super-maille; ainsi, à q_y donné la position des maxima selon q_x est déterminée par ϵ .

Examinons maintenant l'effet du désordre (FIG. II.6). On constate par exemple que la position des pics à grand q dépend de l'intensité du désordre^{II.7}. Un autre effet est la modulation de l'intensité des

^{II.7}cette illustration, pour laquelle la valeur de ϵ a été choisie pour reproduire des données expérimentales de Co/Au(111) en début de croissance, n'est pas la plus frappante car la diagonale du réseau réciproque à petit q coïncide quasiment avec

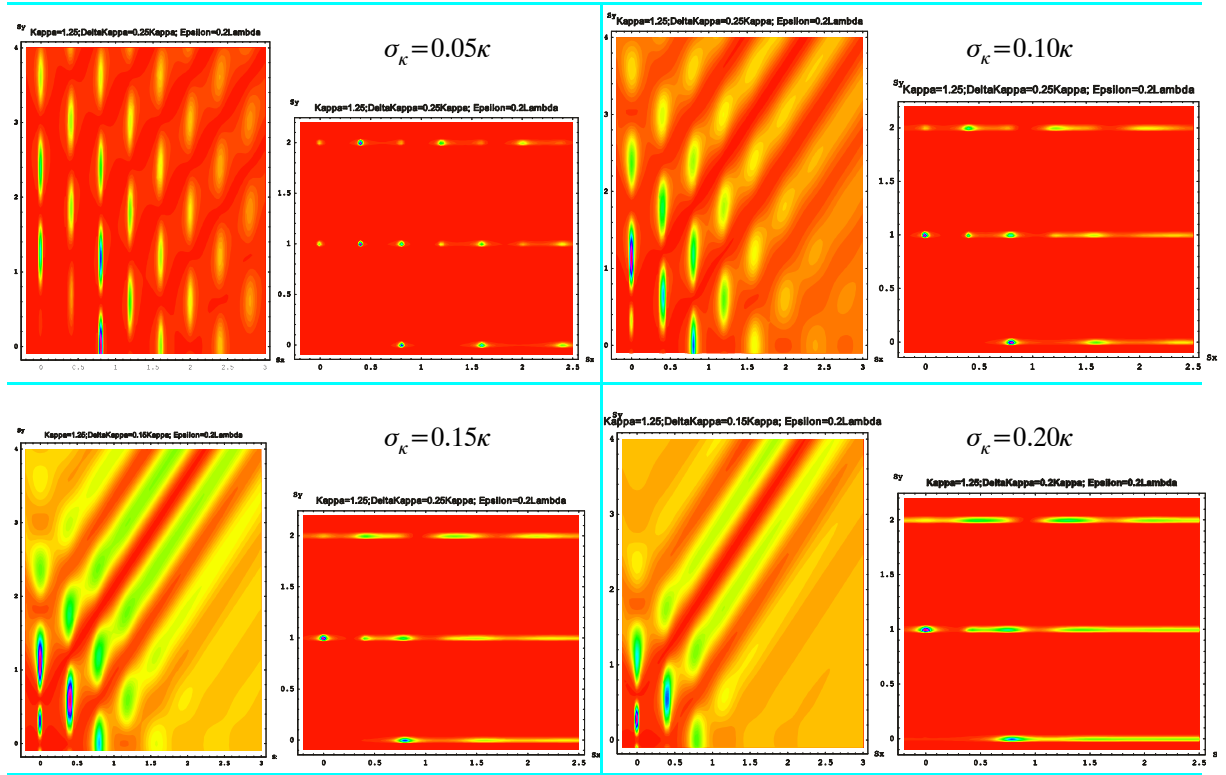


FIG. II.6: Illustration de l'effet du désordre liquide, paramétré par σ_κ . Pour chaque quadrant, associé à valeur donnée de σ_κ , sont représentés $|F_{\text{liq}}|^2$ (gauche) et $|F_{\text{liq}}|^2 * |F_{\text{rang}}|^2$ (droite). Les calculs ont été effectués pour $\Lambda = 1$, $\kappa = 1.25$ (variables sans dimension, de même rapport que les valeurs expérimentales de la partie 3.2.4) et $\epsilon = 0.2\kappa$ (valeur observée au début de la croissance).

pics, effet qui s'apparente à celui d'un facteur de structure. Sur la figure en bas à gauche, on s'aperçoit par exemple du faible rapport $I_1(\tau)/I_2(\tau)$. L'ajustement des intensités expérimentales permet ainsi de remonter à la position des plots dans la super-maille.

Ces exemples montrent que la combinaison d'un ordre liquide suivant une direction, et d'un ordre cristallin suivant la direction perpendiculaire, est non triviale. En particulier, il faut être prudent concernant l'analyse de la position des pics de diffraction pour déterminer la taille de la maille, notamment la position de pics à grand q , car celle-ci peut être dominée par l'effet d'un facteur de structure. Pour analyser le réseau réciproque il faut procéder par affinement progressifs en partant des faibles q .

Partie III

Perspectives

Dans la partie 'recherche' de ce manuscrit, nous avons vu que notre activité repose sur l'association d'une expertise en croissance épitaxiale d'une part, et d'études magnétiques d'objectif démonstratif d'autre part. Nous avons eu une démarche de recherche fondamentale, mais qui peut éclairer des recherches plus appliquées. Dans les années à venir nous comptons continuer dans cette voie. Nos activités de croissance et de magnétisme resteront dans la même logique, mais seront relancées grâce à la fabrication de nouveaux types de systèmes modèles. L'élément prometteur essentiel est le développement de couches tampon à paramètre cristallin ajustable, et c'est pourquoi le plan de cette partie est bâti selon cette perspective. Cependant nous continuerons d'étendre la versatilité de nos techniques d'auto-assemblage et auto-organisation par d'autres moyens, tels que l'intercalation d'étapes de gravure lors des procédés de croissance. Enfin, nous souhaitons nous appuyer de plus en plus souvent sur le rayonnement synchrotron pour la caractérisation structurale et magnétique de nos systèmes. Cette caractérisation se fera naturellement en collaboration avec d'autres groupes scientifiques spécialistes des techniques concernées, car nous ne souhaitons pas faire de ces caractérisations notre expertise principale.

1 Couches tampon à paramètre continûment ajustable : un outil

Le rôle du désaccord paramétrique et de l'hybridation entre les réseaux cristallins d'une couche mince et de son substrat est reconnu dans de nombreux aspects des couches minces, et nous l'avons utilisé dans nos activités de recherche. Il nous semble cependant que dans un certain nombre de cas son effet n'a pu être quantifiée du fait de l'impossibilité de faire varier continûment et indépendamment chacun des paramètres pertinents. Citons par exemple l'anisotropie magnétique et la croissance auto-assemblée.

Le fil conducteur de nos travaux futurs est d'établir un lien quantitatif entre un désaccord paramétrique ou un paramètre de maille différent du massif d'une part, et un comportement de croissance ou une propriété magnétique d'autre part. Le projet s'articule en deux étapes distinctes :

- La première étape est le développement d'un outil. Il s'agit de développer un procédé d'élaboration de couches tampons métalliques de paramètre de maille continûment variable et de qualité monocristalline, fondés sur le co-dépôt de deux éléments de même symétrie cristalline mais de paramètres différents. Nous détaillerons plus loin les qualités respectives des deux approches qui seront poursuivies : dépôt de multicouches d'une part, co-dépôt d'une solution solide d'autre part. En particulier dans le second cas, notre atout est l'utilisation du Dépôt Laser Pulsé (DLP), qui permet le mélange intime des espèces en nanocristaux, permettant d'une part l'obtention de couches de qualité monocristalline par recuit (partie 2.2.1), mais également la stabilisation de phases métastables qui ne peuvent être obtenues par dépôt thermique [110].
- La seconde étape consiste à appliquer ces couches tampon à l'étude quantitative de plusieurs

problématiques de croissance et de magnétisme, sur des systèmes sélectionnés. Les problèmes suivants seront abordés. Sur le plan des modes de croissance : séparation des rôles des énergies de surface/interface et des dislocations d'interface dans la croissance de type Stranski-Krastanov (en relation avec la partie 2.2) ; étude de la transition commensurable - incommensurable du réseau de dislocations d'interface (en relation avec la partie 3.3). Sur le plan du magnétisme, des thématiques nouvelles seront abordées : mise en évidence de la contribution 'locale' des dislocations à l'anisotropie des couches ultraminces ; dépendance des anisotropies d'interface (purement d'hybridation) et magnéto-élastique par rapport au paramètre de maille ; étude de l'ordre magnétique, des moments de spin et orbital dans des couches de Fer γ .

Le projet consiste donc, à partir d'un outil commun qui sont des couches tampons à paramètre de maille continûment variable, en quelques exemples démonstratifs permettant d'élucider quantitativement plusieurs phénomènes fondamentaux liés au désaccord paramétrique en croissance épitaxiale, tant sur le plan de la croissance que du magnétisme.

Ces deux étapes sont détaillées dans les deux parties suivantes.

2 Maîtrise des couches tampons

Deux approches qui seront poursuivies pour produire les couches tampon. Les systèmes particuliers qui seront utilisés pour ces deux approches sont présentés dans le dernier paragraphe.

2.1 Première approche : les multicouches

Un dépôt en multicouches ultraminces de deux éléments conduit à la formation d'une couche de paramètre de maille (dans le plan de la couche) intermédiaire entre les paramètres des deux éléments simples, chaque couche simple étant élastiquement déformée dans le plan. Ce paramètre moyen dépend des paramètres cristallins des deux éléments, de leurs modules élastiques, ainsi que de leurs concentrations respectives. Il est donc *en principe* possible de varier continûment le paramètre de maille d'une telle multicouche tampon, et ce pour plusieurs symétries et orientations.

Ce résultat connu permet d'envisager un démarrage rapide du projet, mais il comporte un désavantage. En effet, une multicouche est souvent dans un état métastable, au profit d'une démixtion ou d'alliages. Ceci a deux conséquences. D'une part il n'est pas toujours possible de procéder à un recuit, qui pourrait être nécessaire à l'optimisation de la couche magnétique ultérieure. D'autre part des modulations latérales de paramètre de maille peuvent apparaître, qui s'amplifient avec l'épaisseur de la multicouche [111]. Ces instabilités pourraient mettre en péril la qualité de la couche, tant sur le plan de l'uniformité du paramètre de maille, que sur celui de la planarité. C'est pour cette raison que nous mettrons également en œuvre une méthode alternative, présentée ci-dessous.

2.2 Seconde approche : les solutions solides

En parallèle des dépôts tampon multicouches, nous proposons de développer des couches métalliques épitaxiées de solutions solides binaires. Nous adopterons l'approche qui nous a permis de fabriquer des couches d'éléments simples parfaitement monocristallines par DLP, c'est à dire un dépôt à température modérée, suivi d'un recuit à haute température pour améliorer la cristallinité et lisser la surface (FIG. I.1). Nous nous limiterons aux paires d'éléments formant des solutions solides mais aucun alliage ordonné, afin d'éviter leur démixtion (voir *Choix des systèmes*, plus loin). Le nombre de systèmes favorables est plus réduit que pour des multicouches, mais la surface obtenue sera plus homogène et robuste aux recuits, ce qui permet une plus grande latitude pour l'optimisation des couches ultérieures. Des couches similaires ont été ébauchées au laboratoire, dans le régime ultramine (1.5-2.5 nm) [112]. Observées à l'époque par

AFM *ex situ*, ces couches tampon de solution solide ($\text{W}_{70}\text{Nb}_{30}$)(110) d'épaisseur 2 nm offraient une surface d'excellente qualité, de rugosité moyenne inférieure à 0.1 nm, similaire à celle des couches de W(110) pur.

2.3 Contrôle chimique de l'interface

Pour séparer les effets d'interface (hybridation) des effets de paramètre de maille, il faut contrôler indépendamment l'élément de surface et le paramètre de maille de la couche tampon. Nous recouvrons donc une couche tampon obtenue par l'une ou l'autre des méthodes mentionnées ci-dessus, par un nombre très réduit de plans atomiques d'un élément pur. Ce nombre de plans devra être d'autant plus faible que la différence de paramètre de maille entre la couche tampon et l'élément d'interface est importante, pour éviter l'apparition de dislocations. Cette approche sera donc plus particulièrement pertinente dans le cas de faibles variations de paramètre par rapport à l'élément d'interface.

La faible taille des îlots de nucléation en DLP favorise plus longtemps une croissance couche par couche qu'en dépôt thermique. Ceci a été démontré par exemple pour Fe/Cu [110]. Nous l'avons vérifié récemment pour Fe/Mo, et surtout Al(111)/Mo(110) et Au(111)/Mo(110), qui croissent sans limite plan par plan par DLP à 300 K, alors que la croissance est rugueuse par MBE. Le DLP devrait donc nous donner plus de souplesse pour imposer la pureté chimique de l'interface indépendamment de son paramètre de maille.

2.4 Choix des systèmes

Du fait des différentes applications des couches tampons que nous envisageons de préparer (voir page 84), plusieurs types de couches tampon et de symétries de surface doivent être envisagées.

Le premier type de systèmes sera des couches tampons contenant deux éléments cubique centré (cc) miscibles parmi W, Mo, Nb, Ta, V et Cr. Ce choix est motivé par trois facteurs : 1. l'immiscibilité démontrée de Fe et Co en surface avec le W et le Mo [4, 77] 2. la miscibilité totale en solution solide et l'absence d'alliages entre tous les éléments parmi Mo, Nb, Ta, V, W (exception faite d'alliages Ta-V, voir TAB. III.1) 3. notre expérience dans le dépôt de la plupart de ces éléments simples en couches tampons monocristallines. L'orientation (11 $\bar{2}$ 0) de substrats de Saphir sera utilisée pour obtenir l'orientation cc(110) de la couche tampon. L'orientation cc(001) sera également recherchée car une métastabilité prolongée a été récemment démontrée suivant cette orientation, pour le système Fe/W(001) [113]. Ceci sera un atout notamment pour le dépôt ultramince d'une interface d'élément simple. Des substrats de MgO(001) seront utilisés.

Le second type de systèmes sera des solutions solides de métaux cubique face centrée (cfc), $\text{Ag}_x\text{Pd}_{1-x}$ et $\text{Pd}_x\text{Ni}_{1-x}$. Notre approche sera *a priori* d'initier la croissance de ces couches sur des couches tampons monocristallines cc(110)/ Al_2O_3 (11 $\bar{2}$ 0). Nous avons déjà réalisé par DLP l'épitaxie de plusieurs métaux cfc sur ces surfaces (Ag, Al, Au, Pd, Ni), sans difficulté, la relation d'épitaxie étant unique. Dans une seconde étape nous pourrions réaliser l'épitaxie sur une couche tampon de solution solide adaptée, dans le but de minimiser le désaccord paramétrique planaire.

2.5 Résultats préliminaires

L'objectif des couches tampon est de pouvoir contrôler indépendamment le paramètre de maille planaire et la nature chimique de l'interface. Nous disposons d'une première réalisation de cet objectif, dans le cas favorable d'éléments de proche paramètre de maille : Mo et W.

Concernant le paramètre de maille, des dépôts alternés W/Mo sous forme de multicouches d'épaisseur proche du plan atomique ont été effectués. La diffraction de rayons X en géométrie $\theta - 2\theta$ perpendiculaire montre que les compositions intermédiaires entre W pur et Mo pur induisent effectivement un paramètre de maille (perpendiculaire) intermédiaire.

La nature de l'interface chimique est également contrôlée pour ce système, par dépôt d'une couche ultramince à température ambiante, puis recuit. Le STM montre que la surface obtenue est atomiquement

TAB. III.1: Diagramme de phase simplifié et à température ambiante d'éléments cubiques centrés immiscibles (imm.), formant des alliages (all.) ou *exclusivement* des solutions solides (s.s.).

	a (nm)	Cr	Fe	Mo	Nb	Ta	V	W
Cr	0.28848	—						
Fe	0.28665	all.	—					
Mo	0.31470	imm.	all.	—				
Nb	0.33004	all.	all.	s.s.	—			
Ta	0.33030	all.	all.	s.s.	s.s.	—		
V	0.30240	s.s.	all.	s.s.	s.s.	s.s.+ all.	—	
W	0.31652	imm.	all.	s.s.	s.s.	s.s.	s.s.	—

TAB. III.2: Diagramme de phase simplifié et à température ambiante d'éléments cubiques faces centrées immiscibles (imm.), formant des alliages (all.) ou des solutions solides (s.s.).

	a (nm)	Ag	Al	Au	Cu	Ir	Ni	Pd	Pt
Ag	0.40857	—							
Al	0.40496	all.	—						
Au	0.40782	s.s.	all.	—					
Cu	0.36146	imm.	all.	s.s.+all.	—				
Ir	0.38392	imm.	all.	imm.	imm.	—			
Ni	0.35240	imm.	all.	imm.	all.	s.s.	—		
Pd	0.38903	s.s.	all.	s.s.+all.	s.s.+all.	imm.	s.s.	—	
Pt	0.39236	all.	all.	imm.	all.	imm.	all.	imm.	—

plane. Une étude Auger quantitative d'une couche de W déposée en coin (1 – 10 PA de W pseudomorphe) sur une couche tampon de Mo (9 nm) montre une décroissance exponentielle du signal de Mo en fonction du dépôt de W, décroissance qui reste inchangée après recuit (FIG. III.1a). Ceci montre l'absence d'interdiffusion lors du processus de recuit. Ces caractérisations suggèrent que la couche a le paramètre de maille celui du Mo, mais possède les caractéristiques chimiques du W en surface, le tout en conservant une surface atomiquement plane. Du Fe a été déposé sur ces surfaces (FIG. III.1b). D'une part le procédé n'affecte pas la qualité du réseau de marches atomiques, et d'autre part la morphologie des bandes auto-organisées en bord de marche est affectée par la seule nature chimique de l'interface. Cette constatation est encourageante pour la suite des études.

3 Applications à l'auto-organisation et au magnétisme

3.1 Forme de plots compacts : compréhension et mise à profit

Deux paramètres au moins sont reconnus comme déterminant une hétéroépitaxie de type Stranski-Krastanov : les énergies de surfaces/interface d'une part, et le désaccord paramétrique conduisant à la formation d'un réseau de dislocations à l'interface d'autre part [17]. Les rôles respectifs de ces deux paramètres ne sont cependant pas séparés quantitativement à l'heure actuelle.

3.1.1 Objectif de croissance

Notre objectif sur le plan de la croissance est de distinguer et de déterminer quantitativement le rôle des dislocations dans l'énergie dite d'interface, dans le but d'approfondir la connaissance fondamentale des modes de croissance de couches épitaxiales. Nous avons vu dans le paragraphe d. que l'effet des

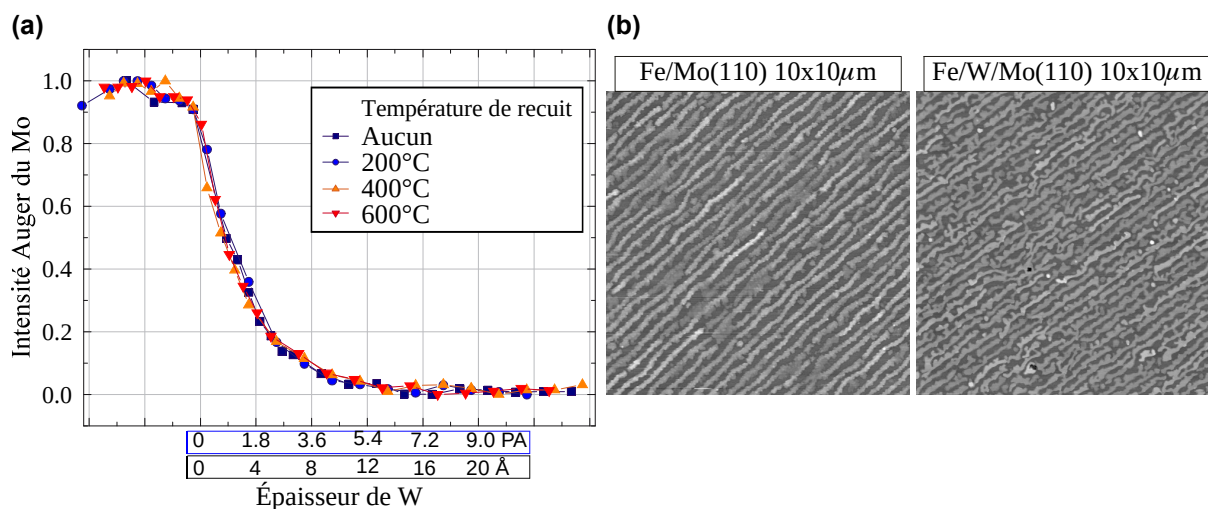


FIG. III.1: (a) Étude Auger dans la gamme 50–200 eV du recuit d'un dépôt ultramince de W/Mo(110). La profondeur sondée est de l'ordre de quelques plans atomiques, comme l'atteste la rapide décroissance du signal en fonction de l'épaisseur de W (b) Bandes de Fe/Mo(110) avec interface ultramince de W (droite) et sans interface (gauche). La légère différence d'orientation des bandes entre les deux images est liée à la désorientation de l'échantillon dans le microscope entre les deux images.

dislocations pouvait être pris en compte dans une énergie d'interface effective comprenant aussi bien la contribution chimique que le coût des déformations élastiques locales liées au réseau de dislocations, et que l'énergie effective totale pouvait être facilement déduite de la forme d'équilibre d'îlots hétéroépitaxiés tridimensionnels. Pour isoler la contribution des dislocations la densité du réseau de dislocations sera variée (point A), tout en conservant l'interface chimique (point B). L'énergie d'interface sera déduite de la morphologie d'îlots tridimensionnels de Fe/cc(110). Le point A fera usage de solutions solides Mo/V et Mo/Ta afin de respectivement diminuer et augmenter le désaccord paramétrique ; le point B sera assuré par un dépôt ultramince de Mo sur cette solution solide.

3.1.2 Plots monodomaines magnétiques

L'objectif sur le plan du magnétisme est de contrôler la forme des plots auto-assemblés. Jusqu'à présent les plots que nous avons étudié étaient caractérisés par une configuration à fermeture de flux à la rémanence (FIG. I.7, p.35). Le rapport d'aspect vertical peut déjà être divisé par 5 en jouant sur la nature chimique de l'interface, par dépôt sur W(110) au lieu de Mo(110). Des couches tampon MoV devraient permettre de diminuer encore ce rapport d'aspect. Nous pensons qu'il est possible de couvrir la gamme d'épaisseur 1-100 nm en combinant les 'galettes' et les 'plots 3D' (voir FIG. I.23 pour l'obtention de 'galettes' seules).

Les plots les plus minces permettront de disposer de plots monodomaines, pour étudier la dualité des comportements intrinsèque/extrinsèque entre des plots auto-assemblés et des plots lithographiés. Deux approches sont envisagées :

- Lithographier des plots de forme similaire à ce qu'il est possible d'obtenir par auto-assemblage.
- Utiliser uniquement des plots auto-assemblés sous UHV, mais comparer des plots de haute qualité avec des plots dont on altère la qualité. Une possibilité pour altérer la qualité est d'utiliser un canon de gravure *in situ* pour induire une rugosité de surface, avant couverture par une couche de

protection. Nous avons récemment modifié les chambres UHV pour pouvoir utiliser ce canon, qui est maintenant opérationnel.

Les résultats expérimentaux pourront être éclairés d'une part par des simulations micromagnétiques, d'autre part par les extensions du modèle micromagnétique effectuées récemment (partie 4.6).

3.1.3 Configurations à fermeture de flux

À la suite de l'observation des configurations à fermeture de flux dans les plots de Fer 3D (partie 2.3), un grand nombre de simulations micromagnétiques ont été menées en collaboration avec J.-C. Toussaint pour tenter de comprendre les processus de nucléation-annihilation des nanostructures. En effet, même si la carte angulaire des champs de renversement expérimentale a pu être reproduite qualitativement par la simulation (FIG. I.9), de nombreuses questions sont apparues :

- Les simulations ont suggéré une extrême sensibilité aux brisures de symétrie. Cette volatilité du comportement est-elle observable expérimentalement ? Des mesures par micro-SQUID, ainsi que des observations par MFM sous champ magnétique, sont envisagées pour poursuivre ces études.
- Les simulations ont montré que les parois de Bloch devaient être des parois de Bloch asymétriques (FIG. I.8). Cette configuration a été prédite depuis longtemps [18], et déjà retrouvée par simulation dans des nanostructures [27], mais aucune observation expérimentale directe n'a jamais été rapportée. Nous avons prévu des observations par PEEM pour tenter d'effectuer la première observation expérimentale.
- Les simulations ont suggéré la présence possible de points de Bloch au sein des parois de Bloch. Rappelons que les points de Bloch sont des points où, par compatibilité avec la configuration micromagnétique globale du plot, les trois composantes de l'aimantation doivent s'annuler localement. Bien que prédits également depuis plusieurs décennies, aucune signature directe de l'existence de points de Bloch n'a à notre connaissance été observée. Nous tenterons également l'observation de la première signature des points de Bloch, par imagerie PEEM.

Dans les points d'intérêt mentionnés ci-dessus, il est nécessaire d'avoir un contrôle maximum sur les caractéristiques des plots, notamment géométriques. Ainsi ces études devraient bénéficier des nouvelles possibilités offertes par les couches tampon à paramètre ajustable. En particulier, les simulations numériques suggèrent qu'augmenter le rapport d'aspect des plots permettra d'augmenter les dimensions des signatures d'asymétrie de parois de Bloch et de points de Bloch, pour ne pas être gênés par la limite de résolution du PEEM (environ 20 nm).

3.2 Hauteur des bandes : compréhension et mise à profit

3.2.1 Objectif de croissance

Un point non résolu de l'hétéroépitaxie est la mise en ordre du réseau de dislocations d'interface. Prenons l'exemple de Fe/Mo(110). Pour des raisons d'énergie élastique ce réseau est commensurable dans les tous premiers plans de croissance : 11 atomes de Fer tous les 10 atomes de Mo. Cependant les paramètres des deux matériaux étant *a priori* incommensurables, ce réseau devrait transiter vers une suite incommensurable pour permettre une relaxation optimale du Fer aux fortes épaisseurs. L'existence d'une telle transition, ainsi que ses conditions d'apparition, sont encore controversées.

Sur le plan de la croissance, le but de cette étude est de mettre clairement en évidence la transition commensurable/incommensurable du réseau de dislocations d'interface, et de montrer ses implications sur les modes de croissance, toujours dans le but d'approfondir la connaissance fondamentale des modes de croissance. Rappelons que c'est cette transition que nous avons postulé comme responsable de l'existence d'une épaisseur critique métastable aux alentours de 7 PA lors de la croissance de Fe/Mo(110). Nous chercherons pour ce système modèle à expliquer quantitativement la valeur de cette épaisseur en modulant

l'importance de l'incommensurabilité (solution de W dans le Mo , permettant d'annuler puis d'inverser le signe du désaccord résiduel).

3.2.2 Objectifs pour le magnétisme

Sur le plan du magnétisme, notre objectif est de pouvoir contrôler plus continûment la hauteur des bandes auto-organisées. Un couplage avec un procédé de dépôts alternés, comme celui utilisé pour le $Co/Au(111)$, est envisagé pour augmenter encore la hauteur des bandes. En disposant d'une quantité de matériau magnétique importante, nous attendons des effets de magnéto-résistance importants dans ces systèmes. En effet le courant, bien que circulant dans le plan de la couche, serait en géométrie de GMR perpendiculaire aux interfaces, géométrie qui donne lieu à une magnéto-résistance deux à trois fois plus forte qu'en géométrie planaire aux interfaces.

3.3 Magnétisme : origine microscopique de l'anisotropie d'interface

L'anisotropie magnétique d'une couche ultramince diffère notablement de la valeur du matériau massif, du fait d'une part de la brisure de symétrie aux interfaces (anisotropie d'interface), d'autre part des déformations de la maille cristalline (anisotropie magnétoélastique). La valeur résultante peut être très forte et être essentielle dans des applications comme l'enregistrement magnétique. Il serait donc intéressant de comprendre le rôle individuel de chacune de ces anisotropies, afin par exemple de mieux les contrôler. Cette séparation est habituellement tentée en interprétant la variation de l'anisotropie effective totale en fonction de l'épaisseur de la couche. Cette séparation est jusqu'ici imparfaite, voire erronée, et ceci pour plusieurs raisons :

- la séparation nécessite l'estimation de la contribution magnétoélastique, et donc la connaissance des paramètres de maille de la couche et des constantes de couplage magnétoélastiques. Or il a été démontré récemment que ces 'constantes' n'en étaient en fait pas mais varient avec la déformation de la couche, sont non linéaires et peuvent même changer de signe pour des déformations inférieures au pour-cent [114]. Il est donc nécessaire de mesurer directement ces constantes, ce qui nécessite un montage de déflexion sous champ contraignant.
- Quelques groupes commencent à tabuler ces 'constantes' en fonction de la déformation moyenne de la couche, mais un point jusqu'alors non évoqué est le rôle des dislocations d'interface sur l'anisotropie dite magnétoélastique, rôle qui, du fait des déformations très fortement non linéaires au cœur même des dislocations, pourraient bien être la source principale des variations observées. La connaissance de la valeur moyenne de déformation ne serait alors pas un paramètre pertinent.
- Enfin, dans ce nouveau contexte certains groupes évoquent également la possible dépendance de l'anisotropie d'interface par rapport aux déformations (modification de la structure électronique).

Nous proposons, dans un but démonstratif et sur un système judicieusement choisi, de séparer les différentes contributions de l'anisotropie d'une couche ultramince. Nous étudierons des couches de $Fe(001)$, déposées sur des couches tampons de V_xCr_{1-x} (qui permettront de sonder les déformations du Fe dans la gamme 0.6 – 5.5 %) recouvertes d'un ou deux plans atomiques de Mo . Les objectifs sont :

- Éviter la mise en jeu de dislocations en restant dans la gamme pseudomorphe. Ceci sera facilité par l'orientation (001), pour laquelle une déformation de 10 % peut être stabilisée jusqu'à 4 PA [113], ce qui ouvre des perspectives d'une quinzaine de plans pour 5 % de déformation. Le DLP nous apporte un atout supplémentaire pour cette stabilisation.
- Contribution de l'anisotropie d'interface seule par l'analyse de l'anisotropie en fonction de l'épaisseur de la couche, la nature des interfaces et la valeur du paramètre de maille demeurant fixées.
- Déduction de la contribution d'anisotropie magnétoélastique par différence. Par variation de x , déduction continue de la variation des constantes de couplage magnétoélastiques entre 0.5 % et 5 %

de déformation. La valeur de ces constantes pourra être vérifiée directement mais pour un nombre restreint d'échantillons (car nécessite un amincissement du substrat), par déflexion magnétostrictive du substrat sous champ magnétique, en collaboration avec l'institut Max-Planck de Halle.

- Enfin, l'anisotropie d'interface pouvant être déduite pour chaque valeur de x , détermination de sa dépendance ou de son indépendance vis à vis du paramètre de maille. Les valeurs d'anisotropie devront impérativement être déterminées à basse température afin de s'affranchir des effets de dépendance thermique de l'aimantation et de l'anisotropie. En effet cette variation dépend de la dimensionnalité (et donc de l'épaisseur e des couches) et fausse donc la détermination des anisotropies d'interface dans une représentation en $1/e$ à température ambiante. Les magnétométries utilisées seront un SQUID pour les mesures planaires, et l'effet Kerr polaire pour les mesures perpendiculairement aux couches.

3.4 Magnétisme du Fer fcc distordu

La stabilisation à température ambiante par épitaxie, de phases approchant le Fer fcc (γ – Fe, stable en massif seulement au-dessus de 1186 K, non magnétique car au-dessus de la température d'ordre), a été et continue d'être un sujet de recherche important des couches ultraminces magnétiques. Une motivation est la perspective de stabilisation d'une phase à spin supérieur à $2.2 \mu_B$. Cependant la théorie prédit une très forte sensibilité de l'état magnétique du Fer en fonction de son paramètre cristallin, conduisant à divers états possibles : ferromagnétiques à haut spin ($2.6 \mu_B$) ou bas spin ($0.6 \mu_B$, ferrimagnétique, antiferromagnétique et non magnétique (Réf.110 et références incluses). Les expériences existantes rapportent des états non magnétique ou antiferromagnétique, ferromagnétiques à bas spin ($0.6 \mu_B$) et spin intermédiaire ($1.4 \mu_B$) [50]. Elles ont été effectuées sur des surfaces (111) d'éléments simples et plus rarement d'alliages (stœchiométrie fixée). Le nombre restreint de paramètres de maille accessibles, ainsi que les différences microscopiques de modes de croissance dépendant du substrat, n'ont pas permis d'apporter une image globale du système artificiel γ – Fe.

Nous proposons d'étudier la nature de l'ordre magnétique de couches ultraminces de γ – Fe de façon continue avec le paramètre de maille, tout en maintenant une interface chimique inchangée. Nous utiliserons des solutions solides $\text{Ag}_x\text{Pd}_{1-x}$ et $\text{Pd}_x\text{Ni}_{1-x}$, permettant la variation du paramètre de maille planaire dans la gamme 0.408-0.352 nm. Un à deux plans de Cu seront déposés pour imposer l'interface chimique. Le DLP est là encore un atout pour la stabilisation de ces systèmes, tant pour la couche de Cu que pour la phase fcc [110]. L'ordre chimique atomique sera étudié par dichroïsme, afin de séparer les contributions orbitale et de spin. Cette mesure ne sera pas biaisée par le substrat magnétique $\text{Pd}_x\text{Ni}_{1-x}$, du fait de la sélectivité chimique du dichroïsme. Des mesures de magnétométrie classique pourront également être utilisées pour des mesures préliminaires dans le cas de couches tampon $\text{Ag}_x\text{Pd}_{1-x}$.

Bibliographie

- [1] M. A. GRINFELD, Dok. Akad. Nauk SSSR 290, 1358 (1986).
- [2] D. J. SROLOVITZ, Acta metall. 37 (2), 612–625 (1989).
- [3] O. FRUCHART, S. JAREN, J. ROTHMAN, *Growth modes of W and Mo thin epitaxial (110) films on (11 $\bar{2}$ 0) Sapphire*, Appl. Surf. Sci. 135, 218–232 (1998).
- [4] M. TIKHOV, E. BAUER, *Growth, structure and energetics of ultrathin ferromagnetic single crystal films on Mo(110)*, Surf. Sci. 232 (1-2), 73–91 (1990).
- [5] J. MALZBENDER, M. PRZYBYLSKI, J. GIERGIEL, J. KIRSCHNER, *Epitaxial growth of Fe on Mo(110) studied by scanning tunneling microscopy*, Surf. Sci. 414, 187–196 (1998).
- [6] S. MURPHY, D. MAC MATHÚNA, G. MARIOTTO, I. V. SHVETS, *Morphology and strain-induced defect structure of ultrathin epitaxial Fe films on Mo(110)*, Phys. Rev. B 66, 195417 (2002).
- [7] M. ALBRECHT, H. FRITZSCHE, U. GRADMANN, *Kinetic facetting in homoepitaxy of Fe(110) on Fe(110)*, Surf. Sci. 294, 1–9 (1993).
- [8] A. KAMIJO, *Facet growth in Fe/Cr(110) superlattices*, J. Magn. Magn. Mater. 156, 137–138 (1996).
- [9] D. SANDER, R. SLOMSKI, A. ENDERS, C. SCHMIDTHALS, D. REUTER, J. KIRSCHNER, *The correlation between mechanical stress and magnetic properties of ultrathin films*, J. Phys. D : Appl. Phys. 31, 663–670 (1998).
- [10] O. FRUCHART, J.-P. NOZIÈRES, D. GIVORD, *Growth and interface anisotropy of epitaxial Mo/Fe/Mo(110) and W/Fe/W(110) ultrathin films*, J. Magn. Magn. Mater. 207 (1-3), 158–167 (1999).
- [11] P. O. JUBERT, O. FRUCHART, C. MEYER, *Nucleation and surface diffusion in pulsed laser deposition of Fe on Mo(110)*, Surf. Sci. 522 (1-3), 8–16 (2003).
- [12] P.-O. JUBERT, O. FRUCHART, C. MEYER, *Self-assembled growth of faceted epitaxial Fe(110) islands on Mo(110)*, Phys. Rev. B 64, 115419 (2001).
- [13] L. VITOS, A. V. RUBAN, H. L. SKIVER, J. KOLLÁR, *The surface energy of metals*, Surf. Sci. 411, 186–202 (1998).
- [14] P. MÜLLER, R. KERN, *Equilibrium nano-shape changes induced by epitaxial stress (generalised Wulff-Kaishew theorem)*, Surf. Sci. 457, 229–253 (2000).
- [15] P. O. JUBERT, *Croissance et propriétés magnétiques de nanostructures épitaxiées auto-assemblées : le système Fe/Mo(110)*, Ph.D. thesis, Université Joseph Fourier, Grenoble (2001).
- [16] I. DARUKA, J. TERSOFF, A. L. BARABÁSI, *Shape Transition in Growth of Strained Islands*, Phys. Rev. Lett. 82 (13), 2753–2756 (1999).
- [17] F. TINJOD, I. C. ROBIN, R. ANDRÉ, K. KHENG, H. MARIETTE, *Key parameters for the formation of II-VI self-assembled quantum dots*, submitted to J. Alloy Comp. .
- [18] A. HUBERT, R. SCHÄFER, *Magnetic domains. The analysis of magnetic microstructures*, Springer, Berlin, 1999.

- [19] H. A. M. VAN DEN BERG, *A micromagnetic approach to the constitutive equation of soft-ferromagnetic media*, J. Magn. Magn. Mater. 44 (1-2), 207–215 (1984).
- [20] P. BRYANT, H. SUHL, *Micromagnetic below saturation*, J. Appl. Phys. 66, 9 (1989).
- [21] J. RAABE, R. PULWEY, R. SATTLER, T. SCHWEINBÖCK, J. ZWECK, D. WEISS, *Magnetization pattern of ferromagnetic nanodisks*, J. Appl. Phys. 88, 4437 (2000).
- [22] T. SHINJO, T. OKUNO, R. HASSDORF, K. SHIGETO, T. ONO, *Magnetic vortex core observation in circular dots of permalloy*, Science 289, 930 (2000).
- [23] R. P. COWBURN, M. E. WELLAND, *Micromagnetics of the single-domain state of square ferromagnetic nanostructures*, Phys. Rev. B 58 (14), 9217–9226 (1998).
- [24] K. Y. GUSLIENKO, K. L. METLOV, *Evolution and stability of a magnetic vortex in a small cylindrical ferromagnetic particle under applied field*, Phys. Rev. B 63, 100493(R) (2001).
- [25] O. FRUCHART, J.-C. TOUSSAINT, B. KEVORKIAN, *Micromagnetic model of non-collective magnetization reversal in ultrathin magnetic dots with in-plane uniaxial anisotropy*, Phys. Rev. B 63, 174418 (2001).
- [26] M. GRIMSDITCH, A. BERGER, J. JOHNSON, V. METLUSHKO, B. ILIC, P. NEUZIL, R. KUMAR, *Magnetic stability of nano-particles : The role of dipolar instability pockets*, Europhys. Lett. 54 (6), 813–819 (2001).
- [27] R. HERTEL, H. KRONMÜLLER, *Computation of the magnetic domain structure in bulk permalloy*, Phys. Rev. B 60 (10), 7366–7378 (1999).
- [28] P. O. JUBERT, J. C. TOUSSAINT, O. FRUCHART, C. MEYER, Y. SAMSON, *Flux-closure-domain states and demagnetizing energy determination in sub-micron size magnetic dots*, Europhys. Lett. 63 (1), 135–141 (2003).
- [29] W. RAVE, A. HUBERT, *Magnetic ground state of a thin-film element*, IEEE Trans. Magn. 36, 3886 (2001).
- [30] J. SHI, S. TEHRANI, M. R. SCHEINFELD, *Geometry dependence of magnetization vortices in patterned submicron NiFe elements*, Appl. Phys. Lett. 76 (18), 2588 (2000).
- [31] X. PORTIERA, A. K. PETFORD-LONG, *The formation of 360° domain walls in magnetic tunnel junction elements*, Appl. Phys. Lett. 76 (6), 754–756 (2000).
- [32] W. WERNSDORFER, C. THIRION, N. DEMONCY, H. PASCARD, D. MAILLY, *Magnetisation reversal by uniform rotation (Stoner-Wohlfarth model) in FCC cobalt nanoparticles*, J. Magn. Magn. Mater. 242–245, 132–138 (2002).
- [33] B. VOIGTLÄNDER, G. MEYER, N. M. AMER, *Epitaxial growth of Fe on Au(111) : a scanning tunneling microscopy investigation*, Surf. Sci. Lett. 255, L529–L535 (1991).
- [34] B. VOIGTLÄNDER, G. MEYER, N. M. AMER, *Epitaxial growth of thin magnetic cobalt films on Au(111) studied by scanning tunneling microscopy*, Phys. Rev. B 44 (18), 10354–10357 (1991).
- [35] J. HAUSCHILD, U. GRADMANN, H. J. ELMERS, *Perpendicular magnetization and dipolar antiferromagnetism in double layer nanostripe arrays of Fe(110) on W(110)*, Phys. Rev. B 57, R677 (1998).
- [36] P. GAMBARDILLA, A. DALLMEYER, K. MAITI, M. C. MALAGOLI, W. EBERHARDT, K. KERN, C. CARBONE, *Ferromagnetism in one-dimensional monoatomic metal chains*, Nature 416, 301–304 (2002).
- [37] H. DÜRR, S. DHESI, E. DUDZIK, D. KNABEN, G. VAN DER LAAN, J. GOEDKOOP, F. HILBRECHT, *Spin and orbital magnetization in self-assembled Co clusters on Au(111)*, Phys. Rev. B 59 (2), R701–R704 (1999).

- [38] T. KOIDE, H. MIYAUCHI, J. OKAMOTO, T. SHIDARA, A. FUJIMORI, H. FUKUTANI, K. AMEMIYA, H. TAKESHITA, S. YUASA, T. KATAYAMA, Y. SUZUKI, *Direct Determination of Interfacial Magnetic Moments with a Magnetic Phase Transition in Co Nanoclusters on Au(111)*, Phys. Rev. Lett. 87, 257201 (2001).
- [39] P. OHRESSER, N. B. BROOKES, S. PADOVANI, F. SCHEURER, H. BULOUE, *Magnetism of small Fe clusters on Au(111) studied by X-ray magnetic circular dichroism*, Phys. Rev. B 64, 104429 (2001).
- [40] K. NISHI, H. SAITO, S. SUGOU, J.-S. LEE, *A narrow photoluminescence linewidth of 21 meV at 1.35 μ m from strain-reduced InAs quantum dots covered by In_{0.2}Ga_{0.8}As grown on GaAs substrates*, Appl. Phys. Lett. 74 (8), 1111–1113 (1999).
- [41] C. TÖLKES, P. ZEPPENFELD, M. A. KRZYZOWSKI, R. DAVID, G. COMSA, *Preparation of well-ordered cobalt nanostructures on Au(111)*, Phys. Rev. B 55 (20), 13932–13937 (1997).
- [42] H. TAKESHITA, Y. SUZUKI, H. AKINAGA, W. MIZUTANI, K. ANDO, T. TAKAYAMA, A. ITOH, K. TANAKA, *Magnetization process of a nanometer-scale cobalt dots array formed on a reconstructed Au(111) surface*, J. Magn. Magn. Mater. 165, 38–41 (1997).
- [43] S. PADOVANI, F. SCHEURER, J.-P. BUCHER, *Burrowing self-organized cobalt clusters into a gold substrate*, Europhys. Lett. 45 (3), 327–333 (1999).
- [44] S. PADOVANI, I. CHADO, F. SCHEURER, J.-P. BUCHER, *Transition from zero-dimensional superparamagnetism to two-dimensional ferromagnetism of Co clusters on Au(111)*, Phys. Rev. B. 59 (18), 11887–11891 (1999).
- [45] V. REPAIN, G. BAUDOT, H. ELLMER, S. ROUSSET, *Two-dimensional long-range-ordered growth of uniform cobalt nanostructures on a Au(111) vicinal template*, Europhys. Lett. 58 (5), 730–736 (2002).
- [46] A. R. SANDY, S. G. J. MOCHRIE, D. M. ZEHNER, K. G. HUANG, D. GIBBS, *Structure and phases of the Au(111) surface : X-ray scattering measurements*, Phys. Rev. B 43 (6), 4667 (1991).
- [47] J. V. BARTH, H. BRUNE, G. ERTL, R. J. BEHM, *Scanning tunneling microscopy observations on the reconstructed Au(111) surface : Atomic structure, long-range superstructure, rotational domains, and surface defects*, Phys. Rev. B 42 (15), 9307–9318 (1990).
- [48] J. A. MEYER, I. D. BAIKIE, E. KOPATZKI, R. J. BEHM, *Preferential island nucleation at the elbows of the Au(111) herringbone reconstruction through place exchange*, Surf. Sci. 365, L647–651 (1996).
- [49] C. GOYHENEX, H. BULOUE, J. P. DEVILLE, G. TRÉGLIA, *Atomistic simulations of relaxation and reconstruction phenomena in heteroepitaxy : Co/Au(111)*, Appl. Surf. Sci. 188 (1-2), 134–139 (2002).
- [50] P. OHRESSER, G. GHIRINGHELLI, O. TJERNBERG, N. B. BROOKES, M. FINAZZI, *Magnetism of nanostructures studied by X-ray magnetic circular dichroism : Fe on Cu(111)*, Phys. Rev. B 62 (9), 5803 (2000).
- [51] Q. XIE, A. MADHUKAR, P. CHEN, N. KOBAYASHI, *Vertically self-organized InAs quantum box islands on GaAs(100)*, Phys. Rev. Lett. 75, 2542–2545 (1995).
- [52] C. GOYHENEX, H. BULOUE, J. P. DEVILLE, G. TRÉGLIA, *Pt/Co(0001) superstructures in the submonolayer range : A tight-binding quenched-molecular-dynamics study*, Phys. Rev. B 60, 2781 (1999).
- [53] L. GÓMEZ, C. SLUTZKY, J. FERRÓN, J. DE LA FIGUERA, J. CAMARERO, A. L. VÁZQUEZ DE PARGA, J. J. DE MIGUEL, R. MIRANDA, *Novel Microscopic Mechanism of Intermixing during Growth on Soft Metallic Substrates*, Phys. Rev. Lett. 84 (19), 4397–4400 (2000).
- [54] C. G. ZIMMERMANN, M. YEADON, K. NORDLUND, J. M. GIBSON, R. S. AVERBACK, U. HERR, K. SAMWER, *Burrowing of Co nanoparticles on clean Cu and Ag surfaces*, Phys. Rev. Lett. 83 (6), 1163–1166 (1999).

- [55] V. S. STEPANYUK, D. I. BAZHANOV, A. N. BARANOV, W. HERGERT, P. H. DEDERICH, J. KIRSCHNER, *Strain relief and island shape evolution in heteroepitaxial metal growth*, Phys. Rev. B 62, 15398 (2000).
- [56] D. BABONNEAU, F. PETROFF, J.-L. MAURICE, F. FETTAR, A. VAURÈS, A. NAUDON, *Evidence for a self-organized growth in granular Co/Al₂O₃ multilayers*, Appl. Phys. Lett. 76 (20), 2892–2894 (2000).
- [57] J. EYMERY, *Obtention d'un ordre à longue distance en surface grâce aux contraintes. Apport des collages moléculaires*, Habilitation à diriger des recherches, Université Joseph Fourier - Grenoble 1, Grenoble, <http://membres.lycos.fr/jeymery/> (2003).
- [58] O. FRUCHART, M. KLAUA, J. BARTHEL, J. KIRSCHNER, *Self-organized growth of nanosized vertical magnetic pillars on Au(111)*, Phys. Rev. Lett. 83 (14), 2769–2772 (1999).
- [59] O. FRUCHART, M. KLAUA, J. BARTHEL, J. KIRSCHNER, *Growth of self-organized nanosized Co pillars in Au(111) using an alternating deposition process*, Appl. Surf. Sci. 162-163, 529–536 (2000).
- [60] O. FRUCHART, G. RENAUD, J.-P. DEVILLE, A. BARBIER, F. SCHEURER, M. KLAUA, J. BARTHEL, M. NOBLET, O. ULRICH, J. MANE-MANE, J. KIRSCHNER, *Self-organized growth of nanosized flat dots and vertical magnetic Co pillars on Au(111)*, J. Cryst. Growth 237-239, 2035–2040 (2002).
- [61] P. VARGAS, D. ALTBIR, M. KNOBEL, D. LAROZE, *Thermodynamics of two-dimensional magnetic nanoparticles*, Europhys. Lett. 58 (4), 603–609 (2002).
- [62] O. HENKEL, Phys. Stat. Sol. , 7919 (1964).
- [63] O. FRUCHART, P.-O. JUBERT, C. MEYER, M. KLAUA, J. BARTHEL, J. KIRSCHNER, *Vertical self-organization of epitaxial magnetic nanostructures*, J. Magn. Magn. Mater. 239, 224–227 (2002).
- [64] M. SCHMIDBAUER, T. WIEBACH, H. RAIDT, M. HANKE, R. KÖHLER, H. WAWRA, *Ordering of self-assembled Si_{1-x}Ge_x islands studied by grazing incidence small-angle x-ray scattering and atomic force microscopy*, Phys. Rev. B 58 (16), 10523–10531 (2001).
- [65] J. STANGL, A. DANIEL, V. HOLÝ, T. ROCH, G. BAUER, I. KEGEL, T. H. METZGER, T. WIEBACH, O. G. SCHMIDT, K. EBERL, *Strain and composition distribution in uncapped SiGe islands from X-ray diffraction*, Phys. Rev. B 79 (10), 1474 (2002).
- [66] H. A. DÜRR, E. DUDZIK, S. S. DHESI, J. B. GOEDKOOP, G. VAN DER LAAN, M. BELAKHOVSKY, C. MOCUTA, A. MARTY, *Chiral Magnetic Domain Structures in Ultrathin FePd Films*, Science 284, 2166–2168 (1999).
- [67] N. MARSOT, R. BELKHOUE, F. SCHEURER, B. BARTENLIAN, N. BARRETT, M. A. DELAUNAY, C. GUILLOT, *Characterization of the Co/Au(111) interface by core-level photoemission electron spectroscopy*, Surf. Sci. 377-379, 225–228 (1997).
- [68] N. MARSOT, *Croissance et structure des couches minces magnétiques Co/Au*, Ph.D. thesis, Université Paris XI, Paris (1999).
- [69] M. SPECKMANN, H. P. OEPEN, H. IBACH, *Magnetic domain structures in ultrathin Co/Au(111) : on the influence of film morphology*, Phys. Rev. Lett. 75 (10), 2035–2038 (1995).
- [70] H. ARDHUIN, E. SNOECK, M. J. CASANOVE, *Epitaxial growth of magnetic Au/Co/Au sandwiches studied by TEM*, J. Cryst. Growth 182, 394–402 (1997).
- [71] N. MARSOT, R. BELKHOUE, H. MAGNAN, P. LEFÈVRE, C. GUILLOT, D. CHANDESIS, *Structure and local order in Co magnetic thin films on Au(111) : a surface EXAFS study*, Phys. Rev. B 59 (4), 3135–3138 (1999).
- [72] J. C. GONZÁLEZ, R. MAGALHÃES-PANIAGO, W. N. RODRIGUES, A. MALACHIAS, M. V. B. MOREIRA, A. G. DE OLIVEIRA, I. MAZZARO, C. CUSATIS, T. H. METZGER, J. PEISL, *X-ray determination of vertical ordering of InAs quantum dots in InAs/GaAs multilayers*, Appl. Phys. Lett. 78, 1056–1058 (2001).

- [73] B. CROSET, Y. GIRARD, G. PRÉVOT, M. SOTTO, Y. GARREAU, R. PINCHAUX, M. SAUVAGE-SIMKIN, *Measuring Surface Stress Discontinuities in Self-Organized Systems with X Rays*, Phys. Rev. Lett. 88 (5), 056103/1–4 (2002).
- [74] G. RENAUD, R. LAZZARI, C. REVENANT, A. BARBIER, M. NOBLET, O. ULRICH, F. LE-ROY, J. JUPILLE, Y. BORENSZTEIN, C. R. HENRY, J.-P. DEVILLE, F. SCHEURER, J. MANE-MANE, O. FRUCHART, *Real-Time Monitoring of Growing Nanoparticles*, Science 300 (5624), 1416–1419 (2003).
- [75] O. FRUCHART, G. RENAUD, A. BARBIER, M. NOBLET, O. ULRICH, J.-P. DEVILLE, F. SCHEURER, J. MANE-MANE, V. REPAIN, G. BAUDOT, S. ROUSSET, *X-ray super-cell crystallography of self-organized Co/Au(111) deposits*, Europhys. Lett. 63 (1), 135–141 (2003).
- [76] Y. W. ZHANG, A. F. BOWER, *Three-dimensional analysis of shape transitions in strained-heteroepitaxial islands*, Appl. Phys. Lett. 78 (18), 2706–2708 (2001).
- [77] U. GRADMANN, G. WALLER, *Periodic lattice distortions in epitaxial films of Fe(110) on W(110)*, Surf. Sci. 116, 539 (1982).
- [78] H. BETHGE, D. HEUER, C. JENSEN, K. RESHÖFT, U. KÖHLER, *Misfit-related effects in the epitaxial growth of iron on W(110)*, Surf. Sci. 331–333, 878–884 (1995).
- [79] P. TURBAN, P. MÜLLER, L. LAPENA, S. ANDRIEU, *Stress and strain in two-dimensional epitaxial growth : nucleation density effect on the in-plane lattice spacing oscillations*, Appl. Surf. Sci. 188 (1–2), 97–102 (2002).
- [80] D. SANDER, S. OUAZI, V. S. STEPANYUK, D. I. BAZHANOV, J. KIRSCHNER, *Stress oscillations in a growing metal film*, Surf. Sci. 512 (3), 281–286 (2002).
- [81] J. HAUSCHILD, U. GRADMANN, H. J. ELMERS, *Perpendicular magnetization and dipolar antiferromagnetism in double layer nanostripe arrays of Fe(110) on W(110)*, Appl. Phys. Lett. 72 (24), 3211–3213 (1998).
- [82] P.-O. JUBERT, O. FRUCHART, C. MEYER, *Magnetic properties of self-organized Fe nanostripes epitaxially grown on Mo(110)*, J. Magn. Magn. Mater. 242–245 (1), 565–567 (2002).
- [83] O. FRUCHART, M. ELEOUI, J. VOGEL, P.-O. JUBERT, A. LOCATELLI, A. BALLESTRAZZI, *Nanometers-thick self-organized Fe stripes : bridging the gap between surfaces and magnetic materials*, condmat/0309681, accepted for publication in Appl. Phys. Lett.
- [84] O. FRUCHART, W. WERNSDORFER, J.-P. NOZIÈRES, D. GIVORD, F. ROUSSEAUX, D. MAILLY, D. DECANINI, F. CARCENAC, *Arrays of Ultrathin Fe(110) 200nm-wide Particles Investigated by MicroSQUID Measurements*, J. Magn. Magn. Mater. 198–199 (1), 228–230 (1999).
- [85] O. FRUCHART, J.-P. NOZIÈRES, W. WERNSDORFER, D. GIVORD, F. ROUSSEAUX, D. DECANINI, *Enhanced coercivity in sub-micrometer-sized ultrathin epitaxial dots with in-plane magnetization*, Phys. Rev. Lett. 82 (6), 1305–1308 (1999).
- [86] J.-E. WEGROWE, O. FRUCHART, J.-P. NOZIÈRES, D. GIVORD, F. ROUSSEAUX, D. DECANINI, *Arrays of ultrathin monocrystalline Fe submicrometer-sized particles : Néel-Brown relaxation and activation volume*, J. Appl. Phys. 86 (2), 1028–1034 (1999).
- [87] W. RAVE, K. RAMSTÖCK, A. HUBERT, *Corners and nucleation in micromagnetics*, J. Magn. Magn. Mater. 183, 329–333 (1998).
- [88] A. HUBERT, W. RAVE, *Systematic Analysis of Micromagnetic Switching Processes*, Phys. Stat.Sol. (b) 211 (2), S815–829 (1999).
- [89] R. P. COWBURN, M. E. WELLAND, *Analytical micromagnetics of near single domain particles*, J. Appl. Phys. 86 (2), 1035–1040 (1999).
- [90] N. W. ASHCROFT, N. D. MERMIN, Solid State Physics, Harcourt Brace & Co, London, 1976.

- [91] I. S. GRADSHTEYN, I. M. RYZHIK, Table of Integrals, Series, and Products, 5th Edition, Academic Press, London, 1994.
- [92] R. W. CHANTRELL, N. Y. AYOUB, J. POPPLEWELL, *The low field susceptibility of a textured superparamagnetic system*, J. Magn. Magn. Mater. 53, 199–207 (1985).
- [93] D. W. TAYLOR, *Analyse expérimentale des mécanismes de coercitivité de plusieurs aimants permanents Terre Rare-Fer-Bore*, Ph.D. thesis, Université Joseph Fourier, Grenoble (1992).
- [94] P. TENAUD, *Analyse expérimentale des mécanismes de coercitivité dans les aimants Nd-Fe-B frittés*, Ph.D. thesis, Université Joseph Fourier Grenoble I, Grenoble (1988).
- [95] J. MORITZ, **communication orale, non publié.**
- [96] M. BELEGGA, M. DE GRAEF, *On the computation of the demagnetization tensor field for an arbitrary particle shape using a Fourier space approach*, J. Magn. Magn. Mater. 263, L1–9 (2003).
- [97] E. C. STONER, E. P. WOHLFARTH, *A Mechanism of Magnetic Hysteresis in Heterogeneous Alloys*, Phil. Trans. Royal Soc. London A240, 599–642 (1948).
- [98] E. C. STONER, E. P. WOHLFARTH, *reprint of 1948 'A Mechanism of Magnetic Hysteresis in Heterogeneous Alloys'*, IEEE Trans. Magn. 27 (4), 3469–3518 (1991).
- [99] L. NÉEL, *Influence des fluctuations thermiques sur l'aimantation de grains ferromagnétiques très fins*, C. R. Acad. Sci. 228, 664–668 (1949).
- [100] A. THIAVILLE, *Extensions of the geometric solution of the two dimensional coherent magnetization rotation model*, J. Magn. Magn. Mater. 182, 5–18 (1998).
- [101] E. C. STONER, Phil. Mag. 36, 803 (1945).
- [102] P. RHODES, G. ROWLANDS, *Demagnetizing energies of uniformly magnetized rectangular blocks*, Proc. Leeds Phil. Liter. Soc. 6, 191 (1954).
- [103] G. ROWLANDS, Ph.D. thesis, University of Leeds, Leeds (1956).
- [104] P. RHODES, G. ROWLANDS, D. R. BIRCHALL, Phys. Soc. Japan 17, 543 (1956).
- [105] G. ROWLANDS, *On the calculation of acoustic radiation impedance of polygonal-shaped apertures*, J. Acoust. Soc. Am. 92 (5), 2961–2963 (1992).
- [106] L. NÉEL, *Les lois de l'aimantation et de la subdivision en domaines élémentaires d'un monocristal de fer*, J. Phys. Rad. 5, 241–279 (1944).
- [107] A. DESIMONE, R. V. KOHN, S. MÜLLER, F. OTTO, R. SCHÄFER, *Two-dimensional modelling of soft ferromagnetic films*, Proc. Roy. Soc. Lond. A 457, 2983–2991 (2001).
- [108] J. M. COWLEY, Diffraction physics, North-Holland Publishing Company, 1975.
- [109] W. G. CULLEN, P. N. FIRST, *Island shapes and intermixing for submonolayer nickel on Au(111)*, Surf. Sci. 420, 53–64 (1999).
- [110] P. OHRESSER, J. SHEN, J. BARTHEL, M. ZHENG, C. MOHAN, M. KLAUA, J. KIRSCHNER, *Growth, structure, and magnetism of fcc Fe ultrathin films on Cu(111) by pulsed laser deposition*, Phys. Rev. B 59 (5), 3696–3706 (1999).
- [111] N. SRIDHAR, J. M. RICKMAN, D. J. SROLOVITZ, *Multilayer film stability*, J. Appl. Phys. 82 (10), 4852 (1997).
- [112] J. ROTHMAN, *Étude des propriétés structurales, électroniques et magnétiques de couches minces épitaxiées de Cérium*, Ph.D. thesis, Université Joseph Fourier, Grenoble (1999).
- [113] W. WULFHEKEL, F. ZAVALICHE, F. PORRATI, H. OEPEN, J. KIRSCHNER, *Nano-patterning of magnetic anisotropy by controlled strain relief*, Europhys. Lett. 49, 651–657 (2000).
- [114] G. WEDLER, J. WALZ, A. GREUER, R. KOCH, *Stress dependance of the magnetoelastic coupling constants B_1 and B_2 of epitaxial Fe(001)*, Phys. Rev. B 60 (16), R11313 (1999).

Nanomagnétisme : des domaines confinés au magnétisme moléculaire

O. Fruchart, E. Bonet, J.-C. Toussaint et W. Wernsdorfer

Laboratoire Louis Néel, Grenoble.

Introduction

Le nanomagnétisme, étudié depuis déjà plusieurs décennies, subit un nouvel essor depuis le milieu des années 1990. Cet essor a été favorisé par la pression technologique liée à l'enregistrement magnétique (têtes de lecture/écriture et media), aux capteurs de champ, aux mémoires RAM magnétiques (MRAM, qui sont sur le point d'être commercialisées) et au champ plus prospectif de la spintronique, qui vise à intégrer des éléments magnétiques en électronique pour tirer parti du spin de l'électron, plus seulement de sa charge. Pratiquement, le nanomagnétisme a pu considérablement progresser grâce aux développements récents de techniques de fabrication et de mesures ultrasensibles, notamment des sondes locales.

Indépendamment des besoins technologiques qui motivaient le nouvel essor du nanomagnétisme, des propriétés originales dans les nano-objets magnétiques sont apparues, et d'ailleurs pas toujours là où on les attendait, stimulant en retour une approche fondamentale. Nous nous intéressons pour notre part à de telles études fondamentales, dont nous donnons ici quelques exemples, parcourus par taille décroissante, de 10^9 à environ $10 m_B$, m_B étant le magnéton de Bohr, moment magnétique élémentaire porté par un spin électronique. Certains effets que nous observons existent à l'échelle macroscopique, mais peuvent être masqués par des effets extrinsèques : moyennage statistique, défauts et microstructure des matériaux, etc. Les objets auxquels nous nous intéressons peuvent être vus comme des micro-laboratoires dans lesquels nous pouvons isoler et étudier des effets intrinsèques.

Domaines magnétiques à l'échelle du micromètre

Sous l'effet des champs dipolaires internes, la plupart des matériaux magnétiques se divisent spontanément en nombreux domaines magnétiques séparés par des parois (voir encadré 1). C'est le cas par exemple des noyaux de Fer doux des électro-aimants qui perdent toute aimantation macroscopique

en l'absence de courant. La forme et la taille d'équilibre des domaines résultent d'une compétition entre l'énergie d'échange, qui tend à limiter le nombre de parois et donc augmenter la taille des domaines, et l'énergie dipolaire qui favorise au contraire une subdivision fine en domaines. Selon les matériaux et les géométries, la taille d'équilibre des domaines peut varier de quelques dizaines de nanomètres à plusieurs dizaines de micromètres. Imaginons maintenant un objet magnétique dont la taille est de l'ordre de grandeur de la taille d'équilibre des domaines. Les domaines vont alors être *confinés* dans cet objet ; leur nombre et leur forme dépendront intimement de la taille ainsi que de la forme de l'objet. Ce problème est loin d'être une question abstraite car de petites structures magnétiques sont maintenant introduites industriellement dans des dispositifs. Ces nouvelles perspectives sont apparues durant les années 90. Elles ont amené de nombreuses équipes internationales à travailler sur le problème du confinement des domaines à l'échelle micronique

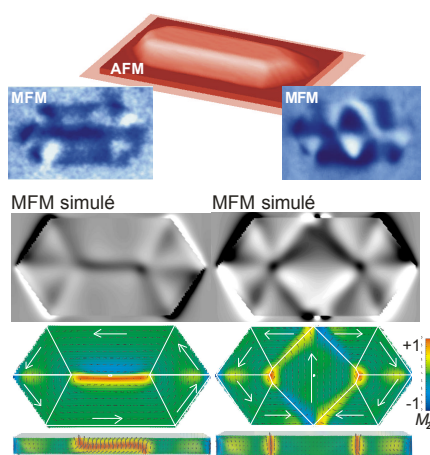


Figure 1 : images topographique AFM (orange) et magnétique MFM (bleu) de plots auto-assemblés de longueur $1 \mu m$. Le contraste MFM, lié aux champs dipolaires issus des plots, peut être compris à l'aide de simulations numériques (coupe 'vue de dessus' à mi-hauteur des plots, et en bas vue en coupe, la couleur codant la composante verticale de l'aimantation, faible en moyenne ; le contraste MFM calculé à partir de ces simulations figure en gris). Des structures 'Bloch' (gauche) et 'diamant' (droite) sont observées, qui sont en bon accord avec des constructions de Van den Berg (blanc, voir figure 2).

durant ces années. Sur le plan français citons notamment des groupes du LPS et de l'IEF (Orsay), de l'IPCMS (Strasbourg), du CEA/DRFMC et du LLN (Grenoble).

Les systèmes sub-microniques sont couramment fabriqués en combinant successivement deux techniques. D'un côté le dépôt d'une couche mince, le plus souvent amorphe ou polycristalline, sur une surface centimétrique. D'un autre côté l'utilisation de procédés de lithographie et gravure, pour définir des motifs micrométriques. Cette approche est versatile, mais produit des structures imparfaites (microstructure cristalline, rugosité et défauts de surface) qui peuvent compliquer la compréhension des phénomènes magnétiques. Au laboratoire Louis Néel (LLN) nous avons développé la fabrication de plots nanométriques tridimensionnels de Fer monocristallin, obtenus spontanément lors de la croissance par auto-

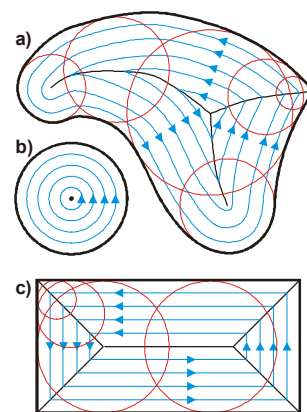


Figure 2 : Exemples de la construction géométrique dite de Van den Berg, qui permet de déterminer la configuration magnétique d'un élément plat constitué de matériau doux. Les traits noirs fins représentent les singularités (parois et vortex), déterminées comme le lieu des centres de tous les cercles (en rouge) inscrits en au moins deux points dans le contour de l'élément. Les traits bleus représentent la direction locale de l'aimantation, en tout point perpendiculaire aux rayons, issus des points tangents des cercles mentionnés ci-dessus. En utilisant localement un repère d'axes respectivement parallèles à ces rayons et à l'aimantation, on se convainc de la vérification de la condition $\text{div } \mathbf{M} = 0$, ainsi que de l'absence de charges sur les singularités

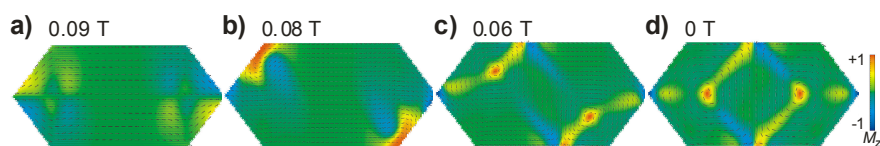


Figure 3 : Simulation numérique de la nucléation des singularités magnétiques dans un plot micrométrique. Un fort champ magnétique extérieur H , appliqué parallèlement à la grande longueur du plot, sature quasiment son aimantation $M(r)$. De manière habituelle en micro-magnétisme, H est désaxé d'une fraction de degré de manière à abaisser la symétrie du problème et éviter un blocage numérique. L'intensité de H est alors progressivement réduite, conduisant aux événements suivants a) M s'aligne progressivement le long des bords b) Deux zones fortement non homogènes se forment symétriquement c) Ces deux zones se détachent simultanément du bord, et prennent la forme de vortex. d) Lorsque H est progressivement annulé, les vortex se déplacent pour finalement conduire à la configuration 'diamant' (Cf figure 1).

assemblage sous ultra-haut vide en optimisant des processus de démouillage (figure 1). Nous espérons ainsi minimiser les effets extrinsèques et disposer de structures modèles, avec pour but de mettre en évidence des processus fondamentaux liés aux paramètres intrinsèques d'un système nanoscopique (taille finie, forme, aimantation, anisotropie).

L'outil le plus versatile pour l'observation de domaines magnétiques aux échelles 50–1000nm est le microscope à force magnétique (MFM en anglais). Son principe, dérivé du microscope à force atomique (AFM en anglais), consiste à cartographier la force agissant sur une pointe magnétique survolant la surface de l'échantillon, à une altitude (30–100nm) où les forces de Van der Waals sont atténuées et essentiellement les champs de fuite dipolaires issus de l'échantillon sont ressentis.

La figure 1 montre deux configurations en domaines magnétiques couramment observées sur les plots auto-assemblés, ainsi que leur reproduction par des simulations micromagnétiques. Pour comprendre la forme de ces configurations, pourquoi deux sont observées et comment elles apparaissent, interrogeons-nous sur les contraintes que subissent des domaines confinés. La formule (2) de l'encadré 1 montre que pour minimiser son énergie dipolaire une configuration en domaines tend à éviter la formation de 'pôles magnétiques', soit en termes d'équations $-\text{div}M = 0$ (charges de volume) et $M \cdot n = 0$ sur le contour (charges de surface). Ce problème a été résolu en 1984 dans le cas simplifié d'un élément infiniment plat, d'anisotropie nulle (matériau doux) et d'échange nul (ce qui revient à négliger l'énergie de paroi, c.-à-d. à considérer un objet de taille latérale très grande

devant la largeur de paroi). Une construction géométrique élémentaire dite de Van den Berg (VdB), illustrée sur la figure 2, permet alors de déterminer une répartition de domaines exempte de charges. Les domaines sont séparés par des singularités qui sont des lignes (parois de domaines) ou des points (vortex). Un point intéressant à noter est la non-unicité de la solution. Ainsi si l'on scinde par l'esprit le système, et que l'on applique à chaque sous-système la construction de VdB, la configuration résultante est également exempte de charges. Dans le cadre du modèle où l'énergie d'échange est négligée, les singularités ont une énergie nulle, et toutes les sous-configurations ont la même énergie. Cette dégénérescence se retrouve dans d'autres problèmes de la physique impliquant des équations différentielles sur des champs de vecteurs, comme par exemple les écoulements laminaires.

Bien que les plots de Fer sont *a priori* très éloignés des conditions d'applicabilité de ce modèle, les deux configurations observées sont très bien reproduites par des constructions de VdB (figure 1). Cependant du fait de la petite taille des plots et de leur forme tridimensionnelle, l'énergie des singularités ne peut plus être négligée. Ce problème ne pouvant plus être résolu analytiquement, la simulation numérique est alors utilisée, et montre que la dégénérescence est levée : la configuration dite de Bloch est d'énergie plus faible que celle dite 'diamant'. Pourquoi observe-t-on alors en pratique les deux configurations ? Un élément de réponse est suggéré par des simulations numériques (figure 3). En partant de la saturation sous fort champ magnétique, puis en réduisant le champ, la symétrie du plot conduit à la nucléation simultanée de deux vortex, qui mèneront à la configuration 'diamant'. Nous avons montré

par d'autres simulations que certaines brisures de symétrie entre les différents centres de nucléation (géométrie, champ appliqué) étaient susceptibles de privilégier la rentrée d'un seul vortex, qui se déforme alors pour prendre l'aspect d'une paroi, et aboutir à une configuration 'Bloch' (on peut se convaincre sur les vues simulées de la figure 1 qu'un vortex et une paroi ont la même topologie). Ceci montre qu'une configuration magnétique n'est pas sélectionnée uniquement en raison de son énergie, mais que son apparition résulte également de la symétrie du problème, qui peut fournir un ou plusieurs points d'entrée de vortex. Dans un vrai plot une brisure de symétrie peut être d'origine géométrique, environnementale (champ dipolaire de plots environnants), de fluctuations thermiques. Il est fascinant de constater (et inquiétant si l'on espère résoudre ce problème) que bien que les structures de la figure 1 soient les plus simples envisageables, chacune d'entre elle est déjà 8 fois dégénérée, du fait des différentes combinaisons de vorticités de l'aimantation, et de l'orientation 'up' ou 'down' du cœur de vortex.

Pour conclure sur l'intérêt des nanoparticules multi-domaines et leur ouvrir des perspectives, il est utile de rappeler que nous sommes loin d'être les premiers à étudier des domaines confinés, qui sont observés et analysés depuis plusieurs décennies. Cependant jusqu'à récemment ces études se situaient à des échelles spatiales très supérieures aux tailles de paroi et de vortex. Elles ignoraient donc leur structure interne, et ne pouvaient que constater leurs nucléation et annihilation près des bords, sans les comprendre microscopiquement. Aujourd'hui les techniques d'observation et les capacités de simulation se recouvrent dans la gamme 50–1000nm. Cette conjonction ouvre des perspectives de compréhension, à partir de systèmes modèles présentant un nombre de degrés de liberté restreint, des mécanismes de nucléation/annihilation, et notamment de déterminer si les facteurs dominants sont intrinsèques (forme générale, taille de particule, aimantation, etc.) ou bien extrinsèques (microstructure cristalline, rugosité de surface, etc.). Les nanostructures multi-domaines constituent ainsi des micro-laboratoires pour attaquer un problème central des matériaux magnétiques, qui est de comprendre le rôle de l'histoire magnétique d'un système sur son état à un instant donné.

Encadré 1 – Les énergies et longueurs caractéristiques en magnétisme

La configuration des moments d'un système magnétique, appelée configuration micromagnétique, est influencée par essentiellement quatre types d'énergies, que nous rappelons ici.

Énergie d'échange

C'est l'énergie responsable de l'ordre magnétique, qui tire son origine de l'énergie électrostatique et du principe d'exclusion de Pauli. Dans le modèle du magnétisme localisé, chaque atome d'un matériau magnétique possède un moment de module fixe pouvant fluctuer en direction. À haute température, ces moments fluctuent indépendamment les uns des autres et l'aimantation moyenne est nulle, alors qu'en dessous de la température de Curie l'échange prend le dessus sur la température, et permet la mise en ordre magnétique. Dans l'approximation des milieux continus on peut écrire :

$$E_e = A \int dV [(\nabla m_x)^2 + (\nabla m_y)^2 + (\nabla m_z)^2] \quad (1)$$

où m_x , m_y et m_z sont les composantes de l'aimantation réduite $\mathbf{m} = \mathbf{M}/M_s$, $M_s = |\mathbf{M}|$ et A est la constante d'échange. Dans cette formule le gradient nous rappelle que l'énergie d'échange est à très courte portée, de quelques plus proches voisins.

Énergie dipolaire

L'énergie dipolaire est l'énergie magnétostatique d'interaction entre tous les moments atomiques $\mathbf{S}_i$ d'un matériau. Bien qu'étant négligeable à l'échelle atomique par rapport à l'énergie d'échange, l'énergie dipolaire joue un rôle important dans les systèmes macroscopiques car il s'agit d'une interaction à longue portée. On peut l'écrire

$$E_d = -\frac{1}{2} m_0 \int dV \mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_d = \frac{1}{2} m_0 \int dV \mathbf{H}_d^2 \quad (2)$$

où $\mathbf{H}_d$ est le champ magnétique créé par l'échantillon sur lui-même ; le facteur $1/2$ nous rappelle qu'il s'agit d'une interaction mutuelle. Comme $\mathbf{B} = m_0(\mathbf{H} + \mathbf{M})$ et $\text{div} \mathbf{B} = 0$, on tire directement $\text{div} \mathbf{H}_d = -\text{div} \mathbf{M}$. Partant d'une configuration magnétique donnée on utilise alors couramment l'analogie avec l'électrostatique ($\text{div} \mathbf{E} = \rho / \epsilon_0$) pour déterminer $\mathbf{H}_d$, justifiant l'appellation de 'charge magnétique' de volume pour $-\text{div} \mathbf{M}$, et charge de surface pour $\mathbf{M} \cdot \mathbf{n}$. À partir de la seconde expression de E_d on voit que pour minimiser E_d il faut éviter les charges magnétiques. En particulier, pour éliminer les charges de surface il faut qu'à la périphérie de l'échantillon l'aimantation soit toujours parallèle à la surface, ce qui exclut l'aimantation uniforme. L'énergie dipolaire va donc être en compétition avec l'énergie d'échange, d'une manière que l'on peut appréhender dimensionnellement. Pour un échantillon de taille L , l'énergie d'échange sera d'ordre $A(p/L)^2 L^3 \sim AL$ et l'énergie dipolaire d'ordre $m_0 M_s^2 L^3$. L'identification des deux échelles énergie fait apparaître une longueur caractéristique $l = p \sqrt{2A/(m_0 M_s^2)}$. Quand $L \gg l$ l'échantillon va spontanément se subdiviser en domaines dits *domaines de Weiss*. L'aimantation est homogène dans un domaine mais son orientation varie d'un domaine à l'autre, deux domaines voisins étant séparés par des régions dites *parois de Bloch* où l'aimantation varie rapidement entre les orientations des deux domaines. Inversement, dans le cas d'un macrospin on montre en magnétostatique que E_d s'exprime sous la forme d'une anisotropie magnétique supplémentaire, d'ordre toujours exactement égal à deux, et qui favorise l'alignement du macrospin le long de la plus grande direction de l'échantillon.

Énergie d'anisotropie

Cette énergie, qui influence notamment la largeur des parois entre domaines magnétiques, est liée à l'ordre cristallin. Du fait qu'un atome portant un moment magnétique $\mathbf{S}$ est entouré d'une distribution anisotrope de charge électrique, son énergie magnétique dépend de l'orientation de $\mathbf{S}$ du fait de l'interaction spin-orbite. Cette énergie, qui respecte les symétries du cristal, se développe couramment en puissances paires des cosinus directeurs de l'aimantation par rapport aux axes du cristal. Dans le cas le plus simple d'une anisotropie uniaxiale d'ordre 2 l'énergie magnéto-cristalline peut s'écrire :

$$E_a = -K \int dV \cos^2 q \quad (3)$$

où q est l'angle que fait l'aimantation avec un axe privilégié du cristal, dit *axe de facile aimantation*. L'anisotropie tend alors à orienter les domaines de Weiss dans les directions de facile aimantation du cristal, et à comprimer les parois de Bloch entre les domaines. Une analyse dimensionnelle comparant énergies d'échange et d'anisotropie donne la largeur des parois de Bloch

$$d = p \sqrt{A/K}.$$

Énergie Zeeman

Ce dernier terme représente l'interaction entre le système étudié et un champ extérieur $\mathbf{H}$. Elle s'écrit

$$E_Z = -m_0 \int dV \mathbf{M} \cdot \mathbf{H} \quad (4)$$

et tend donc à aligner les moments magnétiques dans la direction et le sens du champ $\mathbf{H}$. En pratique c'est par l'application de $\mathbf{H}$ que l'on agit sur un système magnétique. L'expérience la plus courante consiste à réaliser un *cycle d'hystérésis* dans une direction donnée, en représentant $\mathbf{M} \cdot \mathbf{u}$ en fonction de $\mathbf{H} = H\mathbf{u}$.

Il est important de noter que la non-localité et non-linéarité des équations micromagnétiques, notamment inhérentes à l'énergie dipolaire, empêchent toute résolution générale. Seul un très petit nombre de problèmes, très éloignés de l'immense majorité des situations réelles, ont pu être résolus analytiquement (voir encadré 2). Pour le cas général, on fait appel à des simulations en différences ou éléments finis.

Macrospins : renversement cohérent de l'aimantation

Dans le paragraphe précédent nous discutons d'objets qui, du fait de leur taille micronique, ne peuvent contenir qu'un nombre très réduit de domaines magnétiques. Si l'on diminue encore la taille des échantillons pour atteindre 20 à 3 nm (dimensions de l'ordre de quelques l), les parois et vortex deviennent trop coûteux en énergie d'échange. Dans la configuration d'équilibre tous les spins restent alors quasiment parallèles entre eux; on parle de configuration monodomaine, ou encore de macrospin. L'orientation qu'adopte le macrospin est une de celles qui minimisent $E_a + E_d + E_z$ (voir encadré 1). Pratiquement, on modifie l'orientation du macrospin par l'application d'un champ extérieur $\mathbf{H}$. Quand $\mathbf{H}$ est lentement balayé, l'aimantation varie de façon continue sauf pour certains champs dits *champs critiques* ou champs de saut $\mathbf{H}_s$, pour lesquels on observe des sauts d'aimantation.

Sur le plan fondamental l'intérêt de disposer d'un macrospin est évident : le problème étant ramené à un degré de liberté unique, la non-localité disparaît

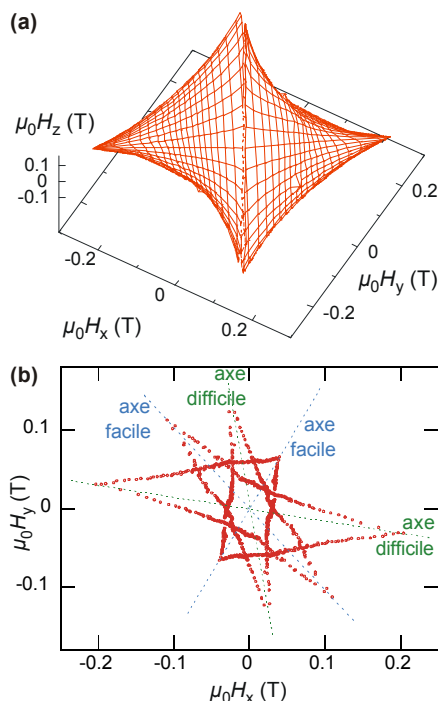


Figure 4 (a) surface critique en forme d'astroïde de révolution mesurée sur une particule de BaFeO de 20nm de diamètre, révélant une anisotropie essentiellement uniaxiale d'ordre 2 (b) coupe d'une surface critique mesurée sur une particule de cobalt cubique centré. Les croisements des nappes de l'astroïde trahissent la présence de termes d'anisotropie d'ordre élevé.

Encadré 2 – L'astroïde de Stoner-Wohlfarth

Le modèle le plus simple qui tente de décrire le renversement d'aimantation est le modèle de rotation cohérente. Il a été proposé en 1948 par E.C. Stoner et E.P. Wohlfarth. Dans ce modèle à deux dimensions, une particule magnétique possède un moment $\mathbf{M} = vM_S \mathbf{m}$ constant en module ($|\mathbf{m}| = 1$). L'angle q entre le moment et l'axe x de facile aimantation est le seul degré de liberté du système (figure 5a). En présence d'un champ extérieur $\mathbf{H}$, l'énergie est

$$E = -K \cos^2 q - m_0 v M_S \mathbf{H} \cdot \mathbf{m} \quad (5)$$

où le premier terme représente l'anisotropie totale, d'origine dipolaire et/ou cristalline (voir encadré 1). Selon les valeurs de $\mathbf{H}$, $E(q)$ possède deux ou bien un seul minima (figure 5b). Dans l'espace des champs $\mathbf{H}$, la frontière entre ces deux régions a pour équation

$$h_x^{2/3} + h_y^{2/3} = 1 \quad (6)$$

où h_x et h_y sont les coordonnées du champ réduit $\mathbf{h} = m_0 M_S \mathbf{H} / 2K$. C'est là l'équation de l'astroïde, dite de Stoner-Wohlfarth, et qui est représentée en figure 5c. $E(q)$ a deux minima quand le champ est à l'intérieur et un seul quand le champ est à l'extérieur. La signification physique de cette courbe est la suivante. Partant d'un état donné du macrospin, lorsque le champ est balayé les minima évoluent de façon continue et le système, à $T = 0K$, suit de façon quasi-statique le minimum dans lequel il se trouve. Quand $\mathbf{H}$ traverse l'astroïde de l'intérieur vers l'extérieur, l'un des deux minima disparaît. Si c'est celui dans lequel se trouvait le système, celui-ci rejoint de façon discontinue (en fait, dans un temps de l'ordre de la nanoseconde) l'autre minimum : c'est un saut d'aimantation. Ainsi, l'astroïde peut être déterminée expérimentalement comme le lieu des champs où se produit un saut d'aimantation.

La symétrie de l'astroïde par rapport à la droite $y = x$ est trompeuse. L'énergie E n'est pas conservée par cette symétrie, mais elle est changée en $-E$. L'astroïde n'est ainsi qu'une signature parmi d'autres du processus de renversement, mais ne le caractérise pas entièrement. Par exemple près de l'axe facile le saut d'aimantation a une grande amplitude alors que cette amplitude tend vers zéro quand on se rapproche de l'axe difficile. De plus la courbe expérimentale perd sa symétrie dès que le système n'est plus exactement assimilable à un macrospin, c'est à dire pour une particule un peu trop grande, et a fortiori pour l'immense majorité des systèmes réels et des matériaux. Dans ce cas les champs critiques deviennent plus petits au voisinage de l'axe facile qu'au voisinage de l'axe difficile. Dans ces cas le modèle de Stoner-Wohlfarth ne s'applique plus, et il faut développer des modèles dits de nucléation-propagation (nucléation d'un petit domaine renversé, suivie de son expansion par la propagation d'un paroi de domaine), en relation avec la structure du matériau.

Par abus de langage on appelle souvent astroïde la surface critique des champs de saut, même lorsque cette courbe ne ressemble pas à celle de la figure 5c.

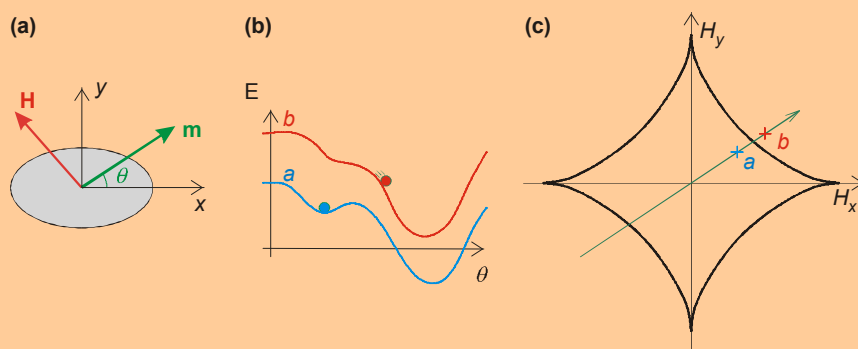


Figure 5 : a) Sous l'effet du champ $\mathbf{H}$, l'aimantation réduite $\mathbf{m}$ s'écarte d'un angle q de l'axe facile x . b) suivant la valeur de $\mathbf{H}$, l'énergie $E(q)$ présente un ou deux minima c) lorsque $\mathbf{H}$ traverse l'astroïde de l'intérieur vers l'extérieur, l'un des minima disparaît. Si l'aimantation se trouvait dans ce minimum il se produit un saut d'aimantation.

des équations, permettant de prédire analytiquement le renversement de l'aimantation du macrospin (théorie dite de Stoner-Wohlfarth, voir encadré 2). On constate cependant que l'immense

majorité des systèmes magnétiques présentent un comportement très différent de cette loi. Ceci tient d'une part à la difficulté de fabriquer des particules très petites et exemptes de défauts,

d'autre part aux effets de brouillage résultant de la mesure macroscopique d'un grand nombre de particules différentes. C'est pourquoi la loi *a priori* la plus simple du renversement d'aimantation, édictée vers la fin des années 40, n'a pu être confirmée expérimentalement que très récemment.

C'est en mesurant individuellement des particules de haute qualité que cette loi a enfin été confirmée, au LLN. Nous avons mesuré l'ensemble des champs critiques de particules nanométriques préparées par divers moyens physiques ou chimiques : trempe ultrarapide par jet d'Hélium d'un plasma obtenu par évaporation laser, plasma d'arc électrique avec électrodes de carbone dopées, préparation chimique de micelles inverses, etc. Notre technique de mesure, fondée sur un capteur à SQUID de taille micrométrique (voir encadré 3), permet de caractériser une particule unique (celle qui est la mieux couplée avec le dispositif), et de dresser la carte de ses champs critiques dans les trois directions de l'espace. Ce lieu est une surface que l'on appelle *surface critique* ; elle est une signature de l'anisotropie magnétique.

La figure 4a montre la carte des champs de saut d'une particule de Ferrite de Baryum de 20nm. Cette surface s'interprète en première approximation comme la surface de révolution engendrée par une astéroïde tournant autour de son axe facile, et révèle une anisotropie uniaxiale d'ordre 2 (voir encadré 2). Ce type d'anisotropie est celui le plus couramment observé dans les nanoparticules, même pour des matériaux présentant une anisotropie d'ordre supérieur à l'état massif. Ceci résulte en fait de défauts à la sphéricité des particules mesurées, qui induisent une anisotropie d'origine auto-dipolaire (voir plus haut), mais surtout une anisotropie d'interface non compensée. L'anisotropie d'interface, dont nous n'avons pas encore parlé, a été prédite par L. Néel en 1954. Elle résulte de la brisure de symétrie des atomes placés en surface d'un matériau. Cette anisotropie ne se révèle que dans les systèmes les plus petits, où la proportion d'atomes placés en surface devient significative. Ainsi, les anisotropies d'ordre supérieur ne disparaissent pas, mais elles sont masquées par celles d'ordre deux. Il faut alors des systèmes encore plus parfaits pour observer des surfaces critiques de forme plus compliquée, associées à une anisotropie d'ordre essentiellement supérieur (figure 4). L'analyse détaillée de ces surfaces renseigne sur la nature de l'anisotropie.

Les mesures ci-dessus ont été effectuées à très basse température ($\sim 40\text{mK}$) pour s'affranchir de l'activation thermique. Nous avons également étudié l'effet de la température sur le retournement de l'aimantation des nanoparticules. Lorsque le champ est balayé à température non nulle l'aimantation se retourne avant que le puits d'énergie métastable ne disparaisse complètement (figure 6), pour des hauteurs de barrière de potentiel de quelques $k_B T$. Ainsi les champs de saut diminuent lorsque la température augmente, pour s'annuler à une température que l'on appelle température de blocage T_b . Au-dessus de T_b la particule est dans un état que l'on qualifie de *superparamagnétique*, par analogie avec le paramagnétisme : si l'on pouvait faire une photographie instantanée de la particule on verrait que tous les spins restent essentiellement parallèles, conservant la notion de macrospin ; ce ne sont que les fluctuations temporelles de la direction de ce macrospin durant le temps de la mesure expérimentale qui donnent l'impression que le macrospin disparaît en l'absence de champ extérieur. Le renversement de l'aimantation thermiquement activé est un phénomène habituel et couramment étudié à l'échelle macroscopique, mais ce n'est que son étude à l'échelle nanométrique qui permet de tirer des informations fines sur la dynamique de renversement de l'aimantation, en particulier sur l'amortissement et sur la fréquence phénoménologique d'essai dans la loi d'Arrhenius. Ces informations deviennent essentielles alors que les technologies d'enregistrement magnétique atteignent bientôt la fréquence précessionnelle des macrospins, sup-

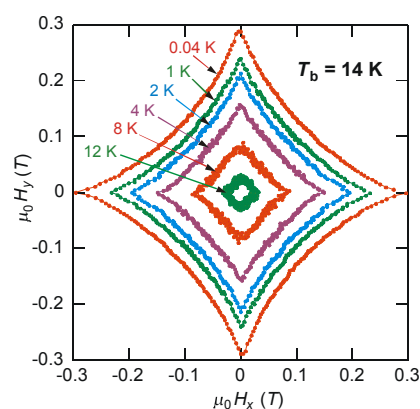


Figure 6 : Champs de retournement mesurés sur une même particule à plusieurs températures. La coercitivité disparaît quand la température atteint la température dite de blocage. Au-dessus de cette température la direction du macrospin peut librement fluctuer à champ nul entre plusieurs positions d'équilibre.

posée limite fondamentale.

Magnétisme moléculaire

Le macrospin est-il l'objet ultime du nanomagnétisme ? Oui... et non. Oui car plus la taille est réduite et plus le rôle relatif de l'échange se renforce ; non car si l'on descend dans l'échelle des tailles, des effets quantiques finissent par apparaître. Nous nous focalisons ici sur des aimants moléculaires, assemblages de quelques ions métalliques au sein d'une molécule organique assurant un couplage d'échange entre les ions. Ces systèmes sont les plus adaptés à l'observation de manifestations quantiques car les molécules possèdent une structure unique (caractérisée par un spin dans l'état fondamental et une anisotropie bien définis). Ainsi de telles molécules toutes identiques, que l'on sait assembler en monocristaux, permettent d'accéder aux propriétés d'une molécule unique par des mesures macroscopiques. Les deux molécules les plus étudiées jusqu'à présent sont un oxo-cluster de douze ions de manganèse de valences mixtes entouré de ligands acétates, le Mn_{12} acétate, et un oxo-hydroxo cluster de Fer contenant huit ions de Fer, $[\text{Fe}_8\text{O}_2(\text{OH})_{12}(\text{tacn})_6]^{8+}$, couramment appelé Fe_8 , où tacn est un ligand ma-

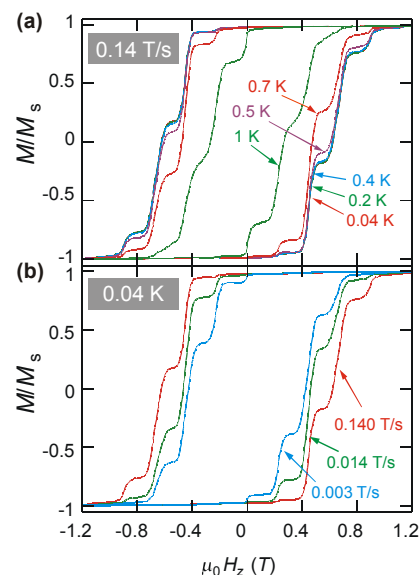
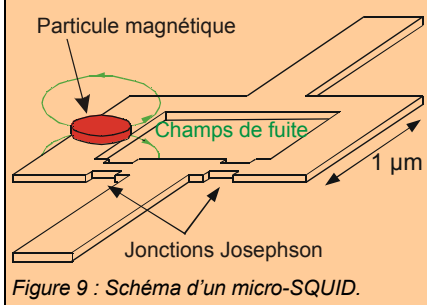


Figure 7 : Cycles d'hystérésis en 'marches d'escalier' observés dans un cristal de molécules de Fe_8 . La relaxation s'effectue essentiellement aux croisements de niveaux d'énergie. Au dessous de 0.36 K la relaxation est purement quantique et indépendante de la température (a). L'influence de la vitesse de balayage du champ est alors vérifiée (b), permettant une estimation du gap tunnel Δ à l'aide de la formule de Landau-Zener.

Encadré 3 – La technique de mesure par micro-SQUID

Le principe du micro-SQUID est similaire à celui d'un SQUID habituel, mais transposé à l'échelle du micromètre. La boucle supraconductrice, en pratique en Nb, est réalisée par lithographie. Les jonctions Josephson sont remplacées par des constriction de largeur environ 50 nm affaiblissant localement la supraconductivité (voir figure). Le courant critique du dispositif est une fonction périodique du flux traversant la boucle, si bien que la mesure du courant critique nous informe sur l'état magnétique d'un système, par le biais de la part de son champ de fuite intercepté par la boucle. Pour les systèmes sub-microniques le flux intercepté est généralement inférieur au quantum de flux ($h/2e$), ce qui permet de remonter à la valeur absolue du champ de fuite. Enfin, pour les systèmes les plus petits ce n'est plus le flux du champ de fuite qui est mesuré, mais simplement la transition supraconducteur/metal normal provoquée par la perturbation d'une jonction de la boucle liée au renversement de la particule. Dans ce cas les particules magnétiques peuvent être incorporées au Nb supraconducteur du micro-SQUID lui-même, pour augmenter le couplage, et permettre la mesure de $10^3 m_B$.



crocyclique. Les deux systèmes ont un état fondamental de spin $S = 10$, et une anisotropie magnéto-cristalline de type Ising stabilisant les états de spin $M = \pm 10$, et opposant une barrière d'énergie au renversement d'aimantation, barrière d'environ 67 K pour Mn_{12} et 25 K pour Fe_8 . Nous présentons ci-dessous deux effets quantiques : les cycles d'hystérésis en marches et les interférences entre chemins de renversement du spin quantique.

La figure 7 montre des cycles d'hystérésis caractéristiques de Fe_8 , constitués de marches aux champs $H_z \approx n \times 0.22 T$ ($n = 0, 1, 2, 3, \dots$), marches résultant d'une relaxation magnétique plus rapide à ces champs. Fe_8 est

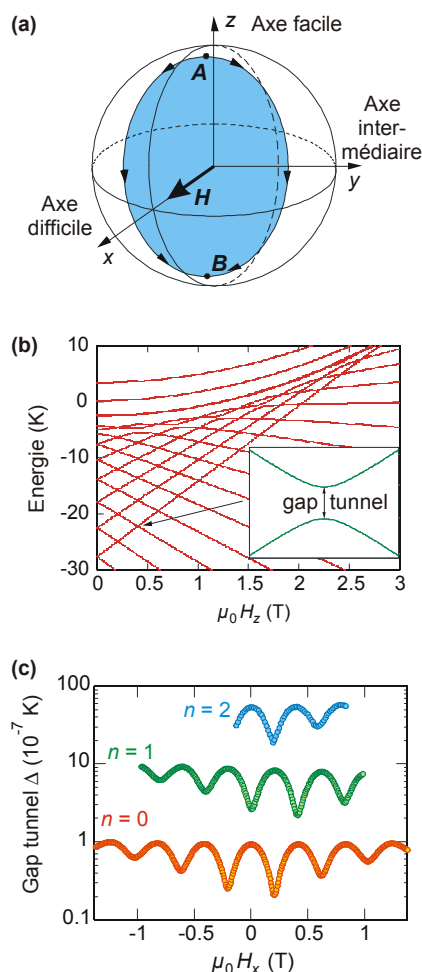


Figure 8 : (a) Les molécules Fe_8 possèdent trois axes caractéristiques d'aimantation, facile (z), difficile (x) et intermédiaire (y). Pour les oscillations liées à la phase de Berry un champ transverse constant H_x est appliqué, créant des interférences entre les chemins de renversement du spin (en bleu). (b) diagramme d'énergie de Fe_8 pour un champ appliqué suivant l'axe facile z (c) oscillation du gap tunnel de Fe_8 en fonction du champ transverse, et pour plusieurs anti-croisements $M = -10$ vers $M = 10 - n$.

particulièrement intéressant car sa relaxation magnétique (la décroissance spontanée de l'aimantation au cours du temps) devient indépendante de la température au dessous de 0.36 K, montrant pour la première fois une relaxation entièrement due à un effet tunnel quantique à partir d'un état fondamental $M = \pm 10$. Ces effets sont expliqués quantitativement ci-dessous.

Le hamiltonien le plus simple décrivant le spin Fe_8 s'écrit

$$H = -DS_z^2 + E(S_x^2 - S_y^2) + g m_B \mathbf{S} \cdot \mathbf{H} \quad (7)$$

où S_x , S_y et S_z sont les trois composantes de l'opérateur de spin, D et E sont des constantes d'anisotropie positives, et le dernier terme est l'énergie

Zeeman d'interaction avec le champ appliqué $\mathbf{H}$. Cet hamiltonien définit des axes d'aimantation difficile, intermédiaire et facile dans les directions x , y et z respectivement (figure 8a). Il comporte $(2S+1) = 21$ niveaux d'énergie, qui en première approximation peuvent être associés aux nombres quantiques $M = -10, -9, \dots, +10$. Le diagramme d'énergie, représenté sur la figure 8b, est obtenu par diagonalisation de la matrice $[21 \times 21]$ décrivant l'hamiltonien de spin $S = 10$. Les termes d'anisotropie transverse impliquant S_x et S_y ouvrent des gaps Δ aux croisements de niveaux (voir encart de figure 8b). Le spin S est alors dans un état résonnant, dans une gamme de champ de l'ordre de $10^{-8} T$ autour du croisement, permettant une transition d'un état à un autre (notons qu'en pratique la gamme de champ est plus large due à une distribution d'interactions dipolaires inter-molécules). Dans la limite des basses températures ($T < 0.36 K$) et partant d'une saturation à champ négatif seul l'état de plus basse énergie $M = -10$ est occupé. La relaxation ne commence alors qu'à partir du champ nul, et se produit pour chaque croisement de niveaux. La probabilité de transition par unité de temps est alors indépendante de la température. Elle peut être estimée dans le modèle quantique dit de Landau-Zener. On vérifie expérimentalement l'influence de la vitesse de balayage du cycle d'hystérésis sur le taux de relaxation (figure 7), dont la valeur permet d'estimer le gap tunnel Δ .

À 'haute température' (au-dessus de 0.36 K), avant le renversement d'aimantation l'état $M = -10$ n'est plus le seul occupé, les états $M = -9, -8, \dots$ étant également peuplés thermiquement à divers degrés. Le renversement d'aimantation par effet tunnel vers des valeurs de spin positif peut alors également s'effectuer à partir de ces niveaux, les croisements se situant aux mêmes champs (dans le cadre de l'équation 7) que ceux associés à l'état fondamental (figure 7). La probabilité tunnel étant plus forte à partir des niveaux excités, le taux de relaxation moyen est supérieur à celui observé à basse température. Il est important de réaliser le caractère mixte de ce mécanisme de renversement d'aimantation, appelé *effet tunnel activé thermiquement* : le renversement d'aimantation s'effectue par une succession d'activation thermique entre les plus bas niveaux négatifs, et d'un événement tunnel quantique ; l'activation thermique seule ne permet pas à ces températures de franchir l'intégralité de la barrière de potentiel, de 25 K pour Fe_8 .

Nous présentons maintenant un second effet quantique, les interférences entre chemins de renversement du spin. La figure 8c rapporte la mesure du gap tunnel Δ (via le taux de relaxation, voir plus haut) en fonction de la valeur d'un champ transverse H_x , pour des transitions entre les états $M = -10$ et $M = 10 - n$, avec $n = 0, 1, 2, 3, \dots$. Ces mesures ont été effectuées dans le régime purement quantique, au dessous de 0.36 K. Les oscillations périodiques observées peuvent être expliquées dans un modèle semi-classique, comme des interférences d'une phase du spin correspondant à des chemins opposés suivis lors du renversement d'aimantation (figure 8a, chemins des points A à B, définissant l'aire marquée en bleu). Ce type d'interférences est habituellement observé pour des particules physiques se déplaçant dans des systèmes mésoscopiques, comme des électrons ou paires supraconductrices dans des boucles ou des dispositifs SQUID. Nos expériences mettent en évidence l'existence d'une phase associée au spin magnétique, et de ses interférences dans l'espace de renversement du spin. Notons également le déphasage de π selon la parité de n , qui fait apparaître alternativement selon n des minima et des maxima à champ nul. Ceci concorde avec la prédiction de la suppression de l'effet tunnel à champ nul pour des spins demi-entiers. Dans l'expérience l'annulation du gap n'est pas parfaite du fait de la distribution de champs dipolaires internes au cristal de molécules.

l'imagerie MFM, M. Jamet, V. Dupuis, A. Perez (DPM, Lyon), R. Sessoli, A. Cornia (Florence, Italie), B. Barbara (LLN), ainsi que E. Eyraud, P. David et V. Santonacci (LLN) pour leur soutien technique, et N. Collins pour les outils de visualisation graphique.

Conclusion

En conclusion c'est la conjonction de méthodes d'élaboration d'objets nanométriques modèles et de techniques de mesure locales et de haute sensibilité, qui permet aujourd'hui d'aborder le domaine du nanomagnétisme. Nous l'avons ici illustré par quelques aspects dans la gamme $10^9 - 10^8 m_B$: derniers domaines magnétiques, géométriquement confinés, puis passage aux configurations essentiellement monodomaines, les macrospins, et enfin la superposition d'effets quantiques au comportement de macrospin.

Remerciements

Nous tenons à remercier les personnes suivantes pour leur contribution active dans ces études : P.O. Jubert et C. Thirion, doctorants au LLN, Y. Samson (CEA/DRFMC) pour l'ima-

Micromagnetic model of noncollective magnetization reversal in ultrathin magnetic dots with in-plane uniaxial anisotropy

O. Fruchart,* B. Kevorkian, and J. C. Toussaint

Laboratoire Louis Néel (CNRS), BP166, 38042 Grenoble Cedex 9, France

(Received 1 August 2000; revised manuscript received 15 November 2000; published 6 April 2001)

In most magnetic systems the magnetization reversal is nonuniform, and is initiated in a so-called “nucleation volume,” whose dimensions are by far smaller than the total system volume. For simplicity reasons magnetization reversal theories are usually based on the assumption that coherent rotation occurs in this “nucleation volume.” In this approach, self-dipolar fields and exchange forces are obviously not well described, because in reality the nucleation volume is coupled with the rest of the system. In the case of ultrathin dots with in-plane uniaxial anisotropy, we could take into account dipolar fields and the exchange stiffness explicitly. The approximations used to derive analytical equations were suggested by experimental results on real dots. The model yields the nonuniform micromagnetic configuration of nucleation volumes. It predicts nucleation and reversal field values, as well as the field dependence of the energy barrier to be overcome to reverse the dot at finite temperature. The (negative) reversal field is found to increase with the dot thickness T and the volume magnetization M_s , and to decrease with the material anisotropy K . In the low-thickness limit, the reversal field H_r approaches the Stoner-Wohlfarth reversal field H_a with a law close to $1 - |H_r/H_a| \sim M_s^{7/2} A^{-3/4} K^{-1} T^{3/2}$, where A is the exchange constant. The relevance of the approximations used is discussed and demonstrated by the good agreement found for all predictions between experiment and/or numerical calculations on the one hand and the model on the other hand.

DOI: 10.1103/PhysRevB.63.174418

PACS number(s): 75.60.-d, 75.40.Mg, 75.90.+w

I. INTRODUCTION

In the past two decades intense work has been devoted to the fabrication and study of magnetic thin and ultrathin films. New fundamental phenomena associated with well-defined two-dimensional (2D) structures (films) have been observed.^{1–4} The attention is now focused as well on the study of systems of reduced lateral dimensions, i.e., 1D (stripes)^{5–9} and 0D (dots).^{10–17} Several studies of fundamental interest arise from this further decrease of dimensionality: (1) The above-mentioned new phenomena also occur in 1D and 0D (and can even be enhanced), but with a different geometry, namely, with interfaces lying in the plane.^{18,19} (2) New fundamental phenomena may arise, as observed for magnetoresistance enhancement due to Coulomb blockade.²⁰ (3) Qualitative or quantitative changes of micromagnetic behavior happen, the same way dipolar fields favor the in-plane alignment of magnetization for continuous thin films. These studies are also of importance for applications in the technological context of the ever-increasing integration demand for the fabrication of small devices and components.

The scope of the present paper lies in magnetic systems of reduced dimensions, more precisely in magnetization reversal processes in ultrathin flat dots with in-plane magnetization. On the one hand this study is of fundamental interest as it is related to the 50-year-old experimental search for coherent rotation (CR) of magnetization in small systems. On the other hand this study addresses an application concern, as devices like spin valves²¹ and prospective topological bit recording media^{22,11} require the use of such thin flat magnetic components. Studying the effect of the reduction of the dot thickness is of particular interest for spin valves. This is true

for magnetic random access memories (MRAM's) as the integration via lateral size reduction requires the decrease of thickness of the magnetic layers in order to keep a reasonable thin-film-like aspect ratio. This is also of true for giant magnetoresistance (GMR) or tunneling magnetoresistance (TMR) magnetic head sensors, so that it may probe the stray fields arising from ever-narrower magnetic bits.

We recently reported experimental results demonstrating correlation between the decrease of the dot thickness and the increase of the ratio of coercive field over anisotropy field.^{23–25} Here we propose an analytical model describing magnetization reversal in thin dots with in-plane uniaxial anisotropy. We explain below our motivation for proposing a new model by briefly reviewing available theories of magnetization reversal and showing that none of them are capable of describing the case of ultrathin dots with in-plane uniaxial anisotropy. The simplest model of magnetization reversal is CR, which was first proposed by Néel²⁶ and Stoner and Wohlfarth.²⁷ In this framework the reversal field H_r along the easy axis of magnetization is predicted to equal the anisotropy field H_a , where H_a includes the microscopic anisotropy (magnetocrystalline, magnetoelastic, interface) plus the shape anisotropy (aspect ratio). However, in real systems the most favorable magnetization configuration is generally not uniform (except for extremely small systems as was shown recently¹⁷) and H_r is considerably smaller than H_a , so that later on numerous nonuniform magnetization reversal processes have been proposed to account for the experimental small value of H_r . To this point it must be noted that even for one-dimensional problems there exists no general solution to micromagnetic equations, due to the long-range and nonlocal character of dipolar fields. Therefore, solutions can

be found only by introducing approximations or test functions. Many models had to be proposed to describe different types of systems, because the approximations introduced are valid in a limited range of parameters only.

Two types of theories were introduced. In the first type one assumes that some defects can be found in the samples. These defects are assumed to alter anisotropy and/or exchange constant values, or geometry. The defects may decrease the nucleation field as compared to the anisotropy field (“soft” defects) or explain the value of propagation fields (pinning defects). We do not consider such processes in the present paper, as we are interested in systems having no significant defects. To the contrary, we wonder what intrinsic magnetization reversal mechanisms may occur apart from coherent rotation that may lead to a reversal field smaller than the anisotropy field. We therefore turn to the other type of theories, assuming no defects. Due to the complexity of micromagnetic equations, only highly symmetrical collective reversal modes could be investigated analytically. These processes may be relevant for systems of very small size or, more generally, for soft-material systems with a shape of high symmetry.²⁸ Such theories include curling^{29–32} and buckling³⁰ or extensions made to investigate zero-field^{33,34} and field-dependant³⁵ states of more or less flat dots made of a soft material. More recently a variational method was introduced by Cowburn and Welland in the case of square dots made of soft material.³⁶ These authors describe a nonuniform magnetization configuration in a dot as the superposition of a uniform magnetization state and low-order perturbations with “leaf” or “flower” symmetry. For reasonably small dots a remarkable agreement between the model and numerical calculations is found.^{36,37} The resulting magnetization configuration is, however, still collective as only perturbations of high symmetry are considered. This model may therefore be relevant only to describe flat dots made of soft material and with negligible thermal activation, which we know from theory and experiments to adopt such collective static modes.^{33–35} Finally, no external fields are taken into account in these models in their present state, so that only remanent static magnetization configurations are predicted, and hysteretic effects can only be extrapolated. We finally mention an attempt to derive a theory for anisotropic flat dots. Chui and Ryzhov³⁸ proposed a trial micromagnetic configuration for a flat rectangular dot under zero applied field. The edge condition $\mathbf{m} \cdot \mathbf{n} = 0$ mimics dipolar energy minimization, whereas the configuration in the bulk of the dot satisfies exactly micromagnetic equations with no dipolar fields. The authors show that the trial configuration is close to the one issued from numerical calculation performed on a dot with a certain thickness. In fact the proposed trial configuration is thickness independent, and therefore should be neither adequate for “large” thickness (the edge condition $\mathbf{m} \cdot \mathbf{n} = 0$ is correct but volume charges should then be taken into account) nor for “small” thickness (the $\mathbf{m} \cdot \mathbf{n} = 0$ edge condition is too strong; the dot configuration is rather close to uniform).

To our knowledge there exists no realistic analytical reversal model in flat dots with in-plane uniaxial anisotropy and with dimensions well above λ_{ex} and λ_{BI} . By in-plane

uniaxial anisotropy, we mean in-plane magnetization and a uniaxial anisotropy of microscopic origin between two in-plane directions. Indeed, in the presence of anisotropy the magnetization is expected to reverse by a nucleation-propagation process. This is confirmed experimentally as nucleation volumes, as determined by aftereffect measurements, are by far smaller than the system size.^{6,39} Therefore, highly symmetrical collective modes should not account for the observed H_r reduction. How does one describe magnetization reversal in such dots? One sometimes assumes that coherent rotation occurs in a small nucleation volume, and the aspect ratio of the dot is then invoked to estimate the dipolar contribution to an effective magnetic anisotropy of the nucleation volume. This approach may be very misleading as (i) the exchange is not taken into account whereas the magnetization configuration is obviously nonuniform and (ii) dipolar fields are generally nonuniform in samples, so that the relevance of the aspect ratio that is related to the *mean value* of H_d over the dot volume is doubtful. The latter argument is particularly acute in the present case of thin flat dots as the magnetic poles are then located on edges of the dot only. Therefore self-dipolar fields are very intense in the vicinity of edges and very weak in the center of the dot, because of the short range of dipolar fields in 2D systems.²³ To the contrary, the approach followed in the present model is to take into account the exchange contribution and the local dipolar fields, and to derive explicitly the micromagnetic configuration of a nucleation volume growing near an edge, for any applied field and up to the reversal field.

The principle of the model and the approximations introduced are given in Sec. II. The equations are explicitly derived and solved in Sec. III. We show that the model predicts the reversal field value, the reversible contribution before the reversal, and the micromagnetic configuration of nucleation volumes, as well as the field dependence of the energy barrier preventing the reversal. Some examples of the model outputs are given in Sec. IV. Finally, Sec. V is devoted to comparing the model with numerical calculations and experiments. The approximations used, the relevance of the model, and its micromagnetic consequences are finally discussed.

II. DESCRIPTION OF THE MODEL

A. Dimensionless units

In the following we will use dimensionless units for the sake of concision. Uppercase letters stand for dimensional variables whereas lowercase letters stand for dimensionless variables. First, all lengths are expressed in terms of $\sqrt{A/K}$ where A is the exchange constant, and K is the in-plane second-order anisotropy constant of the dot material, including all microscopic anisotropy sources (magnetocrystalline, magnetoelastic, and interface). Any dimensionless length l is related to the real length L like $l = L\sqrt{K/A}$. If we use the definitions of the Bloch wall width $\lambda_{\text{BI}} = \pi\sqrt{A/K}$ and the exchange length $\lambda_{\text{ex}} = \pi\sqrt{2A/\mu_0 M_s^2}$, we have in dimensionless units: $\lambda_{\text{BI}} = \pi$ and $\lambda_{\text{ex}} = \pi\sqrt{2}/m$. Second, there are two ways of reducing magnetic fields H and the volume magnetization M_s . The symmetrical way consists in reducing both

variables with $\sqrt{K/\mu_0}$. We will denote $h = H\sqrt{\mu_0/K}$ and $m = M_s\sqrt{\mu_0/K}$ as the corresponding dimensionless variables. The nonsymmetrical way consists in reducing H with the anisotropy field $H_a = 2K/\mu_0 M_s$ and M_s with M_s itself. We will denote $\tilde{h} = H\mu_0 M_s/2K$ as the field reduced in this way (and $\tilde{m} = 1$ does not appear anymore). The symmetrical reduction is more explicit for dipolar field calculations as m still shows up explicitly. The nonsymmetrical reduction is more convenient for analyzing magnetization reversal, as $\tilde{h} = -1$ means coherent rotation. However, in both reduction systems, the characteristic magnetic length scales are identical. Finally, the energy density of a second-order anisotropy system under an external field applied parallel to the easy axis of magnetization is written

$$e_V = \sin^2 \omega + (\nabla \omega)^2 - mh \cos \omega \quad (1)$$

$$= \sin^2 \omega + (\nabla \omega)^2 - 2\tilde{h} \cos \omega, \quad (2)$$

where ω is the angle between $\mathbf{M}$ and the easy axis. Along the entire paper we will often refer to the experimental case of 1-nm-thick (110)Fe dots,²⁵ for which $M_s = 1.73 \times 10^6 \text{ A m}^{-1}$, $K = 4.76 \times 10^5 \text{ J m}^{-3}$, $A = 2 \times 10^{-11} \text{ J m}^{-1}$, $\lambda_{\text{Bl}} = 20.4 \text{ nm}$, and $\lambda_{\text{ex}} = 10.2 \text{ nm}$. To give an order of magnitude to the reader, $m = 2.81$ and $\lambda_{\text{ex}} = 1.58$ in this case.

B. Approximations used

In the model, we make use of both power series expansion and micromagnetic approximations. The expansion approximation consists of an exact power series expansion of microscopic magnetic torques up to the fifth order, in terms of the magnetization angle ω . The choice and the consequences of the order of expansion will be discussed in the last section. Here, we focus on the micromagnetic approximations, which are based on the analysis of experiments performed on ultrathin dots 200 nm wide made of Fe films with in-plane anisotropy.⁴⁰ The present section is devoted to introducing these approximations and discussing the physical ground of their relevance.

We showed experimentally that for such dots the nucleation volumes are approximately 100 times smaller than the total volume of the dot.²⁴ This demonstrated that magnetization reversal is *not* coherent. The reversal is therefore expected to proceed in two steps: First, a small nucleation volume reverses. Second, the magnetization of the entire dot is reversed by a fast domain wall motion process. Besides, dipolar fields are short ranged in 2D systems²³ so that self-demagnetizing fields $\mathbf{h}_d$ are strongly nonuniform inside the dot. These fields nearly vanish near the center of the dot and are strong only in the close vicinity of the edges that are perpendicular to the magnetization direction. The nucleation volumes are therefore expected to be located in the vicinity of these edges. In micromagnetics corners may help or hinder magnetization reversal, depending on the situation. We assume that corners hinder magnetization reversal in our case, so that the reversal should be triggered near edges but away from corners. The proof for this assumption comes from numerical micromagnetic simulations, whose results

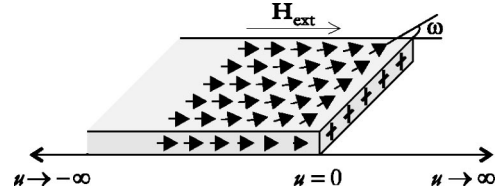


FIG. 1. Schematic cross-section view of the slab with external field applied perpendicular to the edge and parallel to the easy axis of magnetization. In this geometry the so-called surface magnetic poles are located on the edge (+). The field is positive in the figure. Negative values will be applied to reverse the dot magnetization.

will be detailed in the discussion section. As we already mentioned above, dipolar fields are short ranged so that the micromagnetic configuration of the nucleation volume should be characteristic of the neighboring edge only, because the influence of corners and of the opposite edge are comparatively very weak. It should finally be added that the influence of corners and other edges is not mediated to the nucleation volume via exchange, as the in-plane length scale of the exchange length, the domain-wall width, and that of the nucleation volume are small as compared to the dot lateral size. In this respect, the present situation is very different from that commonly encountered in the case of soft material. All this leads to the first micromagnetic approximation, which is of a geometrical nature: the dot is replaced in the model by a half-infinite slab whose edge is perpendicular to the easy axis of magnetization, and a translation symmetry along this edge is assumed (Fig. 1).

The second micromagnetic approximation is derived from the observation that the experimental in-plane angular dependence of the reversal field $h_r(\theta)$ is very close to the predictions of CR.⁴⁰ This indicates that even in the vicinity of an edge, the influence of demagnetizing fields is weak. This implies that the magnetization state of nucleation volumes is close to uniform, even just before the nucleation event occurs. We accordingly assumed that only edge magnetic poles contributed to self-dipolar fields, not volume poles $\nabla \cdot \mathbf{m}$. Then, as dipolar effects are very short ranged in 2D systems, dipolar fields coming from the neighboring edge charges apply only to a small fraction of the nucleation volume, more precisely to the fraction that is in the immediate vicinity of the edge. Let us recall that the length scale of a nucleation volume in our case is at least λ_{ex} as exchange forces forbid any rapid magnetization rotation on a length scale smaller than λ_{ex} , whereas the range of dipolar fields is related to the dot thickness (t). The demagnetizing effect was accordingly taken into account as a demagnetizing torque Γ_d acting on the edge spin of the half-infinite slab, and Γ_d is estimated by integrating the microscopic self-dipolar torque $\gamma_d = \mathbf{m} \times \mathbf{h}_d$ from the edge to infinity. This is the second important micromagnetic approximation. Several remarks must be made. First, integrals of torques converge rapidly even in the case of infinite lines of charges, instead of diverging in the case of energy integrals. Second, $t \ll \lambda_{\text{ex}}$ appears naturally as the criteria of validity for this “torque approximation.” Third, the relevance of the concept of the edge torque is supported by

the results of Rave *et al.* These authors recently discussed and simulated the relevance of edge torques to account for the effect of demagnetizing fields acting on a length scale smaller than λ_{ex} .⁴¹

Finally a third micromagnetic approximation is introduced. This approximation is also derived from the fact that $t \ll \lambda_{\text{ex}}$: the magnetization cannot be reoriented away from in plane in the vicinity of edges. Besides, the magnetization can be considered as uniform along the thickness of the dot because $t \ll \lambda_{\text{ex}}$ and $t \ll \lambda_{\text{BI}}$. As a result, the magnetization in the half-infinite slab can be written as

$$\mathbf{m}(u) = m[\mathbf{i} \cos \omega(u) + \mathbf{j} \sin \omega(u)]. \quad (3)$$

$u \in [-\infty; 0]$ is the distance between the considered point and the edge. $\omega(u)$ is the in-plane angle between the magnetization vector and the easy axis of magnetization (see Fig. 1).

Let us summarize the three micromagnetic approximation that we introduced

- (i) The magnetization lies in the plane and does not vary along the thickness of the film.
- (ii) The geometry is restricted to a half-infinite slab whose edge is perpendicular to the easy axis of magnetization, and a translation symmetry along the edge is assumed.
- (iii) The dot self-dipolar fields are taken into account as an edge torque, whose value is calculated by integrating the microscopic dipolar torque from the edge of the slab to infinity.

Let us also recall that, in addition to these approximations, we will in the following proceed to a series expansion of microscopic magnetic torques, including all terms up to the fifth order.

C. Principle of the model

Let us now briefly describe the principle of the model in the framework of the three micromagnetic approximations described above. The micromagnetic configuration inside the slab is determined by the minimization of the anisotropy, Zeeman, and exchange energies (Euler's equation). This configuration can be described analytically using a wall-type expression,^{42,43} provided that we set the magnetization rotation at the edge to a value fixed *a priori*, $\omega_0 = \omega(u=0)$. The edge magnetic pole is then $\cos(\omega_0)$, from which $\mathbf{h}_d(u)$ is calculated, leading to the evaluation of Γ_d . Finally, Euler's equation is applied at the edge (Brown's condition); namely, the exchange-induced torque Γ_{ex} and the dipolar torque Γ_d must compensate each other, so that the spin at the edge is under equilibrium:

$$\Gamma_{\text{ex}} + \Gamma_d = 0. \quad (4)$$

The possible equilibrium values of ω_0 are finally determined self-consistently, by solving Eq. (4).

III. MODEL SOLVING

A. Wall profile

We restrict ourselves to dots with a second-order microscopic in-plane anisotropy energy; i.e., we use Eq. (2). The procedure is the following. The dot is first saturated with

high positive values of $\tilde{h}$. Then smaller positive and finally negative values of $\tilde{h}$ are applied to reverse the magnetization of the dot. Equation (2) can be written

$$e_v = 4(1 + \tilde{h}) \left[\left(\frac{d\theta}{d\eta} \right)^2 + \sin^2 \theta + k_2 \sin^4 \theta \right], \quad (5)$$

with $k_2 = -1/(1 + \tilde{h})$, $\theta = \omega/2$, and $\eta = u\sqrt{1 + \tilde{h}}$. The solution to Eq. (5) is the equation of a wall in a fourth-order anisotropy material, which was solved analytically.^{42,43} Using this expression and switching back to variables u and ω one finds

$$\omega = \pi - 2 \arctan \left\{ \sqrt{\frac{-\tilde{h}}{1 + \tilde{h}}} \cosh[\sqrt{1 + \tilde{h}}(u - u_1)] \right\}. \quad (6)$$

Here ‘‘cosh’’ is the hyperbolic cosine function, and u_1 is a positive integration constant which determines the location of the wall ($u_1 \gg 1$ for a small edge rotation). Besides, we have broken arbitrarily the left-right symmetry by choosing a nonuniform solution with $\omega_0 > 0$. The single-domain state is obtained in the limit $u_1 \rightarrow +\infty$, in which case $\omega_0 = 0$, and thus $\omega(u) = 0, \forall u$.

B. Exchange-induced torque

The exchange-induced torque acting on the edge spin is expressed as

$$\Gamma_{\text{ex}} = -2 \frac{d\omega}{du} \Big|_{u=0}. \quad (7)$$

To this point, it is useful to go back to Euler equation, rather than to use directly Eq. (6). Indeed, the bulk Euler condition connects the microscopic torque with the anisotropylike microscopic energy density:

$$\frac{d\theta}{d\eta} = \sqrt{e_a(\theta)}, \quad (8)$$

where the integration constants vanish in the case of the half-infinite slab, $e_a(-\infty) = 0$ and $d\theta/d\eta(-\infty) = 0$, and with the notation of Eq. (5), $e_a(\theta)$ varies like $\sin^2 \theta + k_2 \sin^4 \theta$. Switching back to the variables ω and u , the right-hand side of Eq. (8) can be straightforwardly expanded in a power series as a function of ω . Performing the exact expansion up to the fifth order and using Eq. (7), one finally finds

$$\begin{aligned} \Gamma_{\text{ex}} = & -2\omega_0 \sqrt{1 + \tilde{h}} \left\{ 1 - \frac{1}{2} \left(\frac{1}{3} + \frac{1}{1 + \tilde{h}} \right) \left(\frac{\omega_0}{2} \right)^2 \right. \\ & \left. + \frac{1}{2^3} \left[\frac{1}{15} + \frac{2}{1 + \tilde{h}} - \frac{1}{(1 + \tilde{h})^2} \right] \left(\frac{\omega_0}{2} \right)^4 + O(\omega_0^6) \right\}. \end{aligned} \quad (9)$$

C. Demagnetizing torque

Let us recall that we neglect volume magnetic charges, so that the demagnetizing fields arise from surface magnetic

charges only (i.e., from the edges). Besides, for simplicity the average demagnetizing field over the dot thickness t was approximated by the demagnetizing field value calculated in the center of the film ($z=t/2$), namely,

$$h_d(u) = \frac{m \cos(\omega_0)}{\pi} \arctan\left(\frac{t}{2u}\right). \quad (10)$$

Using this expression, the microscopic (i.e., local) demagnetizing torque can be expressed as

$$\gamma_d(u) = -\frac{m^2}{\pi} \cos(\omega_0) \sin(\omega) \arctan\left(\frac{t}{2u}\right). \quad (11)$$

The edge demagnetizing torque is finally given by

$$\Gamma_d = \int_{-\infty}^0 \gamma_d(u) du. \quad (12)$$

Note that $u < 0$ in Eqs. (10)–(12), so that we indeed have a demagnetizing field ($h_d < 0$) and demagnetizing torque [$\gamma_d(u) > 0$].

In order to get a series expansion of Γ_d as a function of ω_0 , we first expand $\sin \omega$ as a function of ω_0 with u -dependent coefficients, and then proceed to the integration of these coefficients following Eqs. (11) and (12). The simplest way to do this is to perform, as an intermediate step, the expansion of $\sin \omega$ as a function of the small quantity $e^{-\eta_1}$, with $\eta_1 = u_1 \sqrt{1 + \tilde{h}}$ [see also Eq. (6)]. As a second step, the integration of Eq. (12) is performed, yielding an expression with integral powers of $e^{-\eta_1}$. Finally, $e^{-\eta_1}$ is in turn expanded in terms of ω_0 . This two-step expansion is relevant because $e^{-\eta_1}$ is of the order of ω_0 .

Reversing Eq. (6), one finds

$$\sin \omega = \frac{2\alpha \cosh(\eta - \eta_1)}{1 + \alpha^2 \cosh^2(\eta - \eta_1)}, \quad (13)$$

where $\alpha = \sqrt{-\tilde{h}/(1 + \tilde{h})}$. The exact expansion of Eq. (13) to the fifth order is

$$\begin{aligned} \sin \omega = & \frac{4}{\alpha} e^{\eta} e^{-\eta_1} \left[1 - \left(1 + \frac{4}{\alpha^2} \right) e^{2\eta} e^{-2\eta_1} \right. \\ & \left. + \left(1 + \frac{12}{\alpha^2} + \frac{16}{\alpha^4} \right) e^{4\eta} e^{-4\eta_1} + O(e^{6\eta} e^{-6\eta_1}) \right]. \end{aligned} \quad (14)$$

With a view to proceeding to the integration in Eq. (12), it is now necessary to evaluate the series of integrals

$$I_k(\tilde{h}) = - \int_{-\infty}^0 e^{k\eta} \arctan\left(\frac{t}{2u}\right) du \quad (15)$$

where k has positive integral values among $\{1, 3, 5\}$. For clarity, we will in the following omit to write the dependence of I_k upon $\tilde{h}$. Using the variables $\beta = t/2$ and $\mu_k = k\sqrt{1 + \tilde{h}}$, the I_k function is expressed as

$$I_k = \frac{1}{\mu_k} \left(\frac{\pi}{2} - \beta \int_0^{+\infty} \frac{e^{-u\mu_k}}{u^2 + \beta^2} du \right) \quad (16)$$

and evaluated using the following expression of the integral⁴⁴:

$$\begin{aligned} \int_0^{+\infty} \frac{e^{-u\mu_k}}{u^2 + \beta^2} du = & \frac{1}{\beta} [\text{ci}(\beta\mu_k) \sin(\beta\mu_k) \\ & - \text{si}(\beta\mu_k) \cos(\beta\mu_k)]. \end{aligned} \quad (17)$$

ci and si are sine and cosine integral functions, respectively. These functions can be evaluated numerically using the following expansions⁴⁴:

$$\text{ci}(x) = C + \ln x + \sum_{k=1}^{\infty} (-1)^k \frac{x^{2k}}{2k(2k)!}, \quad (18)$$

$$\text{si}(x) = -\frac{\pi}{2} + \sum_{k=1}^{\infty} (-1)^{k+1} \frac{x^{2k-1}}{(2k-1)(2k-1)!}. \quad (19)$$

After this integration, the demagnetizing torque is written the following way, after Eqs. (12) and (14):

$$\begin{aligned} \Gamma_d = & \frac{4m^2}{\alpha\pi} \cos(\omega_0) \times \left[e^{-\eta_1} I_1 - e^{-3\eta_1} \left(1 + \frac{4}{\alpha^2} \right) I_3 \right. \\ & \left. + e^{-5\eta_1} \left(1 + \frac{12}{\alpha^2} + \frac{16}{\alpha^4} \right) I_5 \right]. \end{aligned} \quad (20)$$

The final step is to express $e^{-\eta_1}$ as a series expansion of ω_0 . Equation (6) yields ω_0 as a function of η_1 . This relation can be reversed, yielding a binomial relation, with two positive roots $e^{-\eta_1}$ and e^{η_1} . The smaller root must be connected with $e^{-\eta_1}$ because $\eta_1 > 0$, and one finds

$$e^{-\eta_1} = \frac{1}{\alpha} \cot \frac{\omega_0}{2} - \sqrt{\frac{1}{\alpha^2} \cot^2 \frac{\omega_0}{2} - 1}. \quad (21)$$

Finally, after evaluation of the series expansions of Eq. (21), $\cos \omega_0$, I_1 , I_3 and I_5 as a function of ω_0 , Eq. (20) can be fully exactly expanded to the fifth order:

$$\begin{aligned} \Gamma_d = & \left\{ \frac{I_1}{2} \left(\frac{\omega_0}{2} \right) + \left[-\frac{1}{6} (5I_1 + 3I_3) + \frac{\alpha^2}{8} (I_1 - I_3) \right] \left(\frac{\omega_0}{2} \right)^3 \right. \\ & + \left[\frac{1}{30} (2I_1 + 15I_3 + 15I_5) + \frac{\alpha^2}{8} (-I_1 - 2I_3 + 3I_5) \right. \\ & \left. \left. + \frac{\alpha^4}{32} (2I_1 - 3I_3 + I_5) \right] \left(\frac{\omega_0}{2} \right)^5 + O(\omega_0^7) \right\} \frac{4m^2}{\pi}. \end{aligned} \quad (22)$$

D. Equilibrium states

The equilibrium states are determined by equilibrium of the spin at the edge [Eqs. (4), (9), and (22)]. Apart from the trivial solution $\omega_0 = 0$ (single-domain state), the equilibrium positions are the roots of binomial

$$A\left(\frac{\omega_0}{2}\right)^4 + B\left(\frac{\omega_0}{2}\right)^2 + C = 0, \quad (23)$$

with the following expression of the coefficients:

$$\begin{aligned} A &= \frac{m^2}{\pi} \left[\frac{2}{15} (2I_1 + 15I_3 + 15I_5) + \frac{\alpha^2}{2} (-I_1 - 2I_3 + 3I_5) \right. \\ &\quad \left. + \frac{\alpha^4}{8} (2I_1 - 3I_3 + I_5) \right] - \frac{1}{2} \sqrt{1 + \tilde{h}} \\ &\quad \times \left[\frac{1}{15} + \frac{2}{1 + \tilde{h}} - \frac{1}{(1 + \tilde{h})^2} \right], \\ B &= \frac{m^2}{\pi} \left[-\frac{2}{3} (5I_1 + 3I_3) + \frac{\alpha^2}{2} (I_1 - I_3) \right] \\ &\quad + 2\sqrt{1 + \tilde{h}} \left(\frac{1}{3} + \frac{1}{1 + \tilde{h}} \right), \\ C &= \frac{2m^2}{\pi} I_1 - 4\sqrt{1 + \tilde{h}}. \end{aligned} \quad (24)$$

The two roots are

$$\left(\frac{\omega_0^\pm}{2} \right)^2 = \frac{-B \pm \sqrt{\Delta}}{2A}, \quad (25)$$

with

$$\Delta = B^2 - 4AC. \quad (26)$$

As by convention $\omega_0 > 0$ and including the single-domain solution $\omega_0 = 0$, there exists at most three equilibrium solutions for the nonreversed state (either stable or unstable), depending on the external field value $\tilde{h}$. The state with the largest ω_0 is associated with the barrier to be overcome to reverse the magnetization, so that it is unstable. Besides, $\Gamma_{\text{ex}} - \Gamma_{\text{d}}$ is a continuous function versus ω , so that successive equilibrium states are successively stable and unstable, with decreasing values of ω_0 . This allows us to describe qualitatively the three different situations that can be encountered.

(i) There are three positive solutions, namely, $\omega_0 = 0$, $\omega_0^- > 0$, and $\omega_0^+ > \omega_0^-$. The only stable equilibrium state is then ω_0^- and the magnetization configuration is nonuniform (NU) near the edge. This occurs for $\Delta > 0$ and $(\omega_0^-)^2 > 0$.

(ii) There are two positive solutions only, namely, $\omega_0 = 0$ and $\omega_0^+ > 0$. The only stable equilibrium state then corresponds to $\omega_0 = 0$ [single-domain (SD) state]. This occurs for $\Delta > 0$, $(\omega_0^-)^2 \leq 0$, and $(\omega_0^+)^2 > 0$.

(iii) The only solution is $\omega_0 = 0$ and is unstable. This means that the magnetization has already reversed. This occurs in two cases, either $\Delta < 0$ or $\Delta \geq 0$ and $(\omega_0^+)^2 \leq 0$.

We observe that there is at most one stable equilibrium solution. The reversal field $\tilde{h}_r$ is the field at which this single stable solution vanishes. Depending on the situation (NU or SD; see above) $\tilde{h}_r$ is determined by $\omega_0^+(\text{unstable})$

$= \omega_0^-(\text{stable})$ or $\omega_0^+(\text{unstable}) = 0(\text{stable})$, respectively. In the NU case, h_n is found by solving the equation $\omega_0^+ = 0$.

E. Energy barriers

In this section we calculate the height of the energy barrier preventing magnetization reversal. This might be of use to gain insight into the thermal activation behavior of the dot.

As explained above, the model was solved based on torque equations. One can also use the picture of a system with a single degree of freedom ω_0 in a $[0; \pi]$ energy landscape. In this picture, the bottom of the energy well stands for the stable state, whereas the top of the barrier preventing magnetization reversal stands for the unstable state. The height of the barrier equals the work produced by an operator applying a torque Γ_{op} on the spin at the edge, in order to drive it from the stable position ω_0^s to the unstable position ω_0^+ , under quasistatic conditions: $\Gamma_{\text{d}} + \Gamma_{\text{ex}} + \Gamma_{\text{op}} = 0$. The barrier height is therefore

$$W_{\text{op}} = - \int_{\omega_0^s}^{\omega_0^+} (\Gamma_{\text{d}} + \Gamma_{\text{ex}}) d\omega_0. \quad (27)$$

ω_0^s stands for the stable equilibrium solution, either ω_0^- (NU) or 0 (SD). One finds after straightforward integration of Eq. (23)

$$W_{\text{op}} = [\xi(\omega_0)]_{\omega_0^s}^{\omega_0^+}, \quad (28)$$

with

$$\xi(\omega_0) = -\frac{A}{3} \left(\frac{\omega_0}{2} \right)^6 - \frac{B}{2} \left(\frac{\omega_0}{2} \right)^4 - C \left(\frac{\omega_0}{2} \right)^2. \quad (29)$$

For the stable state of the SD case $\omega_0^s = 0$, so that $\xi(\omega_0^s) = 0$. For the stable state of the NU case ω_0 is a root of binomial (23), so that $\xi(\omega_0 = \omega_0^\pm)$ can be expressed in terms of A , B , and C only. It is now necessary to treat the NU and SD cases separately.

In the NU case Eq. (28) boils down to the following exact expression:

$$W_{\text{op}} = \frac{\Delta^{3/2}}{6A^2}. \quad (30)$$

Magnetization reversal occurs when Δ vanishes (see NU state in the previous paragraph). Δ can be expanded to first order, as the first derivative of Δ generally does not vanish in $\tilde{h} = \tilde{h}_r$: $\Delta \sim \tilde{h} - \tilde{h}_r$. Then, we get from Eq. (30) the first-order expansion $W_{\text{op}} \sim (\tilde{h} - \tilde{h}_r)^{3/2}$. This shows that the α exponent used in thermal activation theory equals 1.5 in the case of a nonuniform state with $\mathbf{h}$ applied exactly perpendicular to the edge.

In the SD case, magnetization reversal occurs when ω_0^+ vanishes (see *SD-state* in the previous paragraph). Equation (28) can be expanded in terms of ω_0^+ . The leading order of the expansion is

$$W_{op} \approx \frac{B}{2} (\omega_0^+)^4. \quad (31)$$

$\tilde{h} = \tilde{h}_r$ is reached when C changes of sign [see Eq. (25) and the discussion below]. In general B does not vanish in $\tilde{h} = \tilde{h}_r$, so that Eqs. (25) and (26) can be expanded straightforwardly, showing that $(\omega_0^+)^2$ varies linearly with $\tilde{h} - \tilde{h}_r$ just before the reversal, and thus $W_{op} \sim (\tilde{h} - \tilde{h}_r)^2$. From this and from Eq. (31) we infer that the exponent α equals 2 in the SD case.

IV. MODEL QUANTITATIVE RESULTS

A. Numerical application to 1-nm-thick dots

Theory is more flexible than experiment as each parameter can be varied one at a time to evaluate its influence on magnetization reversal. Such a step-by-step comparison is not possible with real samples, where, for instance, thickness and anisotropy cannot be chosen independently because of the interplay of interface, magnetoelastic, and volume anisotropies. The primary purpose of the torque model is to investigate the intrinsic influence of thickness, so that the examples given below were computed for different thicknesses but for fixed anisotropy. An advantage of not presenting the model's results in a $(t, \tilde{h})$ graph using an experimental $H_a(t)$ law is that the results presented here do not depend on a particular sample and are therefore more general. The reader should, however, keep in mind that a comparison of such a graph computed in units reduced with respect to one given anisotropy is in principle possible for one thickness only, because of the thickness-anisotropy experimental interplay.

The equations $\Delta = 0$, $\omega_0^- = 0$, and $\omega_0^+ = 0$ were solved numerically, using the experimental values $H_a = 0.55$ T and $M_s = 1.73 \times 10^6$ A m⁻¹.²⁵ Stable and unstable equilibrium state curves for different thicknesses are displayed on a $(\tilde{h}, \omega_0)$ plot in Fig. 2. For a given $\tilde{h}$ the number and numerical values of equilibrium states are determined graphically by the intersection of these curves with a vertical line. The nucleation field value $\tilde{h}_n$ and the reversal field value $\tilde{h}_r$ were determined numerically using this type of diagram. Both fields are plotted versus thickness on Fig. 3. Note that here “nucleation field” $\tilde{h}_n$ bears a micromagnetic meaning; i.e., $\tilde{h}_n$ is the field at which the SD state becomes a NU state.⁴⁵ It should not be confused with the reversal field $\tilde{h}_r$, at which a “nucleation event” (in the viscosity measurement meaning, i.e., the thermally activated reversal of a small volume) triggers magnetization reversal. We see in Fig. 3 that below a critical thickness t_c the magnetization configuration is always SD up to $\tilde{h}_r$ (in that case $\tilde{h}_n = \tilde{h}_r$), whereas for $t > t_c$ the magnetization configuration is successively SD, NU, and

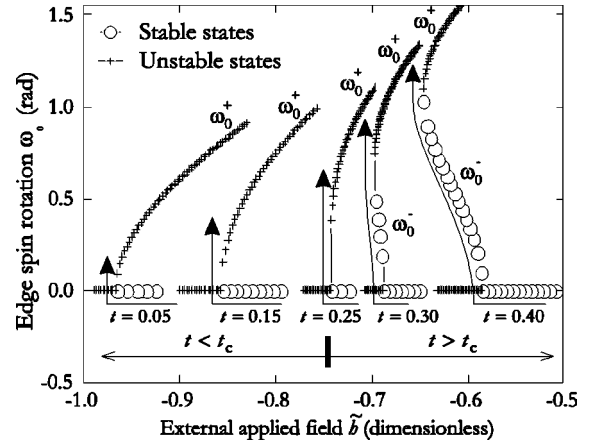


FIG. 2. Stable (○) and unstable (+) equilibrium states in a $(\tilde{h}, \omega_0)$ plot, as predicted by the model for $m = 2.81$ and for thicknesses ranging from 0.05 to 0.4 (dimensionless units). ω_0 is the rotation of the spin located at the very edge of the half-infinite slab.

then reversed, as $\tilde{h}$ is decreased towards -1 (in the latter case $\tilde{h}_n > \tilde{h}_r$). The transition from a SD state to a NU state is of second order; i.e., ω_0 switches continuously and reversibly from zero to positive values at $\tilde{h}_n$. On further decrease of $\tilde{h}$, ω_0 monotonously increases up to ω_0^r at $\tilde{h}_r$. Although results concerning one (H_a, m) set only are given here, the same qualitative t dependence was found for any values of m and H_a . We found, in accordance with intuition, that t_c and $\omega_0^r|_{t=t_c}$ increase if M_s increases or H_a decreases, and that $d\omega_0^r/dt > 0$ for $t > t_c$.

B. Comparison with numerical calculations

Our numerical approach is based on solving dissipating Landau-Lifschitz-Gilbert micromagnetic equations and using a fast Fourier transform (FFT) procedure to evaluate dipolar fields.^{46,47} Special care was devoted to track numerical artifacts and to simulate model systems to validate the approach,

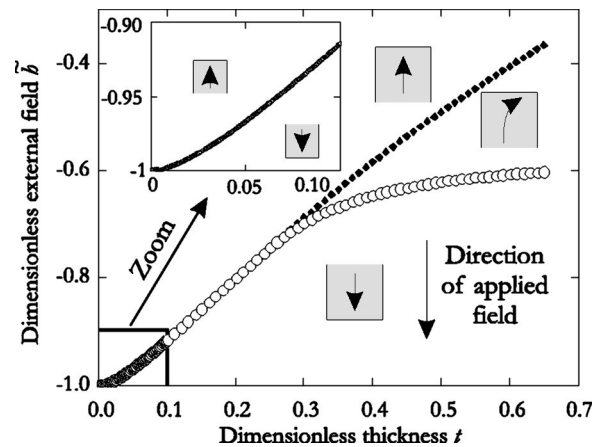


FIG. 3. Micromagnetic state of a half-infinite slab as predicted by the model. Open dots stand for reversal fields and solid diamonds stand for nucleation fields. An enlargement of the small thickness area is shown in the inset.

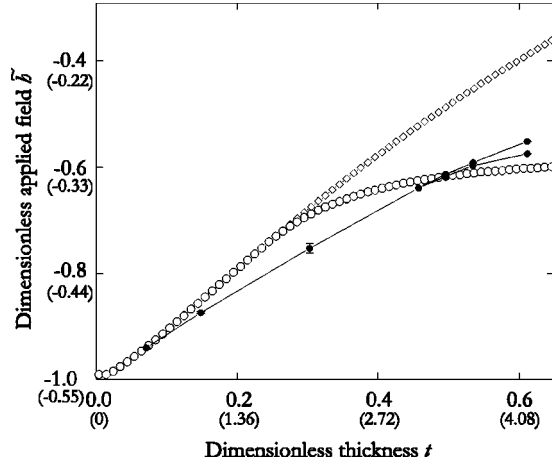


FIG. 4. Nucleation and reversal fields (diamonds and dots, respectively) vs slab thickness: predicted by the model (open symbols) and yielded by numerical calculations of a half-infinite slab (solid dots) ($m=2.81$ in both cases). Dimensionless units were converted into real units on both axes for the case of experimental 1-nm-thick Fe dots (see parentheses: thickness in nm and field in T). Error bars are related to the field step used in the calculation.

so that we are confident that the error bars of numerical calculations are smaller than those induced by the approximations used in the model. Accordingly, any discrepancy between calculations and the torque model will be ascribed to the latter in the following. The calculations were performed using the parameters of experimental 1-nm-thick dots: $H_a=0.55$ T and $M_s=1.73\times 10^6$ A m $^{-1}$.²⁵

Two major approximations were used in the model. The first one is the torque approximation. The second one is the geometric approximation, namely, the replacement of a finite-size dot by a half-infinite slab. Numerical calculations allowed us to probe the relevance of each approximation independently, as reported below.

In a first step, we assess the relevance of the edge torque approximation. For doing this, we numerically simulated the magnetization reversal process in a half-infinite slab with a translation symmetry parallel to the edge, the magnetization being a 3D vector. For each value of the external applied field we used the following procedure in order to get rid of the numerical left-right symmetry-breaking problem, but at the same time to be able to predict a value for the nucleation field, i.e., the field at which a system ceases to be uniformly magnetized: in a first step the external field is misaligned by 0.1° with respect to the easy axis of magnetization, and an equilibrium configuration is calculated. In this configuration ω_0 never exactly equals 0. In a second step we use this configuration as a starting point and calculate the equilibrium configuration under a perfectly aligned external field. The nucleation field has not yet been reached if the solution relaxes towards uniform magnetization with $\omega_0=0$. We found that numerical calculations and the model yield identical *qualitative* results (Fig. 4): below a critical thickness the system is always uniformly magnetized under any applied field. Above the critical thickness the system can be uniformly or nonuniformly magnetized, depending on the external field value. This leads to a distinct nucleation field $\tilde{h}_n$ and reversal

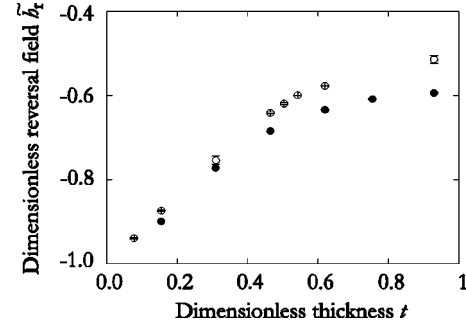


FIG. 5. Reversal field value vs thickness, yielded by numerical calculations performed on half-infinite slabs (open symbols) and square-shaped dots with a 200-nm edge (solid symbols), both using $m=2.81$. Error bars correspond to the field step used in the calculation.

field $\tilde{h}_r$. The *quantitative* agreement is very good in the ultrathin regime. However, the regime over which a NU magnetization state can exist lies at the verge of the model validity domain, for the set of parameters used for the comparison (a more detailed comparison will be found in Sec. V). The slab geometry is identical in these numerical calculations and in the analytical model. The difference lies in the fact that the numerical calculations do not make use of the torque approximation nor of power series expansions. This proves the relevance of the torque approximation and the low-order expansions used in the analytical model in the limit of ultrathin dots.

In a second step, we assess the relevance of the geometrical approximation. For this purpose, we compared the simulations previously discussed, performed on a half-infinite slab, with simulations performed on a square-shaped dot with a 200-nm edge, the edges being parallel to the in-plane easy and hard axes of the film. In both cases the thickness is 1 nm and the magnetization is described by a 3D vector $\mathbf{m}$. The grid spacing was chosen equal to 3.125 nm, smaller than $\lambda_{ex}=10.2$ nm and $\lambda_{BI}=20.4$ nm. Both calculations yield very similar $\tilde{h}_r$ values as shown in Fig. 5, although the reversal is slightly hindered in the case of square dots. This similarity is better understood by looking at the static micro-magnetic configuration of the square dots just before the reversal [Fig. 6(a)] [the configuration of a 6-nm-thick dot is also shown in Fig. 6(b) because the so-called nucleation volumes are clearly visible in this case, although the deviation at the edge is obviously too strong for the model to be valid]. Examination of Fig. 6(a) leads to the conclusion that the reversal in the square dots is hindered by the corners, so that the nucleation volumes grow preferentially away from them, in a region which can be locally approximated by a half-infinite slab. This result proves the relevance of the geometric approximation in the case of large square-shaped dots. How large square dots need to be to behave like half-infinite slabs can be probed by repeating such simulations for several edge lengths (Fig. 7). The grid spacing was maintained constant and equal to 3.125 nm for all simulations. This ensures that the exchange field and the stray field were determined with the same precision for each system, and allows us to compare unambiguously all results. Besides, we used the

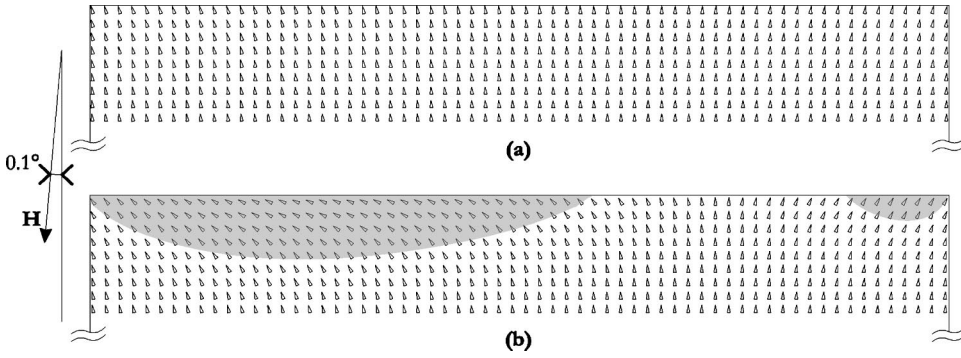


FIG. 6. Near-edge detail of the numerically calculated micromagnetic configuration of 200-nm-square-shaped dots just before reversal. The dot thickness is 1 nm for (a) and 6 nm for (b). The parameters used are $\mu_0 H_a = 0.55$ T and $M_s = 1.73 \times 10^6$ A m $^{-1}$, which yields $m = 2.81$. The anisotropy field is exactly perpendicular to the edge, whereas a 0.1° misorientation of the applied field was used to trigger symmetry breaking. Areas where spins are rotated by more than 45° are shaded to visualize nucleation volumes.

fftw library developed by Frigs and Johnson.⁴⁷ This allowed us to investigate more points than the usual 2^n law with the conventional FFT procedure permits. Indeed, the library of Ref. 47 works equally well for all products of integral powers of prime integers. The results of these simulations are the following. The reversal field goes to the anisotropy field for very small lateral size. This was indeed expected as a small square dot is nearly single domain, and displays no in-plane shape anisotropy. On the contrary, the reversal field of a square dot with a large edge length goes to the reversal field of the half-infinite slab. The crossover to the lateral finite-size effect is found to lie between 100 nm and 200 nm, for the particular case of $H_a = 0.55$ T and $M_s = 1.73 \times 10^6$ A m $^{-1}$. The reader may note that this is well above all conventional magnetic length scales, such as the exchange length and the domain wall width. We will not discuss the reasons for this in the present article. Finally, the influence of the exact shape of the dot on the reversal field was investigated. This was done by performing simulations on disk-shaped dots 200 nm in diameter, yielding results very similar to the case of square dots with identical width and thickness $t = 1$ nm: $\tilde{h}_r = -0.91 \pm 0.005$ in the case of disk-shaped dots, to be compared with $\tilde{h}_r = -0.892 \pm 0.002$ in the case of square-shaped dots discussed above. Therefore, the shape of the dot, at least disk or square, does not seem to be of prime importance in determining the value of $\tilde{h}_r$. This is an indication that the geometric half-infinite approximation may be relevant for different kinds of in-plane shapes. This will be discussed in more detail in Sec. V.

C. Comparison with experiments

The reversible contribution to experimental hysteresis loops of an array of dots is very weak and could not be measured accurately. We therefore restricted the comparison between the analytical model and the numerical calculations to two scalar quantities: the reversal field $\tilde{h}_r$ and the exponent α related to the field dependence of the energy barrier used in the theory of thermal activation.¹⁷

Let us first discuss the case of the reversal field $\tilde{h}_r$. For 2-nm-thick disk-shaped dots ($H_a = 0.3$ T, $M_s = 1.73$

$M_s = 1.73 \times 10^6$ A m $^{-1}$), the experiments yielded $\tilde{h}_r^{\text{expt}} = -0.63 \pm 0.01$ whereas the torque model yielded $\tilde{h}_r^{\text{tm}} = -0.612 \pm 0.001$. The agreement is rather good in that case. For 1-nm-thick dots $\tilde{h}_r^{\text{expt}} = -0.733 \pm 0.005$ (Ref. 40) and $\tilde{h}_r^{\text{tm}} = -0.857 \pm 0.001$. Both results do not coincide. The discrepancy is not very large in terms of reversal field values but as we pointed out in the introduction $\Delta\tilde{h} = 1 + \tilde{h}$ is a direct probe of self-demagnetizing effects in dots. $\Delta\tilde{h}_r^{\text{expt}} = 0.267 \pm 0.005$ and $\Delta\tilde{h}_r^{\text{tm}} = 0.143 \pm 0.001$ are therefore the relevant parameters to be compared. The agreement is worse viewed from this angle. We ascribed this discrepancy to dot defects, which indeed are expected to have more dramatic consequences in thinner dots for two reasons:

(i) A roughnesslike fluctuation of the number of Fe atomic planes in the dot. Two physical effects are related to thickness fluctuations, and both effects add up. Indeed, if the dot thickness near an edge is locally increased, the anisotropy is decreased and the demagnetizing fields are increased, so that both effects tend to decrease $|\tilde{h}_r|$. It should be noted that this effect is more important for thinner dots in terms of

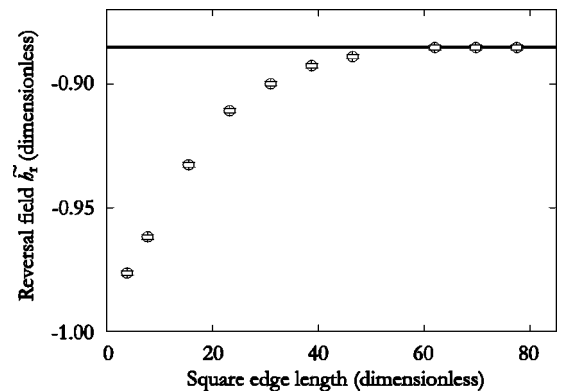


FIG. 7. Numerically simulated dimensionless reversal field of a square dot, as a function of the side length. The line shows the numerically simulated reversal field of a half-infinite slab. The dimensionless parameters are magnetization $m = 2.81$ and thickness $t = 0.15$. Let us recall that the dimensionless unit length equals 6.5 nm for iron when $H_a = 0.55$ T.

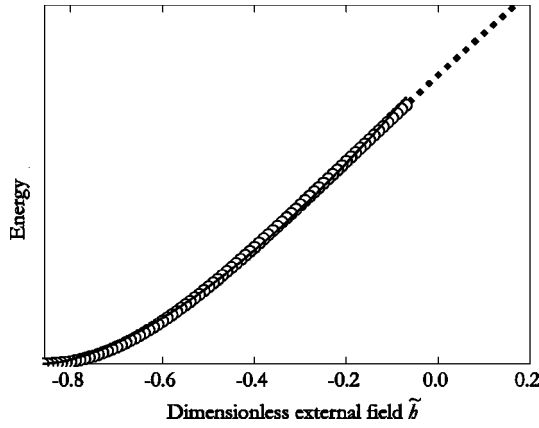


FIG. 8. Energy barrier height as a function of the applied field, as predicted by the model. The example shown corresponds to the experimental parameters of 1-nm-thick dots. The curve was fitted with an adjustable activation volume and exponent α (straight line). Open dots stand for the energy range taken into account in the fit, whereas solid diamonds stand for points excluded from the fit.

relative values.⁴⁸ For instance, 1-nm dots contain on the average 5 monolayers (ML) of Fe, so that large relative thickness fluctuations are simply induced by the fluctuation of the position of atomic steps at both Mo/Fe interfaces, even in the case of an atomically flat and roughness-free sample, because of the substrate miscut. This may explain why the model reproduces well the reversal of 2-nm-thick dots and poorly that of 1-nm-thick dots.

(ii) $\tilde{h}_r$ is very close to -1 so that the energy well is very shallow and narrow just before the reversal,²⁵ and even small defects are expected to play a considerable role.

Let us now discuss the case of exponent α . The analysis of the experimental thermal activation data was performed between 2 K and 300 K on 1-nm-thick dots. The procedure was the following. In a first step, the value of $\tilde{h}_r$ was measured in this temperature range. In a second step, the decrease of $\tilde{h}_r$ with increasing temperature was ascribed to thermal activation, which helps overcoming the field-dependant energy barrier $\Delta(\tilde{h}_r)$. An Arrhenius law was used to describe thermal activation, and thus for each temperature the height of the energy barrier at $\tilde{h}$ was estimated, yielding $\Delta(\tilde{h})$. As a third and final step, this experimental $\Delta(\tilde{h})$ curve was fitted by the following expression: $\Delta_0[\tilde{h}_r(T) - \tilde{h}_r(T=0)]^\alpha$. This procedure yielded $\alpha = 1.65 \pm 0.1$.²⁵ On the other hand, given the dot parameters, the model predicts that the dot is single domain and therefore that $\alpha_{SD} = 2$. However, α_{SD} cannot be compared directly with experiments as it arises from a lowest-order expansion of Eq. (28), which is in the limit of zero temperature. One must instead compare the exponent issued from experiments with the exponent issued from a polynomial fit of Eq. (28) over the field range $[\tilde{h}_r(300 \text{ K}), \tilde{h}_r(2 \text{ K})]$. This field range is the one probed experimentally using the temperature range [2 K, 300 K]. The fitting procedure is illustrated in Fig. 8 and yields $\alpha_{SD}^{2-300 \text{ K}} = 1.56 \pm 0.02$. The torque model is therefore in good agreement with experiment. Experimental determination of the ex-

ponent α_{NU} in the case of thicker dots and its comparison with the model would, however, be required to fully validate the model. Besides, thermal activation theories are derived from the effect of thermal noise on a single degree of freedom,⁴⁹ i.e., are in principle applicable only to single-domain systems. The Arrhenius law and Brown equations may therefore not be directly applicable to the case of a functional degree of freedom, as it is the case in the torque model and in the majority of magnetic systems, which are not necessarily in a single domain state. One has therefore to keep in mind that there are no absolutely firm bases to make such comparisons.

V. DISCUSSION

A. Validity domain of the model

Let us first discuss the limit of validity of the model in terms of maximum tractable thickness. We showed in the previous section that in the low-thickness regime the model and numerical simulations predicted very similar values for $1 + \tilde{h}$ (the reduction of the reversal field as compared to the anisotropy field). Nevertheless, the value predicted by the model saturates above approximately $t = 0.5$, whereas that yielded by numerical calculations still increases slowly. This can be understood as volume charges were neglected in the model so that only surface charges (i.e., on the edges) contribute to demagnetizing effects. The higher the thickness is, the larger ω_0^r is, so that surface charges and therefore the associated demagnetizing effects are smaller. In real dots and in numerical calculations, part of the demagnetizing effect in that case is still taken into account via volume charges. This might explain why $1 + \tilde{h}$ still increases slowly. Let us discuss the situation quantitatively. In the limit of large thickness $\omega_0^r \rightarrow \pi/2$, so that surface charges nearly vanish [due to power expansion of $\cos(\omega_0)$ function in Eq. (20), $\omega_0^r \rightarrow \sim 1.59$ in the model, instead of $\pi/2$]. In this case the reversal is hindered by the exchange torque only, whereas no more demagnetizing torque applies. Thus, the reversal finally occurs for $\Gamma_{ex} = 0$, i.e., $\tilde{h} \sim -0.62$ [this comes out of Eq. (9)]. It is indeed checked in Fig. 4 that magnetization saturation is related to $\tilde{h}$ approaching -0.60 . We also observe on this plot that this limit is obtained for $t \approx 0.5 \approx 0.3\lambda_{ex}$. This also can be understood as we already mentioned that demagnetizing effects are significant only on a lateral length scale of the order of the dot thickness t . Indeed λ_{ex} is the length scale that arises when exchange (A) and demagnetizing effects due to two charged planes ($m^2/2$) compete. In our case λ_{ex} is obviously the minimum length scale of the activation volume as $\lambda_{ex} < \lambda_{Bl}$. As long as $t \ll \lambda_{ex}$ the mean demagnetizing energy over the nucleation volume is well below $m^2/2$. In other words the charged edge of the dot does not look like a plane, as viewed from the nucleation volume. In that case the reversal is mainly made possible by Zeeman energy only. The crossover between Zeeman-driven reversal to dipolar-driven reversal therefore logically occurs around $t \sim \lambda_{ex}$. This length scale is also the thickness over which the torque model is no longer relevant.

Let us now discuss the predicted size of nucleation volumes. Below the crossover thickness mentioned above, the influence of dipolar fields can be considered as pinpointlike as compared to V_n . The characteristic length scale of nucleation volumes in the direction perpendicular to the edge is therefore determined by Eq. (6) and is not expected to depend much on the demagnetizing field magnitude. In other words, and provided that the thickness of the dot is reasonably smaller than the exchange length, the relevant in-plane length scale in the direction perpendicular to the edge is not the exchange length but is rather determined by a portion of a wall described by Eq. (6). This length is somewhat larger than λ_{ex} , but anyhow differs from the Bloch-wall width. This illustrates the fact that neither the maximum nor the minimum of λ_{ex} and λ_{BI} is a universal magnetic characteristic length scale for all systems. However, it is clear from Eq. (6) that this length scale increases with decreasing anisotropy. However, as long as the uniaxial anisotropy is strong enough, the length scale of the nucleation volumes perpendicular to the edge does not depend on the dot size. This is the reason why we call the reversal “non-collective”: the effect of the demagnetizing fields is concentrated in areas close to the edges, and the magnetization reversal does not involve all the spins of the system. On the contrary, in the limit of zero microscopic anisotropy, i.e., for soft materials, this length scale diverges and the nonuniform volume fills the entire dot. In that case the magnetization state of a soft dot can be called “collective,” and can be accurately described using length variables scaled with dot size and low-order expansions performed from the center of the dot.³⁶ To this point, an important remark must be made. Figure 2 shows that, in the limit of small thickness, H_r goes to the value predicted for coherent reversal. However, as pointed out above, the magnetization reversal is not collective. These two statements do not contradict each other. They are explained by the fact that, although the reversal is not coherent, the conditions in the vicinity of the nucleation volume are very similar to those needed for coherent reversal (in our case, nearly vanishing dipolar fields), so that the field at which the nucleation volume reverses is close to that predicted by the Stoner-Wohlfarth theory. The fact that the reversal is *not* coherent was checked directly by inspection of the dynamics of the numerically simulated reversal. The reversal is clearly initiated near the edge and propagates into the dot through domain-wall motion. This shows that, in the case of a real systems, one cannot conclude that coherent reversal occurs simply on account of the similarity of an experimental $H_r(\theta)$ reversal law with the so-called Stoner-Wohlfarth Astroid. The definite proof must come from dynamical measurements, which allows one to estimate the size of nucleation volumes.¹⁷

Let us finally discuss the influence of the dot shape on reversal. In the case of flat dots made of soft material it was shown experimentally^{50,51} and numerically^{51,52} that the micromagnetic configuration and the reversal field value strongly depend on the exact shape of the edges. This is explained by the fact, explained above, that the nonuniform magnetization state fills the entire dot for soft materials. Therefore, the influence of the edges is in this case long

ranged. To the contrary, in dots made of hard materials the nucleation volumes are mainly influenced by the *local* shape and orientation of the nearby edge. If all edge orientations are available as in the case of disks, the relevance of the geometric hypothesis indicates that the highest reversal field (speaking of negative values, i.e., the smallest in absolute value) is associated with edges that are exactly perpendicular to the easy axis. This means that the torque model should be relevant to describe thin and flat dots made of hard material with in-plane anisotropy, and this for a large variety of in-plane geometry of dots, provided that a significant part of their edges is perpendicular to the easy axis. What a “significant part” is was probed by numerical calculations in Sec. IV B, and is a length scale expected to increase with decreasing anisotropy, Fig. 7. This lateral length scale is about 50–100 nm for 1-nm-thick dots, and was found to be about 1–2 μm in dots with a much weaker bulk Fe fourth-order anisotropy.⁵³

Following this discussion, it appears that the model is well suited to describe dots with in-plane uniaxial anisotropy, of thickness smaller than about half the exchange length, of lateral size much larger than the exchange length and the domain-wall width, and with a significant portion of their edges perpendicular to the easy axis of magnetization. To the contrary, the best suited method applicable to very small dots would be a variational method as the one introduced by Cowburn and Welland,³⁶ used to describe a close-to-uniformly-magnetized state.

B. Compliance with general micromagnetic statements

General micromagnetic theorems or statements are often invoked regarding some aspects of magnetization reversal. Let us check in this section that the results of the present model comply with them. We discuss successively the relevance of a single-domain (SD) state and that of the numerical value of exponent α .

A key prediction of our model is that the magnetization configuration is uniform above a given external applied field. With the parameters of our Fe dots²⁵ this field is negative, which means that the magnetization configuration is uniform for $h=0$. Besides, the predicted configuration is always uniform below a critical thickness, whatever the external field is. These predictions were confirmed by numerical calculations (see Fig. 9). The occurrence of a perfectly uniform magnetization state in a half-infinite slab may be surprising at first glance. Indeed it is well known that the only systems that may be uniformly magnetized under a finite external field are those bounded by a surface with a polynomial equation whose degree is at most equal to two^{54,55}: ellipsoids, paraboloids, hyperboloids, cylinders, and slabs. In particular, the magnetization is never uniform in the vicinity of edges or corners, because of the logarithmic divergence of dipolar fields.⁴¹ Despite the two sharp edges of a half-infinite slab, we can get a uniform magnetization in our model because of one hypothesis we made: the magnetization direction is uniform throughout the thickness of the slab and is maintained in the plane of the film. We are therefore put back to a perfectly 2D system, whose single edge is a line (the 2D

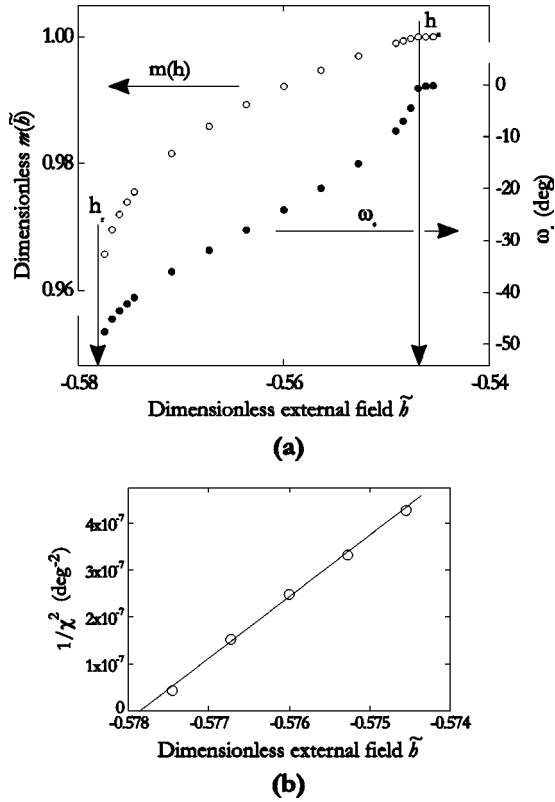


FIG. 9. (a) Detail of the numerically simulated hysteresis loop $m(h)$ and spin angle ω_0 at the edge of a half-infinite flat dot with translation symmetry parallel to the edge. The parameters used were $m=2.81$ and $e=4$ nm (points with the largest thickness in Fig. 4). (b) Squared inverse of susceptibility $\chi=d\omega_0/dh$ in the vicinity of the reversal field, for the same sample.

analogy of a 3D surface) and is therefore of first order. Besides, the dipolar fields do not diverge in the vicinity of the edge, due to their averaging over the slab thickness.⁴¹ Finally, as the edge is exactly perpendicular to the easy axis of magnetization, the symmetry of the Brown condition (the Euler equation at the very edge) and that of the anisotropy plus Zeeman energy 2D dot are identical (the field is applied exactly perpendicular to the edge), so that the slab may be uniformly magnetized. Therefore, the predictions of the model do not contradict the micromagnetic theory of uniform magnetization. Note that, however, in the case of a real finite-size dot (even defect free), it is most probable that no component of the magnetization is uniform, because of corners and edge orientations other than parallel or perpendicular to the external field and anisotropy axis.

Let us now discuss the predictions of the numerical values of exponent α . Two statements can be inferred from the model. First, $\alpha_{SD}=2$ and $\alpha_{NU}=1.5$ remind us of the exponents derived in the framework of coherent rotation: $\alpha=2$ when the external field is applied exactly along the easy axis, i.e., when $\mathbf{m}$ and $\mathbf{h}$ are always collinear, whereas $\alpha=1.5$ when the external applied field is applied at an angle away from the easy axis, i.e., when $\mathbf{m}$ and $\mathbf{h}$ are not collinear.⁵⁶ Second, our model emphasizes that the numerical values of α given above are relevant only for first-order expansions and that the field dependence of the energy barrier is gener-

ally not a polynomial law. The law is polynomial for neither α_{SD} nor α_{NU} in the present model. Indeed these are exponents of the leading term of a series expansion of the energy barrier, which is not an exact polynomial function of $\tilde{h}_r - \tilde{h}_r(T=0)$. In the theory of coherent rotation,²⁶ for noncollinear $\mathbf{m}$ and $\mathbf{h}$ the law is also nonpolynomial, whereas in the collinear case the energy barrier field dependence is exactly parabolic. Therefore, there is not a full analogy between CR and the present model. The experimental consequences are twofold. First, it is not incorrect to find experimental exponents different from 2 or 1.5 for nucleation events, or even to find that the energy barrier dependence is not polynomial. Second—and this is a direct corollary of the first statement—the exponent α yielded by fitting the energy barrier dependence issued from experimental data depends on the investigated energy barrier range. Consequently one should be careful to compare α exponents issued from analyses carried out over the same energy barrier range, as we did on Sec. IV C.

C. Parallel with a Landau-like energy

Phase transitions are often described by expanding the free energy of a system in the vicinity of the transition, leading to a so-called Landau energy. In the simplest case only terms with even integral powers of the order parameter ω_0 are considered:

$$e = a\omega_0^2 + b\omega_0^4 + c\omega_0^6. \quad (32)$$

This energy is obtained in our case by the torques given by Eqs. (9) and (22). The link with Eqs. (23) and (24) is $a=C$, $b=B/2$, and $c=A/3$. We focus below on magnetization reversal processes at $T=0$ K, which means that metastability is maximum, and the reversal is determined by the disappearance of the local minimum. In this case and using the Landau-energy framework, the reversal occurs when a changes its sign. The variation of the “order parameter” ω_0 across the reversal is discontinuous for $b<0$ and continuous for $b>0$. The discontinuity is the signature of the nonreversed SD state to reversed SD event, whereas the continuity is associated with the SD-to-NU state event. Therefore, in our case the change of the sign of b with the condition $a=0$ determines the critical thickness t_c below which the dot is always in a single-domain state. Besides, above t_c the reversal field $\tilde{h}_r$ depends on the value of c .

Some general features of a phase transition can be predicted once the expansion of the free energy is performed. Systems described by similar expansions have identical critical exponents—they belong to the same *class of universality*. It is straightforwardly derived from Eq. (32) that the order parameter ω_0 grows with a power 1/2 after a second-order transition occurs. In the context of the model this is expressed as $\omega_0^2 \sim h_n - h$. It can be shown that the critical exponent is 1/2 before h_r as well, i.e., that $(\omega_0 - \omega_0^{max})^2 \sim h - h_r$ (this can also be checked numerically from the data of Fig. 2). The prediction of these exponents has been made possible by the approximations of the model, which restricted the problem to a self-consistent equation with one

parameter only. Without these approximations, the class of universality of a real dot with nonuniform magnetization cannot be predicted straightforwardly because of the large number of degrees of freedom involved. We used numerical calculation to gain insight into the behavior of such more realistic dots. We derived critical exponents in the case of a simulated half-infinite slab with a translation symmetry parallel to the edge (see Sec. IV B). The simulated loops used to derive these exponents are the same that were used to derive the simulated phase diagram in Fig. 4 [see Fig. 9(a)]. From these curves, we shall find for $\tilde{h}_r$ and $\tilde{h}_n$ the exponent β such that $\omega_0(h) - \omega_0(h_c) \sim (h - h_c)^\beta$ (h_c is h_r or h_n). In the case of nucleation, $\omega_0(h_n) = 0$, so that $\omega_0(h) \sim (h - h_n)^\beta$. Besides, ω_0 is close to zero in the vicinity of h_n , so that $m \sim 1 - \omega_0^2/2 \sim (h - h_n)^{2\beta}$. A close inspection of Fig. 9(a) reveals that m varies linearly with h in the vicinity of h_n . Thus, we deduce $\beta = 1/2$ for nucleation. The case of reversal of a NU state is more difficult to handle, as the nonzero value of $\omega_0(h_r) \neq 0$ has to be extrapolated from simulations just before the reversal, which may induce errors in the evaluation of β . Instead we used a procedure based on the evaluation of the susceptibility $dm/d\tilde{h}$. It can be shown straightforwardly that $1/\chi^2 \sim (h - h_c)^{2(1-\beta)}$. We check in Fig. 9(b) that $1/\chi^2$ varies linearly with h in the vicinity of h_r , which proves that $\beta = 1/2$. Therefore, the critical exponent β equals exactly $1/2$ in the vicinity of both h_n and h_r , i.e., exactly the same value as in the simplified case of the torque model. This indicates that the hypotheses made in the framework of the analytical model do not prevent the qualitative behavior of dots to be predicted. The simulated prediction of exponents $1/2$ does not seem to be related to the present restrictive geometry (1D set of degrees of freedom) as an exponent $1/2$ was also found during the onset of reversal in 3D ferromagnetic cubes.⁵⁷

D. Simplified forms of the results

We shall now make use of the analogy developed in the previous paragraph, in order to derive an approaching scaling law for the nucleation field in the limit of low thickness. In this limit, $h_n = h_r$ is determined by the cancellation of a , which leads to the following equation [Eqs. (15)–(19) and (24)]:

$$-\ln\left(\frac{t}{2}\sqrt{1+\tilde{h}}\right) = C - 1 + \frac{4\pi}{m^2 t}\sqrt{1+\tilde{h}}, \quad (33)$$

where C is Euler's constant. The above logarithm function prevents any exact polynomial scaling law from being derived for $1+\tilde{h}_n$. However, as $\sqrt{1+\tilde{h}}$ goes to zero when t goes to zero, the left-hand side of Eq. (33) diverges, so that t is negligible before $\sqrt{1+\tilde{h}}$. More precisely, $\sqrt{1+\tilde{h}}$ is negligible before any function $t^{\alpha/2}$ for $\alpha/2 < 1$, in the limit of $t \rightarrow 0$. Phenomenologically, $1+\tilde{h}$ behaves locally like t^α , with α being smaller than 2, but closer and closer to 2 when t goes to zero. Plotting $1+\tilde{h}$ as a function of t in a log-log scale reveals that α is very close to 1.5 in a broad range of m values, for $t > 0.02$ and $\tilde{h}_r$ below approximately 0.2 (Fig. 10): $(1+\tilde{h}) \sim t^{3/2}$. As a matter of fact, $(1+\tilde{h})/t^{3/2}$ slightly de-

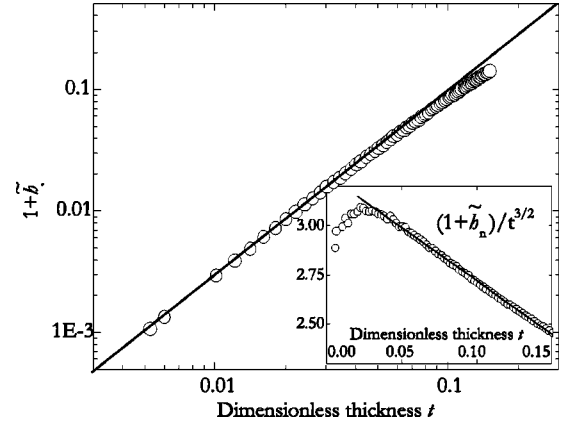


FIG. 10. Log-log plot of $1+\tilde{h}_n$ as a function of dimensionless thickness t , for $m = 2.81$. The slope of the line is exactly $3/2$. Inset: $(1+\tilde{h}_n)/t^{3/2}$ as a function of t , showing a weakly thickness-dependent value. The line is the result of a linear fit for thickness above 0.03.

creases with t , as shown in the inset of Fig. 10. Taking into account this slight slope, we could derive the following phenomenological expression from fits for various m values:

$$1 + \tilde{h}_n \approx 0.0873 m^{7/2} t^{3/2} (1 - 0.596 m t) \quad (34)$$

or, expressed in SI units,

$$1 - \left| \frac{H}{H_a} \right| \approx 0.0873 \left(\sqrt{\frac{\mu_0 M_s^2}{A}} \right)^{7/2} \left(\frac{A}{K} \right)^2 T^{3/2} \times \left(1 - 0.596 T \sqrt{\frac{\mu_0 M_s^2}{A}} \right). \quad (35)$$

Equation 35 is accurate within a few percent in the range $m \in [1.5, 6]$ and $\tilde{h} < -0.75$, and can be used for a quick evaluation of $\tilde{h}_n$. Let us finally recall the reader that very often K originates mainly, in interface anisotropy in the ultrathin regime, following the phenomenological law $K \sim K_s/T$,⁵⁸ so that $1 + |H/H_a|$ is expected to scale with $T^{5/2}$ in that case.

We end the discussion by clarifying a discrepancy that may appear with previously published results. Indeed, we shortly mentioned the principle and basic outputs of the present model in a Letter.²⁵ The formulas given in Ref. 25 are much simpler than those given here. This is due to the fact that we previously did not make a full expansion of all equations up to ω_0^6 . Instead, we considered for the coefficients of each power only the leading terms, in the limit of small thickness. We shall not give the details of these approximations here, but it can be checked in Fig. 11 that the crude version of Ref. 25 and the present model yield identical results in a reasonable range of low thickness. The agreement is found to be better for smaller dimensionless magnetization m .

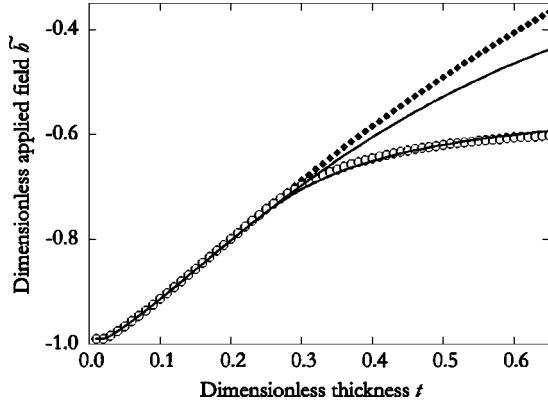


FIG. 11. Predictions of the present model for $\tilde{h}_n$ (solid diamonds) and $\tilde{h}_r$ (open dots). The lines show the values predicted by the simplified formulas given in Ref. 25. We used magnetization $m = 2.81$ in the calculations.

VI. CONCLUSION

In the case of flat dots with in-plane uniaxial anisotropy and lateral dimensions well above the exchange length λ_{ex} and the domain wall width λ_{wall} , magnetization reversal occurs by a localized nucleation event followed by a fast wall propagation. In the literature the reversal field is often predicted by assuming that coherent rotation occurs in a phenomenological nucleation volume V_n . The effect of the dipolar field acting on V_n is then often estimated by calculating the aspect ratio of an approaching geometry of the dot, which is related to the average dipolar energy over the whole dot. This approach is not valid because (1) dipolar fields are highly nonhomogeneous in a uniformly magnetized flat dot and (2) exchange forces are neglected.

We proposed in this article an analytical model specific to ultrathin flat dots with in-plane uniaxial anisotropy, which takes into account these two aspects. The major approximations of the model are the following: (1) The geometry is simplified to a half-infinite slab with a linear infinite edge perpendicular to the easy axis of magnetization. (2) The demagnetizing effects are taken into account as a pinpoint torque applied at the edge. Under these assumptions we derived analytical equations for the field-dependent configura-

tion of the nucleation volume. The reversal field $\tilde{h}_r$ and the exponent α associated with the field dependence of the energy barrier preventing reversal are predicted. $|\tilde{h}_r|$ is found to decrease with either increasing thickness T or increasing volume magnetization M_s , or decreasing anisotropy K . Below a critical thickness the static configuration of the slab is predicted to be always single domain (i.e., perfectly uniformly magnetized) whatever $\tilde{h}$ is, and $\alpha = 2$. Above this critical thickness a nucleation field $\tilde{h}_n$ is also derived with $|\tilde{h}_n| < |\tilde{h}_r|$, and $\alpha = 1.5$. In the limit of small thickness, the following approached scaling law is found: $1 - |H_r/H_a| \sim M_s^{7/2} A^{-3/4} K^{-1} T^{3/2}$, where A is the exchange stiffness and H_a is the anisotropy field, i.e., the reversal field predicted for coherent reversal. It must be noted that H_r goes toward H_a although the reversal is demonstrated to be not coherent. This emphasizes that the measure of an experimental astroid-like $H_r(\theta)$ is not sufficient alone to conclude that coherent reversal indeed occurs in a real system.

All model predictions are in good quantitative agreement with numerical calculations and/or experiments. Numerical calculations also showed that $\tilde{h}_r$ does not depend much on the particle shape or size, contrary to what is usually found for dots made of soft material. It follows from this and from the more detailed discussion in the paper that this model should be a simple and reliable tool to investigate and predict characteristics of magnetization reversal processes in thin flat dots with a uniaxial in-plane anisotropy, provided that the following conditions are simultaneously fulfilled: (1) the thickness of the dots is much smaller than the exchange length, (2) the lateral size of the dots is well above λ_{ex} and λ_{wall} , and (3) a significant part of the dot edge is approximately linear and roughly perpendicular to the easy axis of magnetization. A “significant part” is to be compared with several times λ_{ex} and λ_{wall} . Finally, (4) the hysteresis loop is performed along the easy axis of magnetization.

ACKNOWLEDGMENTS

We are grateful to Pr. Gradmann (MPI Halle, Germany) for stimulating discussions and for a thorough and critical reading of the manuscript.

*Corresponding author. Electronic address: fruch@polycnrs-gre.fr

¹F. J. Himpsel, J. E. Ortega, G. J. Mankey, and R. F. Willis, *Adv. Phys.* **47**, 511 (1998).

²*Magnetic Ultrathin Films, Multilayers and Surfaces*, edited by A. Fert, H. Fujimori, G. Guntherodt, B. Heinrich, W. F. Egelhoff, Jr., E. E. Marinero, H. Fujimori, and R. L. White, MRS Symposia Proceedings No. 384 (Materials Research Society, Pittsburgh, 1995).

³*Ultrathin Magnetic Structures*, edited by J. A. C. Bland and B. Heinrich (Springer-Verlag, Berlin, 1994).

⁴*Magnetism and Structure in Systems of Reduced Dimensions*, Vol. 309 of *NATO Advanced Study Institute, Series B: Physics*, edited by R. F. C. Farrow, B. Dieny, M. Donath, A. Fert, and B. D. Hermsmeier (Plenum Press, New York, 1993).

⁵M. S. Wei and Y. S. Chou, *J. Appl. Phys.* **76**, 6679 (1994).

⁶W. Wernsdorfer, B. Doudin, D. Mailly, K. Hasselbach, A. Benoit, J. Meier, J.-P. Ansermet, and B. Barbara, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1873 (1996).

⁷L. Ressler, A. Schuhl, F. N. V. Dau, K. Postava, M. Goiran, J. P. Peyrade, and A. R. Fert, *J. Appl. Phys.* **81**, 5464 (1997).

⁸A. Sugawara, G. G. Hembree, and M. R. Scheinfein, *J. Appl. Phys.* **82**, 5662 (1997).

⁹J. Hauschild, U. Gradmann, and H. J. Elmers, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 3211 (1998).

¹⁰B. Voigtländer, G. Meyer, and N. M. Amer, *Phys. Rev. B* **44**, 10 354 (1991).

¹¹S. Y. Chou, M. S. Wei, and P. B. Fischer, *IEEE Trans. Magn.* **MAG-30**, 4485 (1994).

¹²W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, D. Mailly, B. Barbara, A. Benoit, L. Thomas, and G. Suran, *J. Magn. Mater.* **145**,

- 33 (1995).
- ¹³N. Bardou, B. Bartenlian, C. Chappert, R. Mégy, P. Veillet, J. P. Renard, F. Rousseaux, M. F. Ravet, J. P. Jamet, and P. Meyer, *J. Appl. Phys.* **79**, 5848 (1996).
 - ¹⁴M. Hehn, K. Ounadjela, J. P. Bucher, F. Rousseaux, D. Decanini, B. Bartenlian, and C. Chappert, *Science* **272**, 1782 (1996).
 - ¹⁵L. Ressler, J. Diaz, and J. P. Peyrade, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 2195 (1997).
 - ¹⁶P. R. Krauss and S. Y. Chou, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 3174 (1997).
 - ¹⁷W. Wernsdorfer, E. B. Orozco, K. Hasselbach, A. Benoit, B. Barbara, N. Demoncy, A. Loiseau, H. Pascard, and D. Mailly, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1791 (1997).
 - ¹⁸M. Sussiau, F. Nguyen-Van-Dau, P. Galtier, and A. Schuhl, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 857 (1996).
 - ¹⁹U. Gradmann, T. Dürkop, and H. J. Elmers, *J. Magn. Magn. Mater.* **165**, 56 (1997).
 - ²⁰L. F. Schelp, A. Fert, F. Fettar, P. Holody, S. F. Lee, J. L. Maurice, F. Petroff, and A. Vaures, *Phys. Rev. B* **56**, R5747 (1997).
 - ²¹Y. Lu, R. A. Altman, A. Marley, S. A. Rishton, P. L. Trouillard, G. Xiao, W. J. Gallagher, and S. S. P. Parkin, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 2610 (1997).
 - ²²R. L. White, *Data Storage* **4**, 55 (1997).
 - ²³O. Fruchart, J.-P. Nozières, B. Kevorkian, J.-C. Toussaint, D. Givord, F. Rousseaux, D. Decanini, and F. Carcenac, *Phys. Rev. B* **57**, 2596 (1998).
 - ²⁴J.-E. Wegrowe, O. Fruchart, J.-P. Nozières, D. Givord, F. Rousseaux, and D. Decanini, *J. Appl. Phys.* **86**, 1028 (1999).
 - ²⁵O. Fruchart, J.-P. Nozières, W. Wernsdorfer, D. Givord, F. Rousseaux, and D. Decanini, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1305 (1999).
 - ²⁶L. Néel, *C. R. Acad. Sci.* **224**, 1550 (1947).
 - ²⁷E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth, *Philos. Trans. R. Soc. London, Ser. A* **240**, 599 (1948).
 - ²⁸M. Rührig, W. Bartsch, M. Vieth, and A. Hubert, *IEEE Trans. Magn.* **MAG-26**, 2807 (1990).
 - ²⁹W. F. J. Brown, *Phys. Rev.* **105**, 1479 (1957).
 - ³⁰E. H. Frei, S. Shtrikman, and D. Treves, *Phys. Rev.* **106**, 446 (1957).
 - ³¹A. Aharoni and S. Shtrikman, *Phys. Rev.* **109**, 1522 (1958).
 - ³²A. Aharoni, *Phys. Status Solidi* **16**, 3 (1966).
 - ³³H. A. M. V. den Berg, *J. Magn. Magn. Mater.* **44**, 207 (1984).
 - ³⁴H. A. M. V. den Berg, *J. Appl. Phys.* **60**, 1104 (1986).
 - ³⁵P. Bryant and H. Suhl, *Appl. Phys. Lett.* **54**, 78 (1989).
 - ³⁶R. P. Cowburn and M. E. Welland, *Phys. Rev. B* **58**, 9217 (1998).
 - ³⁷R. P. Cowburn and M. E. Welland, *J. Appl. Phys.* **86**, 1035 (1999).
 - ³⁸S. T. Chui and V. N. Ryzhov, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 2224 (1997).
 - ³⁹W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, A. Benoit, G. Cernicchiaro, D. Mailly, B. Barbara, and L. Thomas, *J. Magn. Magn. Mater.* **151**, 38 (1995).
 - ⁴⁰O. Fruchart, W. Wernsdorfer, J.-P. Nozières, D. Givord, F. Rousseaux, D. Mailly, D. Decanini, and F. Carcenac, *J. Magn. Magn. Mater.* **198-199**, 228 (1999).
 - ⁴¹W. Rave, K. Ramstöck, and A. Hubert, *J. Magn. Magn. Mater.* **183**, 329 (1998).
 - ⁴²A. Aharoni, *Phys. Rev.* **119**, 127 (1960).
 - ⁴³H. Träuble, O. Boser, H. Kronmüller, and A. Seeger, *Phys. Solid State* **10**, 283 (1965).
 - ⁴⁴I. S. Gradshteyn and I. M. Ryzhik, *Table of Integrals, Series, and Products*, 5th ed. (Academic Press, London, 1994).
 - ⁴⁵A. Aharoni, *IEEE Trans. Magn.* **MAG-22**, 478 (1986).
 - ⁴⁶J.-C. Toussaint, B. Kevorkian, O. Fruchart, and J. Voiron, in *Proceedings of the Tenth International Symposium on Magnetic Anisotropy and Coercivity in Rare-Earth Transition Metal Alloys, Dresden, Germany, 1998* (Werkstoff-Informationgesellschaft, Frankfurt, Germany, 1998).
 - ⁴⁷We used the fast Fourier transform procedure developed by M. Frigs and S. G. Johnson, that is able to handle meshes with a number of cells equaling an arbitrary product of prime integers, not only powers of 2 (<http://www.fftw.org>).
 - ⁴⁸O. Fruchart, J.-P. Nozières, and D. Givord, *J. Magn. Magn. Mater.* **207**, 146 (1999).
 - ⁴⁹W. F. J. Brown, *Phys. Rev.* **130**, 1677 (1963).
 - ⁵⁰K. J. Kirk, J. N. Chapman, and C. D. W. Wilkinson, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 539 (1997).
 - ⁵¹J. Shi, T. Zhu, M. Durlam, S. Tehrani, Y. F. Zheng, and J.-G. Zhu, *IEEE Trans. Magn.* **MAG-34**, 997 (1998).
 - ⁵²J. Gadbois, J.-G. Zhu, W. Vavra, and A. Hurst, *IEEE Trans. Magn.* **MAG-34**, 1066 (1998).
 - ⁵³Y. B. Xu, A. Hirohata, L. Lopez-Diaz, H. T. Leung, M. Tselepi, S. M. Gardiner, W. Y. Lee, J. A. C. Bland, F. Rousseaux, E. Cambril, and H. Launois, *J. Appl. Phys.* **87**, 7019 (2000).
 - ⁵⁴J. C. Maxwell, *A Treatise on Electricity and Magnetism*, 3rd ed. (Clarendon, Oxford, 1872), Vol. 2, pp. 66–73.
 - ⁵⁵J. A. Osborn, *Phys. Rev.* **67**, 351 (1945).
 - ⁵⁶R. H. Victora, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 457 (1989).
 - ⁵⁷A. Hubert and W. Rave, *Phys. Status Solidi B* **211**, S815 (1999).
 - ⁵⁸P. Bruno, *J. Appl. Phys.* **64**, 3153 (1988).