



HAL
open science

Magnétométrie à micro-SQUID pour l'étude de particules ferromagnétiques isolées aux échelles

Wolfgang Wernsdorfer

► **To cite this version:**

Wolfgang Wernsdorfer. Magnétométrie à micro-SQUID pour l'étude de particules ferromagnétiques isolées aux échelles. Matière Condensée [cond-mat]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 1996. Français. NNT: . tel-00010959

HAL Id: tel-00010959

<https://theses.hal.science/tel-00010959>

Submitted on 13 Nov 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.

THÈSE

présentée par

Wolfgang WERNSDORFER

pour obtenir le titre de

DOCTEUR

DE L'UNIVERSITÉ JOSEPH FOURIER-GRENOBLE I
(arrêtés ministériels du 5 juillet 1984 et du 30 mars 1992)

(Spécialité : Physique)

Magnétométrie à micro-SQUID pour l'étude de particules ferromagnétiques isolées aux échelles sub- microniques

Date de soutenance
19 mars 1996

COMPOSITION DU JURY

B. Barbara
A. Benoit
A. Fert (Président)
M. Devoret
K. Hasselbach
D. Mailly
J. Miltat
J. L. Porteseil

Thèse préparée au sein du Centre de Recherches sur les Très Basses Températures et
du Laboratoire de Magnétisme Louis Néel,
C.N.R.S. - Grenoble
(Laboratoires associés à l'Université Joseph Fourier - Grenoble)

Summery

Micro-SQUID magnetometry to study the magnetisation reversal of single submicronic ferromagnetic particles

We present the first magnetization measurements of single submicronic particles at very low temperature (0.1 - 6 K) using micro-bridge-DC-SQUIDs with a flux resolution corresponding to $10^4 \mu_B$. We have mainly studied particles patterned by electron-beam lithography (500 - 50 nm), but also wires and clusters.

The angular dependence of the smallest particles, patterned by electron-beam lithography, was close to the model of uniform rotation predicted by Stoner and Wohlfarth. Nevertheless, the magnetisation reversal was triggered by a nucleation process. The temperature (1 to 6 K) and applied field sweeping rate dependence (0.01 to 100 mT/s) of the mean switching field could be described by the simple model of Kurkijärvi based on thermal activated switching. The failure of the model below 1 K can be an indication of macroscopic quantum tunneling. Furthermore we measured the probability for switching at constant applied magnetic field as a function of time and temperature. For the smallest particles it was close to an exponential function. The mean waiting time followed an Arrhenius law, despite temperatures below 1 K a deviation was found which was similar to the one of the mean switching field. Finally, the increase of the width of the switching field distribution at lower temperature is probably due to sample defects (surface roughness, crystalline defects, impurities, etc.) inducing a multi-valley energy landscape revealed at low temperature when the thermal energy is of the same order than the fluctuations of the energy surface.

Résumé

Au cours de ce travail de thèse, nous avons effectué les premières mesures de l'aimantation d'une seule particule ferromagnétique à basse température (0.1 - 6 K) à l'aide de SQUID hystériques continus extrêmement performants : la sensibilité de nos mesures est de $10^4 \mu_B$. Nous avons étudié des systèmes multiples et variés, tout d'abord des particules faites par lithographie électronique de forme elliptiques et de dimensions supérieures à 50 nm, mais aussi des fils magnétiques et des agrégats.

En ce qui concerne les plus petites particules et les fils magnétiques, la dépendance angulaire du champ de retournement est en accord qualitatif avec la théorie du micromagnétisme classique décrivant le retournement de l'aimantation par les modes de rotation uniforme et de curling. Cependant le déclenchement du retournement de l'aimantation s'effectue par un processus de nucléation.

Les études de la dynamique de retournement de l'aimantation faites sur les particules obtenues par lithographie, les fils magnétiques et les particules monocristallines ont montré que le retournement de l'aimantation est activé thermiquement et peut être approximativement décrit par le modèle de Kurkijärvi, modèle basé sur l'activation thermique de type Arrhenius. Il y a cependant deux déviations principales par rapport à ce modèle. Premièrement, l'ajustement n'est possible qu'au dessus d'une certaine température (typiquement au dessus de 1 K). En dessous de cette température critique, la dynamique de retournement semble devenir indépendante de la température. Ceci pourrait être dû à un effet quantique qui s'étend sur le volume d'activation. La deuxième déviation par rapport au modèle est une courbure résiduelle de la courbe majeure de l'ajustement qui pourrait s'interpréter par une diminution du volume d'activation vers les basses températures. Cette interprétation pourrait aussi expliquer l'augmentation de la largeur de la distribution du champ de retournement lorsque la température décroît.

En ce qui concerne les mesures de la probabilité de retournement de l'aimantation nous avons trouvé pour les plus petites particules que cette probabilité est proche d'une exponentielle ce qui jusqu'à présent n'était qu'une hypothèse dans presque tous les modèles existants. Cependant il existe de nouveau deux déviations à plus basse température probablement de même origine que les déviations observées sur les mesures de la distribution du champ de retournement.

Nos mesures ont aussi montré l'influence de défauts (rugosité de surface, défauts cristallins, impuretés, oxydation, etc.) qui créent de multiples vallées et cols dans la surface d'énergie potentielle décrivant le système. Ces vallées et cols sont en fait révélés lorsque l'énergie thermique est du même ordre de grandeur ou inférieure à ces fluctuations de la surface d'énergie.

Remerciements

J'ai effectué ma thèse à cheval entre le Centre de Recherche sur les Très Basses Températures et le Laboratoire de magnétisme Louis Néel. Je tiens donc à remercier en premier lieu les deux directeurs de laboratoire Pierre Monceau (CRTBT) et Dominique Givord (L. Néel) pour l'accueil dans leurs laboratoires et pour leur collaboration qui était particulièrement importante au cours de mon travail de thèse.

Je tiens aussi à exprimer mes vifs remerciements à tous les membres du jury de thèse, en particulier le président Albert Fert et les deux rapporteurs, Jacques Miltat et Michel Devoret qui ont porté un oeil critique sur la rédaction de mon travail.

Un témoignage de ma profonde reconnaissance s'adresse à mes deux directeurs de thèse, Alain Benoît et Bernard Barbara, qui m'ont encadré du point de vue expérimental et théorique tout en me laissant m'exprimer très librement sur le sujet.

Je tiens à remercier chaleureusement Klaus Hasselbach qui m'a conseillé et aidé tout au long de la thèse.

Un grand merci aussi à Dominique Mailly qui n'a jamais eu de cesse pour l'élaboration des micro-SQUID. C'est donc seulement grâce à lui et Alain Benoît, qui en développant la technique de mesure avec des SQUID, ont rendu ce travail de thèse réalisable.

Pendant la première partie de ma thèse, j'ai partagé un cryostat avec Michel Martin. Il était toujours prêt de me laisser continuer mes expériences. Dans la seconde partie, il m'a cédé le cryostat et a continué à travailler avec un autre cryostat moins performant. Ceci était particulièrement important pour mes mesures mais a signifié un sacrifice important pour Michel. Je le remercie donc profondément pour son aide.

Mes remerciements s'adressent aussi à tous nos collaborateurs (voir la page suivante). En particulier, je voudrais remercier l'équipe d'agrégats à Villeurbanne, J. Tuillon, V. Dupuis, J.P. Perez, J.P. Dupin, G. Guiraud et A. Perez, qui m'ont toujours accueilli chaleureusement pendant mes séjours chez eux. De plus, j'ai particulièrement bien apprécié la collaboration avec Bernard Doudin qui m'a envoyé, en plus de nombreux échantillons, presque tous les jours au moins un e-mail. Je tiens aussi à remercier N. Demoncey, H. Pascard, A. Loiseau et D. Boivin pour la nouvelle collaboration prometteuse (voir l'annexe 6).

Un merci à S. Mangin, G. Marchal, J. Meier, C. Paulsen, A. Sulpice, L. Thomas pour leurs contributions expérimentales à ce travail de thèse.

Merci aussi à R. Ballou, G. Cernicchiaro, O. Fruchard, F. Lioni, J.P. Nozière, A. Paragina, P. Pognat, P. Ross, L. Sampaio, J.L. Tholence.

Pour les nombreuses discussions scientifiques, je tiens à remercier en particulier J.L. Porteseil, J. Souletie et J.E. Wegrowe, mais aussi B. Castaing, R. Ferré, B. Pannetier, R. Mélin, J. Miltat.

Sur le plan international, je remercie en particulier A. Aharoni, J.Ph. Ansermet, D.D. Awschalom, B.H. Braun, E.M. Chudnovsky, A. Garg, L. Gunther, D. Loss, P.C.E. Stamp, S. Shtrikman, S. Schultz.

Je tiens à remercier l'ensemble du personnel du CRTBT et L. Néel, en particulier les techniciens du CRTBT qui ont apporté une contribution importante à ce travail. Je remercie notamment les constructeurs du cryostat et le service d'électronique. Un grand merci aussi à Danièle Devillers qui a lu et corrigé ma thèse.

Un grand merci aussi au personnel du service de liquéfaction d'avoir toujours rapidement rempli d'hélium mon vase de 250 litres.

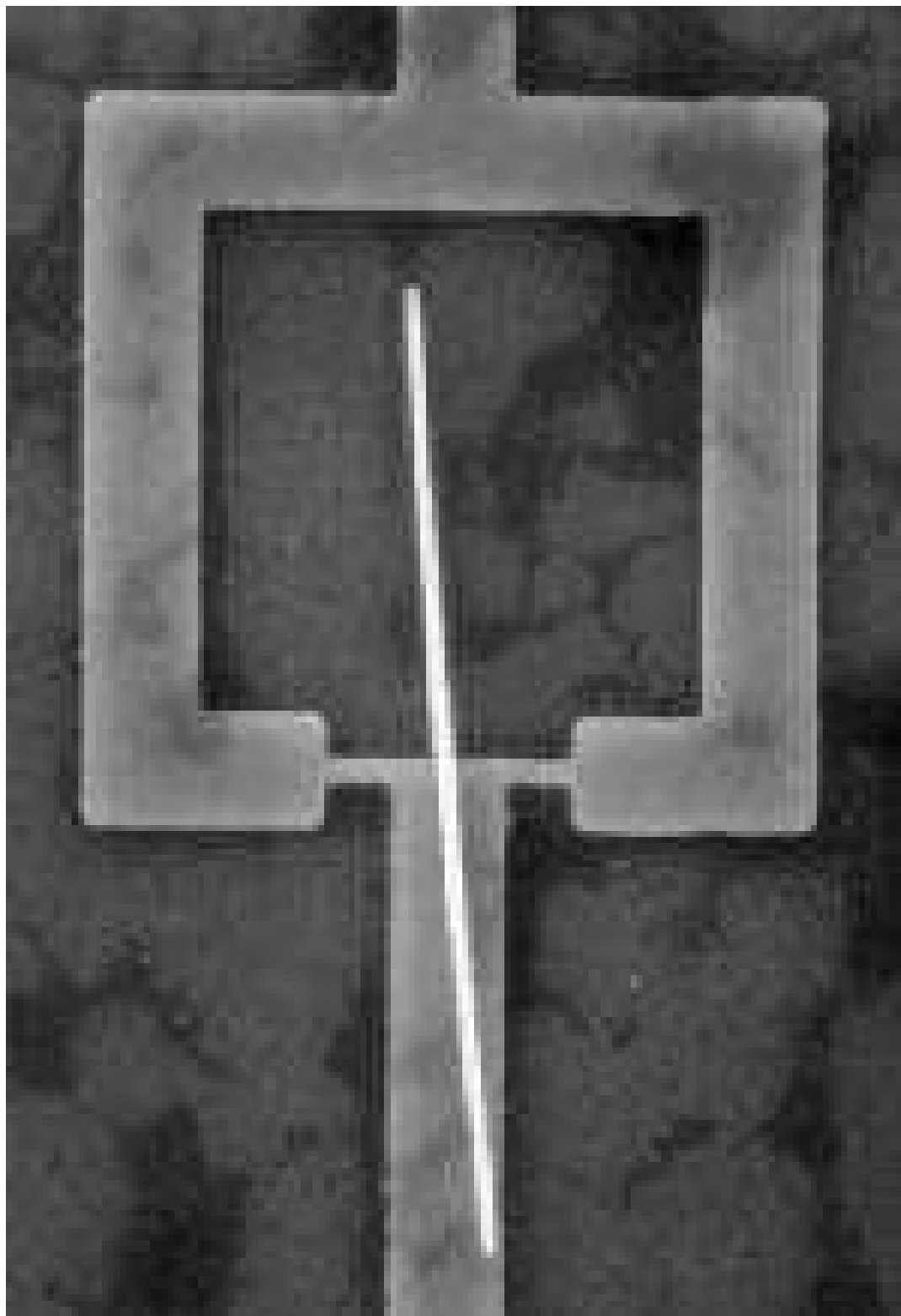
Je remercie Alexandre Ziminski pour le dessin de l'énergie potentielle multi-chemins.

Je dois enfin remercier tout particulièrement le soleil de ma vie, Laure, qui m'a aidé à écrire ce manuscrit de thèse et qui a aussi contribué à ce travail par sa patience pendant les soirées qu'elle a passées seule.

Nos collaborations

Ce travail de thèse a été effectué au CRTBT en étroite collaboration avec plusieurs équipes de recherche. Chaque équipe a joué un certain rôle me permettant de mener au mieux mon travail de thèse. Voici ci-dessous une liste de toutes les équipes concernées et de leurs interventions dans mon travail :

1. Mesure des micro-particules à très basses températures :
W. Wernsdorfer^(1,2), K. Hasselbach⁽¹⁾, A. Benoit⁽¹⁾, B. Barbara⁽²⁾
(1) CRTBT-CNRS BP166x 38042 Grenoble, France
(2) LLNEEL-CNRS BP166X 38042 Grenoble, France
2. Lithographie électronique :
D. Mailly
LMM-CNRS, 196 Av. H. Ravera, 92220 Bagneux, France
3. Mesure des réseaux de particules :
A. Sulpice⁽¹⁾, J.-E. Wegrowe⁽²⁾
4. Elaboration des couches en Nb :
T. Crozes⁽¹⁾, B. Pannetier⁽¹⁾
5. Elaboration des couches minces magnétiques :
L. Thomas⁽²⁾, S. Mangin^(2,3), G. Marchal⁽³⁾,
(3) LMPSM, Uni. H. Poincaré Nancy 1, BP 239, 54506 Vandœuvre Cédex
G. Suran, R. Krishnan, LMMM-CNRS, 1 Place Aristide Briand, 92195 Meudon
C. Chappert, I.E.F., Uni. Paris-Sud, URA CNRS 022, Orsay
H. Legall, Desvigne, CNRS - Bellevue
Marty, CENG, Grenoble, France
6. Elaboration des fils de Ni et Co :
B. Doudin, J. Meyer, J.-Ph. Ansermet
IPE - EPFL, 1015 Lausanne, Suisse
7. Elaboration d'agrégats de Ni, Co, Fe :
J. Tuaille, J.P. Perez, V. Dupuis, J.P. Dupin, G. Guiraud, A. Perez
Dép. de Phys. des Mat., Uni. Claude Bernard - Lyon I, Villeurbanne
8. Elaboration des particules magnétiques monocristalines :
N. Demoncy, H. Pascard, SESI - CEA/CNRS, Ecole Polytechnique, 91128 Palaiseau
A. Loiseau, D. Boivin, OM - ONERA, 92322 Chatillon
9. Elaboration des particules magnétiques variées :
E. Tronc, LCMC, CNRS, 4 place Jussieu, 75252 Paris Cedex 05
L. C. Sampaio⁽²⁾, O. Kubo and M. Takeuchi, Toshiba Corporation, S, Japan
Y. Otani, Tohoku Univ., Japan



B. Doudin (IPE) et B. Senior (CIME), EPFL, Lausanne

Table des Matières

Introduction générale	1
Chapitre I : Aspects théoriques	5
I.1 Micromagnétisme classique	6
I.1.1 Rotation uniforme	6
I.1.2 Retournement non uniforme	11
I.2 Modèles pour la structure en domaines magnétiques	14
I.2.1 Modèle classique de Landau-Lifshitz	14
I.2.2 Modèle de Van den Berg	14
I.2.3 Modèle de Van den Berg généralisé dans le cas d'un champ magnétique appliqué	16
I.3 Variation de la barrière d'énergie en fonction du champ magnétique	18
I.4 Modèle simple décrivant le passage d'une barrière d'énergie (régime classique)	21
I.5 Effet quantique macroscopique dans les systèmes magnétiques	25
Chapitre II : Méthodes expérimentales	29
II.1 Principe du SQUID	30
II.2 Mesure de l'aimantation avec un SQUID hystérétique	33
II.2.1 Mesure directe du courant critique	33
II.2.2 Méthode de compensation ou contre-réaction	35
II.2.3 Couplage de la particule avec le SQUID à travers un transformateur de flux	37
II.2.4 Méthode pour détecter rapidement le retournement de l'aimantation	40
II.2.5 Dispositif des SQUID juxtaposés	41
II.2.6 Mesure de deux composantes de l'aimantation	42
II.3 Couplage entre la particule magnétique et la boucle du SQUID	42
II.3.1 Champ magnétique d'une petite particule magnétique	42
II.3.2 Position de la particule sur le SQUID	45
II.3.3 Facteur de couplage entre la particule magnétique et la boucle de SQUID	46
II.3.4 Résumé du signal induit par une particule magnétique	55
II.4 Sensibilité de notre technique de mesure	56
II.4.1 Limite théorique de la sensibilité des SQUID	56
II.4.2 Effets diminuant la sensibilité de la mesure du flux magnétique	57
II.4.3 Correction des mesures	60
II.4.4 Sensibilité obtenue avec les SQUID hystérétiques en Al et Nb	61
II.4.5 Amélioration de la sensibilité - SQUID shunté	61
II.5 Lithographie électronique	63
II.5.1 Principe de la lithographie électronique	63
II.5.2 Fabrication des SQUID et des particules magnétiques par lithographie électronique	64

II.6	Méthode d'obtention des très basses températures	65
II.7	Description de l'expérience	67
Chapitre III : Résultats expérimentaux		69
III.1	Protocole de mesures	70
III.1.1	Propriétés quasi-statiques	70
III.1.2	Propriétés dynamiques	70
III.2	Les différents types de cycles d'hystérésis	72
III.3	Particules submicroniques élaborées par lithographie électronique	77
III.3.1	Particule de Co nanocristallisé avec un retournement de l'aimantation proche du modèle de Stoner-Wohlfarth	78
III.3.2	Particule de Co nanocristallisé avec un retournement de l'aimantation non uniforme	84
III.3.3	Particules de Co nanocristallisé possédant une paroi - Particule isolée et réseau de particules	90
III.3.4	Séparation de la distribution des champs de retournement en deux états	99
III.3.5	Conclusion sur les particules élaborées par lithographie électronique	101
III.4	Fils de Ni	102
III.4.1	Elaboration et dépôt des fils	102
III.4.2	Dépendance angulaire du champ de retournement de l'aimantation	103
III.4.3	Nucléation du retournement de l'aimantation	105
III.4.4	Largeur σ de la distribution du champ de retournement	106
III.4.5	Probabilité de retournement de l'aimantation	107
III.4.6	Dépiégeage d'une paroi (vortex)	108
III.4.7	Retournement non uniforme de l'aimantation et influence des défauts des échantillons	109
III.4.8	Conclusion sur les mesures des fils	111
III.5	Agrégats de Ni, Co et Fe	112
III.5.1	Fabrication des agrégats	112
III.5.2	Dépôt des agrégats	112
III.5.3	Estimation du signal venant des agrégats sur la couche de PMMA	113
III.5.4	Formation des agrégats dans les coins du substrat	114
III.5.5	Mesures des cycles d'hystérésis	115
III.5.6	Conclusion sur les mesures des agrégats	119

Chapitre IV : Discussion des résultats expérimentaux	121
IV.1 Discussion du retournement de l'aimantation	122
IV.1.1 Configuration des spins d'une particule en lien avec les différents cycles d'hystérésis observés	122
IV.1.2 Influence des défauts de la particule sur la dépendance angulaire de H_{SW}	124
IV.2 Discussion de la dynamique du retournement de l'aimantation	125
IV.2.1 Dépendance thermique de H_{SW}	125
IV.2.2 Variation de H_{SW} en fonction de la vitesse de balayage du champ	126
IV.2.3 Ajustement du modèle de Kurkijärvi aux mesures de H_{SW}	126
IV.2.4 Choix de l'exposant α de la barrière d'énergie	128
IV.2.5 Origines possibles de la déviation du modèle de Kurkijärvi au dessous de 1 K pour H_{SW}	129
IV.2.6 Origines possibles de la courbure résiduelle de la courbe majeure de l'ajustement du modèle de Kurkijärvi	131
IV.2.7 Discussion sur la largeur σ de la distribution des champs de retournement	132
IV.2.8 Discussion sur la probabilité de retournement de l'aimantation	134
IV.2.9 Discussion concernant le préfacteur Γ_0 de la loi d'Ahrrenius	137
IV.2.10 Conclusion sur la dynamique du retournement de l'aimantation	138
IV.3 Comparaison avec d'autres modèles	138
IV.3.1 Modélisation de la dynamique de retournement par un système de spins d'Ising	138
IV.3.2 Approche statistique de la dynamique de retournement de l'aimantation	139
IV.4 Conclusion	140
Chapitre V : Extension de la technique de mesure	143
V.1 Comparaison entre un magnétomètre à SQUID classique et un micro-SQUID	144
V.2 Technique du micro-SQUID pour étudier des échantillons avec une taille bien supérieure à la taille du SQUID	145
V.2.1 Variation de la sensibilité en fonction de la taille des échantillons	145
V.2.2 Exemple 1 : Cristal de Mn_{12}	146
V.2.3 Exemple 2 : Couches magnétiques minces	150
V.2.4 Exemple 3 : Multicouches magnétiques	153
V.3 Etude des interactions entre des particules magnétiques	157
V.3.1 Particules dans un ferrofluide Fe_2O_3	157
V.3.2 Particules de ferrite de baryum	158
V.3.3 Particules de nickel enrobées de palladium	161
V.4 Conclusion	163
Conclusion générale	165

Annexes	167
Annexe 1 : Modèle de Stoner-Wohlfarth	167
Annexe 2 : Curling	168
Annexe 3 : Développement limité de l'énergie appliqué au modèle de Stoner-Wohlfarth	169
Annexe 4 : Modèle de Kurkijärvi	170
Annexe 5 : Particules élaborées par lithographie électronique	173
5.1 Particules de Co polycristallisé	173
5.2 Particules de Co nanocristallisé poreux	180
5.3 Particules de Ni polycristallisé	184
5.4 Particules de Fe nanocristallisé	187
5.5 Particules de Fe épitaxié	189
5.6 Particules de CoZrMoNi amorphe	190
5.7 Particules de CoZrTb	191
5.8 Particules de TbFe ₃	192
Annexe 6 : Particules monocristallines élaborées par plasma par arc électrique	193
Annexe 7 : Influence de l'oxydation sur les mesures de la dynamique de retournement de l'aimantation	200
Références	203
Premières publications	209
Conférences et communications	211

Références

- [Aharoni 1958] A. Aharoni and S. Shtrikman, *Phys. Rev.*, 109, 1522 (1958).
- [Aharoni 1959] A. Aharoni, *J. Appl. Phys.*, 30 Suppl., 70S (1959).
- [Aharoni 1966] A. Aharoni, *Phys.Stat. Sol.*, 16, 3 (1966).
- [Aharoni 1986] A. Aharoni, *IEEE Trans. Magn.*, MAG-22, 478 (1986).
- [Aharoni 1992] A. Aharoni and W. Baltensperger, *Phys. Rev. B*, 45, 9842 (1992).
- [Aharoni 1993] A. Aharoni and W. Baltensperger, *J. Appl. Phys.*, 74, 1213 (1993).
- [Awschalom 1992] D. D. Awschalom, J. F. Smith, G. Grinstein, D. P. DiVincenzo, and D. Loss, *Phys. Rev. Lett.*, 68, 3092 (1992).
- [Baltensperger 1991] W. Baltensperger, J. S. Broz, J. S. Helman, *Mod. Phys. Lett. B*, 5, 1061 (1991).
- [Brown 1957] W. F. Brown Jr., *Phys. Rev.*, 105, 1479 (1957).
- [Brown 1962] W. F. Brown Jr., *J. Appl. Phys.*, 33, 3022 (1962).
- [Brown 1963] W. F. Brown Jr., "Micromagnetics", Wiley, New York, 38 (1963).
- [Brown 1963] W. F. Brown Jr., *Phys. Rev.*, 130, 1677 (1963).
- [Brown 1994] H-B. Brown, H.N. Bertram, *J. Appl. Phys.*, 75, 4609 (1994).
- [Broz 1990] J. S. Broz, H. B. Braun, O. Brodbeck, W. Baltensperger, J. S. Helman, *Phys. Rev. Lett.*, 65, 787 (1990).
- [Bryant 1989] P. Bryant, H. Suhl, *Appl. Phys. Lett.*, 54, 78 (1989).
- [Castaing 1991] B. Castaing and J. Souletie, *J. Phys. I*, 1 403 (1991).
- [Cernicchiaro 1996] G. Cernicchiaro, thèse, CRTBT - CNRS, Grenoble (à paraître 1996).
- [Chapelier 1993] C. Chapelier, A. Benoit and D. Mailly, *Phys. Rev. Lett.*, 70, 2020 (1993).
- [Chudnovsky 1988] E. M. Chudnovsky and L. Gunther, *Phys. Rev. Lett.*, 60, 661 (1988).
- [Clarke 1988] J. Clarke, A. N. Cleland, M. H. Devoret, D. Esteve, J. M. Martinis, *Science* 239, 992 (1988).
- [Chang 1993] T. Chang, J.-G. Zhu and J. H. Judy, *J. Appl. Phys.*, 73, 6716 (1993).
- [Coquaz 1992] C. Coquaz, thèse, LETI, Grenoble (1992).
- [Döring 1968] W. Döring, *J. Appl. Phys.*, 39, 1006 (1968).
- [Durand] E. Durand, "Magnétostatique", Masson Editeurs, Toulouse.
- [El Khatib 1991] El Khatib, thèse, CRTBT - CNRS, Grenoble (1991).
- [Ferré 1995] R. Ferré, thèse, L. Néel - CNRS, Grenoble (1995).
- [Fleisher 1975] R.L. Fleisher, P.B. Price and R.M. Walker, dans "Nuclear tracks in solids", Univ. of California Press, Berkeley (1975).

- [Fredkin 1991] D.R. Fredkin, T. R. Koehler, *J. Appl. Phys.*, 69, 5276 (1991).
- [Frei 1957] E. H. Frei, S. Shtrikman and D. Treves, *Phys. Rev.*, 106, 446 (1957).
- [Fulton 1974] T.A. Fulton and L. N. Dunkelberger, *Phys. Rev. B*, 9, 4760 (1974).
- [Gadbois 1995] J. Gadbois and J. G. Zhu, *IEEE Trans. Magn.*, 31, 3802 (1995).
- [Garg 1995] A. Garg, *Phys. Rev. B*, 51, 15592 (1995).
- [Guerret-Piécourt 1994] C. Guerret-Piécourt, Y. Le Bouar, A. Loiseau and H. Pascard, *Nature*, 372, 761 (1994).
- [Gonzalez 1995] J. M. Gonzalez, R. Ramirez, R. Smirnov-Rueda, J. Gonzalez, *Phys. Rev. B*, 52, 16034 (1995).
- [Gunther 1994] L. Gunther and B. Barbara, *Phys. Rev. B*, 49, 3926 (1994).
- [Hansma 1971] P.K. Hansma, G.I. Rochelin and J.W. Sweet, *Phys. Rev. B*, 4, 3003 (1971).
- [Hänggi 1990] P. Hänggi, P. Talkner, M. Borkovec, *Rev. Mod. Phys.*, 62, 251 (1990).
- [Hefferman 1991] S.J. Hefferman, J. N. Chapman and S. McVitie, *J. Mag. Mag. Mat.*, 95, 76 (1991).
- [Heiden 1982] C. Heiden and H. Rogalla, *J. Mag. Mag. Mat.*, 26, 275 (1982).
- [Hubert 1976] A. Hubert, *J. Mag. Mag. Mat.*, 2, 25 (1976).
- [Jackel 1974] L. D. Jackel, W. W. Webb, J. E. Lukens and S. S. Pei, *Phys. Rev. B*, 9, 115 (1974).
- [Jackson] J. D. Jackson, "Classical Electrodynamics", John Wiley & Sons, Inc., New York.
- [Jaklevic 1965] R. C. Jaklevic, J. Lambe, J. E. Mercereau and A. H. Silver, *Phys. Rev.*, 140, A1628 (1965).
- [Josephson 1962] B. D. Josephson, *Phys. Lett.*, 1, 251 (1962).
- [Klik 1990] I. Klik and L. Gunther, *J. Stat. Phys.*, 60, 473 (1990).
- [Knowles 1978-84] J. E. Knowles, *IEEE Trans. Magn.*, MAG-14, 858 (1978) ; J. E. Knowles, *IEEE Trans. Magn.*, MAG-16, 62 (1980) ; J. E. Knowles, *IEEE Trans. Magn.*, MAG-17, 3008 (1981) ; J. E. Knowles, *IEEE Trans. Magn.*, MAG-19, 90 (1983) ; J. E. Knowles, *IEEE Trans. Magn.*, MAG-20, 84 (1984).
- [Kohlrausch 1847] R. Kohlrausch, *Ann. Phys.(Leipzig)*, 12 393 (1847).
- [Kurkijärvi 1972] J. Kurkijärvi, *Phys. Rev. B*, 6, 832 (1972).
- [Labonte 1996] A. E. Labonte, *J. Appl. Phys.*, 2450 (1969).
- [Labrune 1990] M. Labrune, *J. Miltat*, *IEEE Trans. Magn.*, 26, 1521 (1990).
- [Landau 1935] L. Landau et E. Lifshitz, *Physik. Z. Sowjetunion* 8, 153 (1935).
- [Ledermann 1994] M. Ledermann, S. Schultz and M. Ozaki, *Phys. Rev. Lett.*, 73, 1986 (1994).
- [Leggett 1987] A. J. Leggett, S. Chakravarty, A. T. Dorsey, M. P. A. Fisher, A. Garg, W. Zwerger, *Rev. Mod. Phys.*, 59, 1 (1987).
- [Lounasmaa 1974] "Experimental principles and methods below 1 K", O.V.Lounasmaa, 1974 AP.

- [Lis 1980] T. Lis, *Acta Cryst. B* 36, 2042 (1980).
- [Meier 1994] J. Meier, A. Blondel, B. Doudin and J. - Ph. Ansermet, *Helv. Phys. Acta*, 67, 761 (1994).
- [Meiklejohn 1964] W. H. Meiklejohn, voir F. E. Luborsky and C. R. Morelock, *J. Appl. Phys.*, 35, 2055 (1964) ; F. R. Muirhead, *Phil. Mag.*, 8, 1361 (1963).
- [Mélinon 1995] P. Mélinon, V. Paillard, V. Dupuis, A. Perez, P. Jensen, A. Hoareau, J. P. Perez, J. Tuaille, M. Broyer, J. L. Vialle, M. Pellarin, B. Baguenard, J. Lerme, *I. J. of Modern Phys. B*, 9, 339 (1995).
- [Middlehoek 1963] S. Middlehoek, *J. Appl. Phys.*, 34, 1054 (1963).
- [Miguel 1995] K. Miguel, E. M. Chudnovsky, à paraître.
- [Morrish 1956] A. H. Morrish and S. P. Yu, *Phys. Rev.*, 102, 670 (1956).
- [Morrish] A. H. Morrish, "The Physical Principles of Magnetism".
- [Nakatani 1991] Y. Nakatani, N. Hayashi and Y. Uesaka, *Jap. J. Appl. Phys.*, 30, 2503 (1991).
- [Néel 1947] L. Néel, *C. R. Acad. Science, Paris*, 224, 1550 (1947).
- [Néel 1949] L. Néel, *C. R. Acad. Science, Paris*, 228, 664 (1949).
- [Néel 1949] L. Néel, *Ann. Geophys. (CNRS)*, 5, 99 (1949).
- [Novak 1994] M. A. Novak, R. Sessoli, dans "Quantum tunneling of magnetization - QTM '94", NATO ASI Series, Kluwer academic publishers, London.
- [Paillard 1993] V. Paillard, P. Mélinon, V. Dupuis, J. P. Perez and A. Perez, *Phys. Rev. Lett.*, 25, 4170 (1993).
- [Paillard 1993] V. Paillard, thèse, URA CNRS 172 (1993).
- [Palmer 1984] R. G. Palmer, D. L. Stein, E. Abrahams and P. W. Anderson, *Phys. Rev. Lett.*, 53, 958 (1984).
- [Paulsen 1991] C. Paulsen, C.P. Sampaio, B. Barbara, D. Fruchard, A. Marchand, J. L. Tholence and M. Uehara, *Phys. Lett.*, 161, 319 (1991).
- [Paulsen 1994] C. Paulsen, J.-G. Park, dans "Quantum tunneling of magnetization - QTM '94", NATO ASI Series, Kluwer academic publishers, London.
- [Per Bak 1987] Per Bak, C. Tang and K. Wiesenfeld, *Phys. Rev. Lett.*, 59, 381 (1987).
- [Perez 1994] J. P. Perez, thèse, URA CNRS 172, (1994)
- [Perez 1995] J. P. Perez, V. Dupuis, J. Tuaille, A. Perez, V. Paillard, P. Melinon, M. Treilleux, L. Thomas, B. Barbara, B. Bouchet-Fabre, *J. Mag. Mat.*, 145, 74 (1995).
- [Poretics] Poretics Corp., 111 Lindbergh Av., Livermore, CA 94550-9520 ; Costar Corp. (Nuclepore), One Alewife Center, Cambridge MA 02140 ; Whatmann SA, 11b Av. Einstein, B-1348 Louvain-la-Neuve, Belgium.

- [Richter 1989] H. J. Richter, *J. Appl. Phys.*, 65, 9 (1989).
- [Richter 1989] H. J. Richter and K. A. Hempel, *IEEE Trans. Mag.*, 25, 3446 (1989).
- [Romijin 1982] J. Romijin, T. M. Klapwijk, M. J. Renne and J. E. Mooij, *Phys. Rev. B*, 26, 3648 (1982).
- [Rührig 1990] M. Rührig, W. Bartsch, M. Vieth, A. Hubert, *IEEE Trans. Mag.*, 26, 2807 (1990).
- [Salling 1991] C. Salling, S. Schultz, I. McFadyen, M. Ozaki, *IEEE Trans. Mag.*, 27, 5185 (1991).
- [Salling 1994] C. Salling, R. O'Barr, S. Schultz, I. McFadyen, M. Ozaki, *J. Appl. Phys.*, 75, 7989 (1994).
- [Sampaio 1994] L. Sampaio, thèse, L. Néel - CNRS, Grenoble (1994).
- [Schabes 1988] M. E. Schabes and H. N. Bertram, *J. Appl. Phys.* 64, 1347 (1988).
- [Schabes 1991] M. E. Schabes, *J. Mag. Mag. Mat.*, 95, 249 (1991).
- [Scholten 1980] P. C. Scholten, *IEEE Trans. Magn.*, MAG-16, 77 (1980).
- [Sessoli 1993], R. Sessoli, D. Gatteschi, A. Caneschi, M. A. Novak, *Nature*, 365, 141 (1993).
- [Shtrikman 1959] S. Shtrikman and D. Treves, *J. Phys. Radium*, 20, 286 (1959).
- [Stamp 1992] P. C. E. Stamp, E. M. Chudnovsky and B. Barbara, *Int. J. Mod. Phys. B6*, 1355-1478 (1992).
- [St.-W. 1948] E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth, *Philos. Trans. London Ser. A*, 240, 599 (1948) ; reprinted in *IEEE Trans. Magn.* MAG-27, 3475 (1991).
- [Street 1949] R. Street and J. C. Wooley, *Proc. Phys. Soc. A62*, 562 (1949).
- [Uesaka 1991] Y. Uesaka, Y. Nakatani, N. Hayashi, *J. Appl. Phys.*, 69, 4847 (1991).
- [Yan 1989] Y. D. Yan and E. D. Torre, *J. Appl. Phys.*, 66, 320 (1989).
- [Tonomura 1986] A. Tonomura, T. Matsuda, J. Endo, T. Arii, K. Mihama, *Phys. Rev. B*, 34, 3397 (1986).
- [Van den Berg 1984] H. A. M. Van den Berg, Thèse, Delft University Press (1984).
- [Van den Berg 1984] H. A. M. Van den Berg, *J. Mag. Mag. Mat.*, 44, 207 (1984).
- [Van den Berg 1986] H. A. M. Van den Berg, *J. Appl. Phys.*, 60, 1104 (1986).
- [Van den Berg 1987] H. A. M. van den Berg, *J. Appl. Phys.*, 61, 4194 (1987).
- [Van Duzer] T. Van Duzer, and C.W. Turner, "Principles of Superconductive Devices and Circuits".
- [Victora 1989] R. H. Victora, *Phys. Rev. Lett.*, 63, 457 (1989) ; R. H. Victora dans "Springer Proceedings in Physics", 50, 11 (1990).
- [Vincent 1994] E. Vincent, J. Hammann, P. Prené, E. Tronc, *J. Phys. I France*, 4, 273 (1994).
- [Voss 1981] R. F. Voss and R. A. Webb, *Phys. Rev. Lett.*, 47, 265, (1981).
- [Weissbord 1973] H. Weissbord, R. P. Hubener and W. Clauss, *J. Low Temp. Phys.*, 69 (1973).

- [Wegrowe 1996] J. - E. Wegrowe, W. Wernsdorfer, A. Sulpice, L. Thomas, B. Barbara, K. Hasselbach, A. Benoit, D. Maily, Phys. Rev. B, 53, 6536 (1996).
- [Wernsdorfer 1995/1] W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, D. Maily, B. Barbara, A. Benoit, L. Thomas, G. Suran, J. Mag. Mat., 145, 33 (1995) ; W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, D. Maily, B. Barbara, A. Benoit, L. Thomas and G. Suran, J. Magn. Mat., vol. 140-144 (1995) 389.
- [Wernsdorfer 1995/2] W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, A. Benoit, G. Cernicchiaro, D. Maily, B. Barbara, L. Thomas, J. Magn. Mat., 151, 38 (1995).
- [Wernsdorfer 1995/3] W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, A. Sulpice, A. Benoit, J.-E. Wegrowe, L. Thomas, B. Barbara, D. Maily, Phys. Rev. B, 53, 3341 (1996).
- [Wernsdorfer 1995/4] W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, A. Benoit, B. Barbara, D. Maily, J. Tuillon, J.P. Perez, V. Dupuis, J.P. Dupin, G. Guiraud, A. Perez, J. Applied Phys., 78, 7192 (1995).
- [Wernsdorfer 1995/5] W. Wernsdorfer, B. Doudin, D. Maily, K. Hasselbach, A. Benoit, J. Meier, J.-Ph. Ansermet, B. Barbara, soumis à Phys. Rev. Lett.
- [Williams 1989] W. Williams, D. J. Dunlop, Nature, 337, 634 (1989) ; W. Williams, D. J. Dunlop, J. Geophys. Res., 100, 3859 (1995).

Introduction générale

Contexte de la thèse

Depuis de nombreuses années, les physiciens pensent que les petites structures magnétiques constituent des systèmes idéaux pour étudier les mécanismes élémentaires de retournement de l'aimantation. En effet, à une échelle suffisamment petite, les interactions ferromagnétiques entre les spins entraînent leur alignement en un seul domaine sans qu'apparaissent les complications dues à l'existence de parois entre les différents domaines de systèmes macroscopiques. Pour de tels systèmes, les modèles théoriques prédisent des comportements associés à des propriétés classiques. Cependant, de façon inattendue, la miniaturisation des matériaux magnétiques a conduit à mettre en évidence des propriétés classiques et quantiques tout à fait nouvelles. Même un système aussi simple qu'une particule mono-domaine montre un comportement qui dépasse la compréhension actuelle du magnétisme fondamental.

L'étude de petites structures magnétiques est intéressante et pose différents défis au chercheur. Tout d'abord, il s'agit de fabriquer des particules magnétiques en contrôlant leur taille. A côté des techniques classiques comme la lithographie ou la trempe ultra rapide, il existe maintenant les techniques de dépôt qui utilisent la microscopie à effet tunnel, de biominéralisation et les synthèses chimiques.

Le second défi consiste à mesurer les propriétés magnétiques de ces petites particules. Afin d'éliminer les problèmes de distributions (tailles, formes, ...) et d'interactions entre les particules (par exemple dipolaires), il faut pouvoir mesurer l'aimantation d'une seule particule, ce qui est hors de portée des magnétomètres classiques. Grâce aux progrès récents effectués dans les domaines de la microscopie de Lorentz, de la microscopie à force magnétique, de la magnétométrie à effet Hall ou à SQUID, de telles mesures sont maintenant possibles.

Enfin, le troisième défi consiste à comprendre les phénomènes observés. Les études récentes de l'aimantation de particules mono-domaines ont accéléré le développement de nouvelles théories expliquant la dynamique de l'aimantation et tenant compte des effets du désordre et des effets quantiques.

L'étude des petites structures magnétiques est aussi très importante pour la technologie du magnétisme. En effet, on peut imaginer stocker des informations selon la direction de l'aimantation des particules. Cependant, un tel stockage n'est pour l'instant possible qu'à l'échelle micrométrique en raison des fortes interactions entre domaines magnétiques, causant ce qu'on appelle le bruit du milieu et rendant les transitions magnétiques souvent imprévisibles. Ces problèmes pourront-ils être résolus, permettant ainsi d'atteindre des densités de stockage de 20 mégabits par cm^2 ? La réponse est difficile à donner, d'autant plus que les recherches de plus en plus précises sur des particules isolées indiquent des comportements parfois très surprenants, qui seront autant de difficultés technologiques à résoudre mais qui ouvrent des perspectives intéressantes pour l'étude du magnétisme à un niveau intermédiaire entre les échelles atomiques et macroscopiques.

Plan de la thèse

Au cours de ce travail de thèse, nous avons effectué les premières mesures de dynamique de l'aimantation d'une seule particule ferromagnétique à basse température (0.1 - 6 K). Ces mesures ont été faites à l'aide d'un SQUID déposé sur ou sous la particule.

Dans le premier chapitre nous rappelons quelques éléments théoriques nécessaires aux explications ultérieures de nos résultats expérimentaux. Il s'agit tout d'abord des modèles de rotation uniforme de l'aimantation (modèle de Stoner-Wohlfarth) et de retournement non uniforme ("buckling" et "curling") ainsi que des modèles de structure en domaines magnétiques à deux dimensions de Landau-Lifshitz et de Van den Berg. En ce qui concerne la dynamique de retournement de l'aimantation, nous présentons ensuite une modélisation simple de la variation de la barrière d'énergie en fonction du champ magnétique appliqué. Enfin nous rappelons le modèle simple de Kurkijärvi composé de deux états d'équilibre séparés par une barrière d'anisotropie ainsi que les résultats théoriques concernant la recherche d'un effet quantique macroscopique.

Dans le deuxième chapitre, nous présentons tout d'abord les SQUID continus hystérétiques en aluminium et niobium avec des jonctions à microponts, que nous avons utilisés pour nos mesures. Nous détaillons ensuite nos différentes méthodes expérimentales de mesure. Nous montrons ainsi les différentes manières de mesurer le retournement de l'aimantation, comment nous avons résolu les problèmes de réchauffement des échantillons et de sensibilité des mesures. Enfin nous expliquons rapidement la méthode de lithographie électronique et la manière dont nous avons obtenu des très basses températures.

Dans le troisième chapitre, nous présentons de manière systématique les résultats obtenus avec les différents échantillons que nous avons étudiés. Nous avons tout particulièrement approfondi notre étude avec les particules de Co nanocristallisé. Ces particules, seules ou en réseau, ont montré différents comportements : rotation uniforme ou retournement non uniforme de l'aimantation, particules possédant une paroi. Ce qui concerne les autres particules (Co, Ni, Fe, etc.), amorphes ou cristallisées, les résultats principaux ne sont pas présentés dans cette partie mais dans les annexes 5 et 6. Nous avons aussi étudié des fils magnétiques et des agrégats cristallisés de Ni, Co et Fe.

Le quatrième chapitre est consacré à la discussion et à la comparaison de nos différents résultats expérimentaux. Nous expliquons tout d'abord le retournement de l'aimantation à partir des cycles d'hystérésis. Nous nous intéressons ensuite à la dynamique de retournement, à la variation du champ de retournement en fonction de la température et de la vitesse de balayage du champ, aux distributions des champs de retournement et à la probabilité de retournement de l'aimantation. Au cours de cette discussion, nous montrons que nous avons pu ajuster nos différents résultats à certains des modèles cités dans le premier chapitre. Ce chapitre se termine sur la comparaison des phénomènes observés avec les images d'une énergie potentielle multi-chemins ou d'une particule idéale entourée de petites particules.

Dans le dernier chapitre, nous présentons quelques mesures montrant que la technique des "mini-SQUID" est non seulement adaptée à l'étude des systèmes submicroniques mais aussi à d'autres systèmes plus grands. Plusieurs SQUID utilisés en tant que sondes permettent de mesurer plusieurs signaux macroscopiques dont la somme correspond aux propriétés macroscopiques de l'échantillon. Une autre extension de la technique est l'étude d'interactions entre des particules magnétiques.

Premières mesures de particules magnétiques isolées

Les premières mesures de l'aimantation d'une particule individuelle micronique que nous avons trouvées dans la littérature ont été effectuées par A. H. Morrish et S.P. Yu en 1956 [Morrish 1956]. Ces auteurs ont utilisé une balance à torsion de fibre de quartz pour étudier des particules de $\gamma - \text{Fe}_2\text{O}_3$ possédant une taille micronique. Le but des auteurs était d'éviter que les différentes orientations d'un ensemble de particules ne se moyennent. Ils voulaient aussi éviter le problème des interactions entre les particules. Pour la mesure expérimentale, ils ont placé la balance sur laquelle était déposée la particule dans un champ inhomogène. Suivant l'état d'aimantation de la particule, la balance était plus ou moins défléchie. La déflexion était amplifiée à l'aide d'une lampe et d'un miroir (comme les anciens galvanomètres). Le résultat principal était un cycle d'hystérésis montrant deux sauts d'aimantation correspondant, d'après les auteurs, probablement à deux particules mono-domaine. Le problème principal de ces mesures était l'équilibrage de la balance qui a été fait au hasard pour l'échantillon en question.

D'autres mesures de particules magnétiques isolées ont été présentées par Meiklejohn [Meiklejohn 1964]. Cependant, le problème principal reste le faible signal magnétique d'une particule individuelle. Au cours des années suivantes, de plus en plus de personnes ont apporté leur contribution à ce problème de la mesure de l'aimantation de particules magnétiques isolées. Je donne ici quelques références particulièrement intéressantes. Cette liste n'est bien sûr pas exhaustive.

"Measurements on single magnetic particles" [Knowles 1978-84]

Dans une série d'articles Knowles s'intéresse au retournement de l'aimantation de particules de $\gamma - \text{Fe}_2\text{O}_3$ en suspension dans un liquide, disposées sur une plaque de verre et soumises à un champ magnétique statique faible. Une impulsion magnétique est envoyée de manière antiparallèle. Si l'aimantation d'une particule est retournée sous cette impulsion on observe alors une rotation de 180° de cette particule. L'observation se fait simplement par un microscope optique.

"Barkhausen jump field distribution of iron whiskers" [Heiden 1982]

Il s'agit de mesures de la distribution du champ de retournement de whiskers individuels de fer ayant une taille de $12 \mu\text{m} \times 13 \mu\text{m} \times 10.6 \text{mm}$, entre 4 et 300 K, et en utilisant un magnétomètre à SQUID. Les auteurs ont trouvé que la probabilité de retournement de l'aimantation dépend de la température. Par contre, la variance de la distribution du champ de retournement ne dépendait pas, quant à elle, significativement de la température. Les auteurs proposent l'explication selon laquelle le retournement est activé thermiquement et que la variance est due aux fluctuations magnétiques d'origine thermique, ceci étant indiqué par de petits sauts d'aimantation avant le grand saut (sauts précurseurs).

"Holographic interference electron microscopy for determining specimen magnetic structure and thickness distribution" [Tonomura 1986]

Dans cet article, grâce à la technique d'interférences holographiques, les auteurs mesurent la distribution de la phase magnétique de particules de Co (dimensions de l'ordre de $0.1 \mu\text{m}$) et en déduisent l'aimantation des particules.

"Magnetic viscosity measurements on an isolated single domain particle" [Richter 1989]

Ces auteurs ont mesuré, à 300 K, la probabilité de retournement d'une particule de ferrite de baryum de taille 2.5 μm . Pour cette étude, ils ont utilisé un magnétomètre ("vibrating reed magnetometer") possédant une sensibilité calculée de $10^7 \mu_B / \sqrt{\text{Hz}}$. La distribution du champ de retournement montre trois maxima indiquant au moins trois possibilités de retournement. En utilisant la théorie d'un retournement activé thermiquement, il est montré que le volume d'activation est beaucoup plus petit que le volume de la particule.

"In-situ magnetising experiments on small regularly shaped permalloy particles" [Hefferman 1991]

Dans cet article est présentée la visualisation de structures en domaines magnétiques de particules rectangulaires de permalloy pour différents champs magnétiques appliqués à l'aide de la microscopie électronique de Lorentz à mode de Foucault. Les épaisseurs des particules sont 17, 60 et 90 nm et les dimensions dans le plan sont comprises entre 0.25 et 4 μm .

"Measuring the Coercivity of Individual Sub-Micron Ferromagnetic Particles by Lorentz Microscopy"

[Salling 1991/94]

Dans cette publication, les auteurs montrent que la mesure du retournement de l'aimantation d'une particule possédant un moment magnétique de l'ordre de $10^7 \mu_B$ est faisable en utilisant la microscopie de Lorentz.

"Method for investigating the reversal properties of isolated barium ferrite fine particles utilizing magnetic force microscopy (MFM)" [Chang 1993]

Les auteurs présentent des mesures de champs de retournement de particules de ferrite de baryum de tailles comprises entre 30 et 80 nm. La technique de mesure est la microscopie à force magnétique permettant de détecter le signe de l'aimantation de ces particules. Les auteurs ont montré la variation de la valeur du champ de retournement en fonction de la taille de la particule.

"Measurement of the Dynamics of the Magnetisation Reversal in Individual Single-Domain Ferromagnetic Particles" [Ledermann 1994]

Ici est présentée la mesure de la probabilité de retournement d'une particule individuelle elliptique mono-domaine de $\gamma - \text{Fe}_2\text{O}_3$ de taille de 0.3 μm x 65 nm x 65 nm à 300 K. Pour cette étude, les auteurs ont utilisé un microscope à force magnétique (MFM) afin de déterminer la direction de l'aimantation d'une particule de typiquement $10^7 \mu_B$. Le résultat principal est que la probabilité de retournement ne peut pas être associée à un seul temps de relaxation.

Notre contribution à cette liste est donnée par :

"DC-SQUID magnetization measurements of single magnetic particles" [Wernsdorfer 1995/1]

Nous présentons dans cet article les premières mesures de l'aimantation sur des particules sub-microniques isolées et à très basse température. Le système de mesure est un SQUID continu à micropont déposé sur la particule. La sensibilité est de $10^4 \mu_B$. Le SQUID et les particules ont été obtenus par lithographie électronique. Nous étudions la dynamique et la dépendance en température de l'aimantation en vue, premièrement, de comprendre le micromagnétisme dans des échantillons réels et, deuxièmement, de mettre en évidence un éventuel effet tunnel quantique macroscopique.

Chapitre I : Aspects théoriques

Dans ce premier chapitre, nous rappelons les éléments théoriques nécessaires aux explications ultérieures de nos résultats expérimentaux. Il s'agit tout d'abord de reprendre quelques concepts classiques de la théorie du magnétisme et notamment les modèles de rotation uniforme de l'aimantation (modèle de Stoner-Wohlfarth) et de retournement non uniforme ("buckling" et "curling").

Les particules que nous avons étudiées étant relativement minces, nous allons voir que le problème de la structure en domaines magnétiques se ramène à un problème à deux dimensions que l'on peut décrire par les modèles de Landau-Lifshitz et de Van den Berg.

En ce qui concerne la dynamique de retournement de l'aimantation, celle-ci dépend fortement de la variation de la barrière d'énergie en fonction du champ magnétique appliqué, ce que nous avons modélisé approximativement par un calcul analytique.

Ensuite, nous comparons nos mesures avec le modèle simple de Kurkijärvi composé de deux états d'équilibres séparés par une barrière d'anisotropie.

Enfin, un grand intérêt de nos études sur de petites particules est d'examiner l'existence possible, dans de tels systèmes, d'un effet quantique macroscopique. Nous rappelons quelques résultats théoriques liés à la recherche d'un tel effet.

I.1 Micromagnétisme classique

Dans ce paragraphe, nous rappelons quelques concepts classiques de la théorie du micromagnétisme. Les systèmes possèdent un haut degré de symétrie (cylindre infini, sphère, ellipsoïde) et l'état de référence est une aimantation uniforme du système. Dans ces conditions, les calculs du retournement de l'aimantation sont essentiellement analytiques et l'ajustement des résultats à nos mesures est simple. En ce qui concerne la théorie du micromagnétisme plus récente, nous renvoyons le lecteur à la littérature [Brown 1962/63, Schabes 1988, Williams 1989, Ferré 1995]. L'ajustement de ces résultats à nos mesures est un projet pour la suite de cette thèse.

I.1.1 Rotation uniforme

Le modèle de rotation uniforme de l'aimantation, développé de Stoner-Wohlfarth et Néel [St.-W. 1948, Néel 1947], est le modèle le plus simple décrivant le retournement de l'aimantation d'une particule. En supposant que le matériau est idéal, tous les moments magnétiques restent toujours parallèles entre eux. La rotation des moments magnétiques augmente l'énergie d'anisotropie tandis que l'énergie d'échange reste constante.

a) Energie totale du système - cycle d'hystérésis

L'énergie du champ magnétique démagnétisant (à l'origine de l'anisotropie de forme) est :

$$E_D = \frac{1}{2} \mu_0 M_S^2 (N_a \cos^2 \theta + N_b \sin^2 \theta)$$

M_S est l'aimantation à saturation, N_a et N_b sont les coefficients de champ démagnétisant respectivement parallèle et perpendiculaire à l'axe de facile aimantation. Le facteur de désaimantation pour un ellipsoïde de faible épaisseur (les axes principaux vérifiant l'inégalité $a > b \gg c$) est donné par la formule suivante [Morrish] :

$$N_a = \frac{\pi c}{4 a} \left[1 - \frac{1}{4} \frac{a-b}{a} - \frac{3}{16} \left(\frac{a-b}{a} \right)^2 \right] \quad (1)$$

$$N_b = \frac{\pi c}{4 a} \left[1 + \frac{5}{4} \frac{a-b}{a} + \frac{21}{16} \left(\frac{a-b}{a} \right)^2 \right]$$

$$N_a + N_b + N_c = 1$$

L'anisotropie cristalline uniaxe est supposée parallèle à l'axe de facile aimantation, i.e. l'axe a , et est donnée par un développement limité au second ordre :

$$E_A = K_1 \sin^2 \theta$$

Ici, K_1 est la constante d'anisotropie magnétocristalline et θ est l'angle entre l'aimantation et l'axe de facile aimantation (voir figure I.1.1).

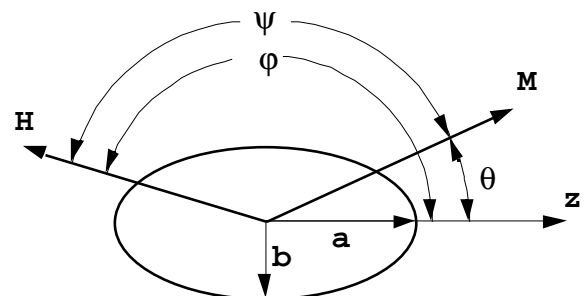


Fig. I.1.1 : Définition des angles Ψ , ϕ et θ pour une ellipse de faible épaisseur.

L'énergie de couplage avec le champ appliqué H (terme de Zeeman) est :

$$E_H = -\mu_0 M_S H \cos \psi$$

ψ est l'angle entre l'aimantation et la direction du champ. L'énergie totale est donc (à une constante additive près) :

$$E = K \sin^2 \theta - \mu_0 M_S H \cos(\theta - \varphi) \quad \text{avec} \quad K = K_1 + \frac{1}{2} \mu_0 M_S^2 (N_b - N_a) \quad (2)$$

Par la suite, nous utiliserons des variables réduites :

$$E \rightarrow \frac{E}{K} \quad \text{et} \quad h \rightarrow \frac{\mu_0 M_S H}{2K} \quad (3)$$

L'énergie du système s'écrit maintenant :

$$E = \sin^2 \theta - 2h \cos(\theta - \varphi) \quad (2')$$

Avant le retournement de l'aimantation, le système est dans un minimum local, i.e. la dérivée $\partial_\theta E = 0$ s'annule.

$$\partial_\theta E = 2 \sin \theta \cos \theta + 2h \sin(\theta - \varphi) = 0$$

$$\Rightarrow -2h \sin(\theta - \varphi) = 2 \sin \theta \cos \theta = \sin 2\theta \quad (4)$$

Plus le champ h est grand, plus la différence énergétique entre le minimum local et le maximum local est petite. Le retournement se produit au moment où cette différence s'annule, i.e. lorsque le minimum et le maximum se réunissent en un point (fig. I.1.2). Alors, la dérivée seconde s'annule aussi : $\partial_\theta^2 E = 0$. Cette équation et la précédente définissent l'angle de retournement θ_0 et le champ h_0 de retournement :

$$\partial_\theta^2 E = 2 \cos 2\theta_0 + 2h_0 \cos(\theta_0 - \varphi) = 0 \quad \Rightarrow \quad -h_0 \cos(\theta_0 - \varphi) = \cos 2\theta_0 \quad (5)$$

La solution de ces équations calculée numériquement est représentée dans les figures I.1.3 pour des orientations différentes de l'ellipsoïde par rapport au champ. Les équations 4 et 5 donnent aussi une relation importante entre l'angle du champ appliqué et l'angle de l'aimantation juste avant le retournement (voir annexe 1) :

$$\tan \theta_0 = -\tan^{1/3} \varphi \quad (6)$$

On trouve également la variation du champ de retournement en fonction de l'angle du champ appliqué :

$$h_0 = \frac{1}{\left(\sin^{2/3} \varphi + \cos^{2/3} \varphi \right)^{3/2}} \quad (7)$$

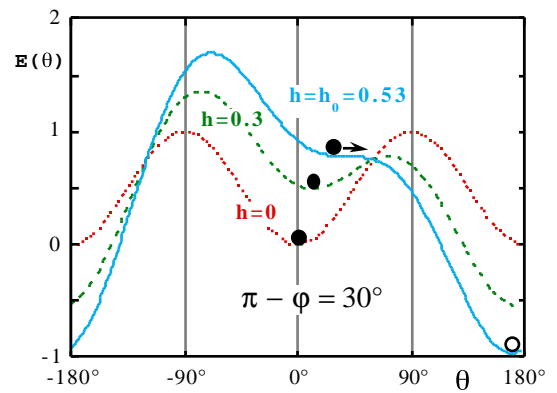


Fig. I.1.2 : Energie totale du système pour différents champs appliqués avec un angle de $\pi - \varphi = 30^\circ$. La position du minimum local d'énergie est indiquée par les ronds noirs.

Le champ coercitif n'est égal au champ de retournement que pour $0 < \pi - \varphi < \pi/4$. Pour $\pi/4 < \pi - \varphi < \pi/2$ il est donné par le champ pour lequel l'aimantation s'annule. On trouve (voir annexe 1) :

$$h_c = -\frac{1}{2} \sin 2\varphi = \frac{1}{2} \sin 2(\pi - \varphi) \quad (8)$$

Ces trois relations (6-8) sont représentées dans les figures I.1.4. Il est important de noter que la variation de θ_0 est très grande pour $\pi - \varphi$ près de zéro et 90° . On obtient des figures analogues pour les angles compris entre 90° et 360° .

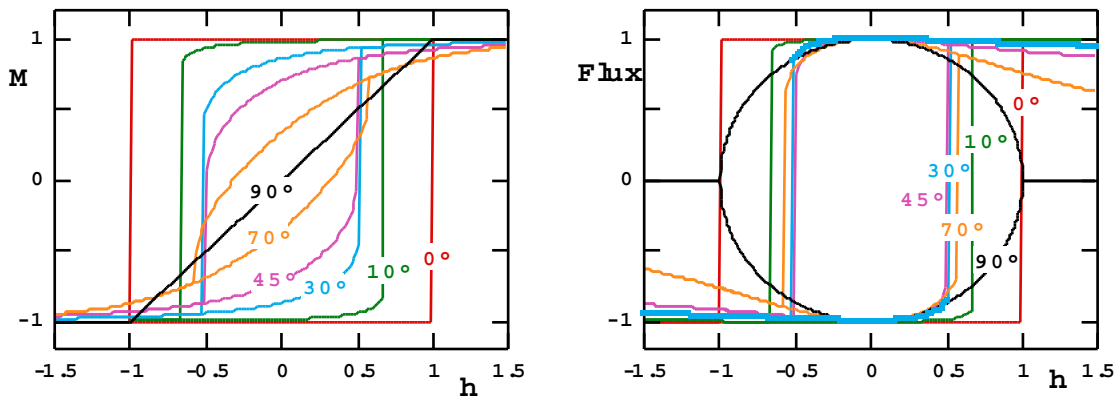


Fig. I.1.3 : Cycles d'hystérésis de la rotation uniforme de l'aimantation. Le premier graphe montre la projection de M sur la direction du champ appliqué $M = M_S \cos(\varphi - \theta)$. Le deuxième graphe montre la projection sur l'axe de facile aimantation $M = M_S \cos(\theta)$ et correspond à la composante détectée par le SQUID.

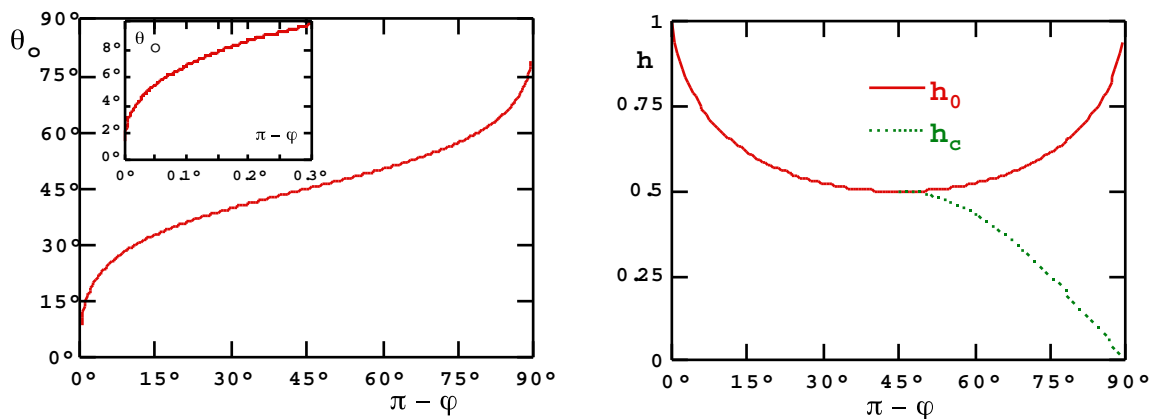


Fig. I.1.4 : Ces graphes montrent la variation de l'angle de retournement pour le champ de retournement et le champ coercitif en fonction de l'angle du champ appliqué.

b) Variation de la hauteur de la barrière d'énergie avec le champ

Il est important de connaître la variation de la hauteur de la barrière d'énergie avec le champ pour les mesures de dynamique de retournement de l'aimantation.

Pour l'angle $\pi - \varphi = 0$, un minimum local de l'énergie se trouve à $\theta_1 = 0$ et le maximum à $\cos\theta_2 = -h$. La différence d'énergie est donc :

$$\Delta E = E(\theta_2) - E(\theta_1) = (1 - h)^2 \quad (9)$$

Pour les angles $\pi - \varphi \neq 0$, un calcul analytique de la différence d'énergie n'est pas possible. C'est pour cette raison que nous avons effectué un calcul numérique. On ajuste facilement le résultat avec une loi de puissance :

$$\Delta E = (1 - h / h_0)^\alpha = \varepsilon^\alpha \quad (10)$$

Ici, α dépend de l'angle φ et h_0 est le champ de retournement (équation 7). La variation de α , tracée dans les figures I.1.5, dépend fortement de l'intervalle d'ajustement. Dans tous les cas, α est minimal à 45° et croît jusqu'à $\alpha = 2$ pour $\pi - \varphi = 0^\circ$ et 90° . Si l'on ajuste sur tout l'intervalle ($\varepsilon < 1$), cette croissance est relativement douce et devient de plus en plus divergente pour des intervalles d'ajustement restreints sur une petite partie de la courbe juste avant le retournement ($\varepsilon = 0$). Par exemple, pour un ajustement sur un intervalle $\varepsilon < 0.01$, $\alpha \approx 1.5$ pour $0.1^\circ < \pi - \varphi < 89.9^\circ$.

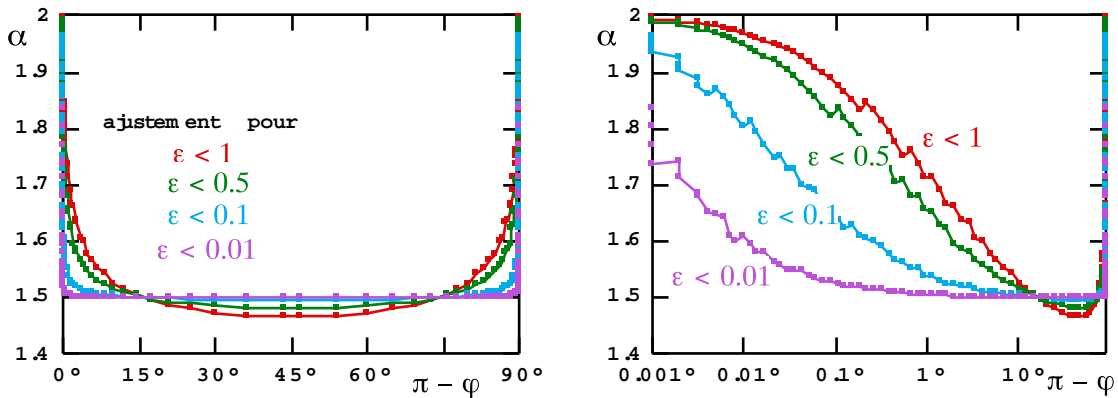


Fig. I.1.5 : Dépendance angulaire du paramètre α calculé numériquement. Les deux graphes sont identiques mis à part l'échelle de l'axe $\pi - \varphi$.

Un bon ajustement de α en fonction de φ est donné par :

$$\alpha = 1.5 + 0.5 e^{-a(\pi - \varphi)^{0.4}}$$

Ici, a est une constante qui dépend de l'intervalle d'ajustement :

$$a = 3 \text{ pour } \varepsilon < 0.1 \text{ et } a = 10 \text{ pour } \varepsilon < 0.01$$

La conclusion de cette étude est, nous le verrons dans la suite, similaire à celle du paragraphe I.3. L'exposant α , qui caractérise la hauteur de la barrière en fonction du champ, est pratiquement toujours égal à 1.5, sauf dans certains cas de haute symétrie, i.e. pour $\varphi = 0$ ou π . Dans ces deux cas, une

solution analytique donne $\alpha = 2$. Cette dépendance, découverte par Néel [Néel 1947/49] a été beaucoup utilisée en magnétisme (voir paragraphe I.3).

Nos mesures ont toujours été effectuées à basse température, i.e. le retournement se passe pour $\varepsilon < 0.01$. C'est pourquoi, on peut dire que α est toujours égal à 1.5 pour une particule réelle. Cependant, on peut aussi imaginer que cette variation forte de α introduit un bruit supplémentaire à basse température. On pourrait généraliser ce comportement aux autres systèmes, par exemple sur des centres de nucléation ou même un spin isolé. Si cet effet est non négligeable, il se produira forcément un changement de la dynamique de retournement de l'aimantation en passant d'une température équivalente à $\varepsilon < 0.1$ à une température équivalente à $\varepsilon < 0.01$.

c) Application : le champ de retournement d'une particule de Co

Nous appliquons ici les résultats de la rotation uniforme à un ellipsoïde de faible épaisseur dont les dimensions sont typiquement celles de nos mesures. Les axes principaux vérifient l'inégalité $a > b \gg c$. On néglige l'anisotropie magnétocristalline. Le champ de retournement est donné par les équations (1 - 3) :

$$\mu_0 H_0 = \mu_0 M_S (N_b - N_a) = \mu_0 M_S \frac{3\pi c}{8a} \left(\frac{a-b}{a} \right) \left[1 + \frac{a-b}{a} \right]$$

Pour une particule de Co, $M_S^{\text{Co}} = 1.4 \cdot 10^6 \text{ A/m}$, on trouve :

$$\mu_0 H_{0(T)} \approx 2 \frac{c}{a} \left(\frac{a-b}{a} \right) \left[1 + \frac{a-b}{a} \right]$$

Il est important de remarquer que H_0 dépend linéairement de c , i.e. de l'épaisseur de l'ellipsoïde. Dans la figure I.1.6, le champ de retournement est tracé en fonction de l'axe b (a fixe) pour trois épaisseurs de l'ellipsoïde.

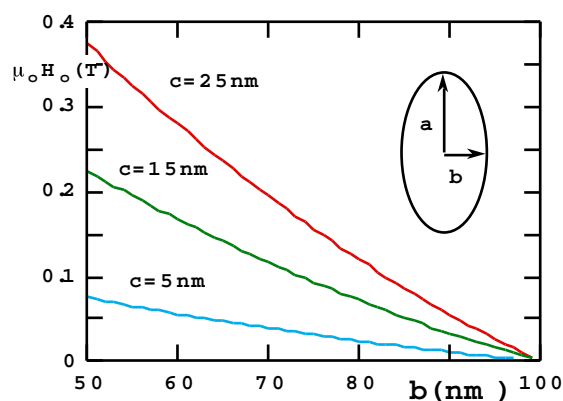


Fig. I.1.6 : Variation du champ de retournement selon le demi-axe b ($a = 100 \text{ nm}$) pour trois valeurs de c .

I.1.2 Retournement non uniforme

Après avoir décrit le mode de rotation uniforme de l'aimantation, nous nous intéressons ici aux modes de retournement non uniforme. Pour ces modes, les spins ne restent plus parallèles les uns par rapport aux autres. Par conséquent, l'énergie d'échange n'est pas constante pendant le retournement. Une méthode pour différencier les retournements uniforme et non uniforme est de supposer que le retournement se fait par le mode qui coûte le moins d'énergie [Aharoni 1958].

Nous allons rappeler brièvement deux modes de retournement non uniforme.

a) "Buckling" [Frei 1957, Aharoni 1958]

Pour un cylindre infini, ce mode de retournement est décrit par des fluctuations périodiques locales de l'aimantation autour de l'axe du cylindre. Les spins sont à peu près parallèles entre eux dans un plan perpendiculaire à l'axe du cylindre. Leurs directions ne dépendent que de la coordonnée z prise parallèlement à l'axe du cylindre. La longueur d'onde des fluctuations est une fonction du rayon du cylindre b . Elle devient infinie pour $b \rightarrow 0$, i.e. le mode buckling devient la rotation uniforme.

Pour $b > 0$, le champ de retournement du mode buckling est plus faible que celui de la rotation uniforme. Ceci vient de l'alternance de pôles magnétiques à la surface du cylindre qui réduisent l'énergie magnétostatique. Ici, il faut payer une énergie d'échange mais l'énergie totale reste plus faible que pour la rotation uniforme. Pour un cylindre de rayon réduit $S = b/b_0 \ll 1$, le champ de retournement est approché par la formule suivante :

$$H_n \cong -\frac{2K}{\mu_0 M_S} = -\frac{2K_0}{\mu_0 M_S} - \frac{1}{2} M_S \quad (\approx \text{rotation uniforme avec } N_b = N_a = \frac{1}{2}, N_c = 0)$$

où K_0 est la constante d'anisotropie. Pour $S \gg 1$:

$$H_n \cong -\frac{2K_0}{\mu_0 M_S} - \frac{2.58}{4} M_S S^{-2/3}$$

Ici, $S = b/b_0$ et $b_0 = \sqrt{A}/M_S$ où A est la constante d'échange.

b) "Curling" [Brown 1957, Frei 1957, Shtrikman 1959, Aharoni 1966]

Pour ce deuxième mode, avant le retournement, les spins sont alignés selon la direction de l'axe du cylindre. Si un champ magnétique est appliqué dans le sens opposé à la direction de l'aimantation et dépasse une certaine valeur (champ de nucléation), l'aimantation se retourne par un enroulement des spins (cf. fig. I.I.7).

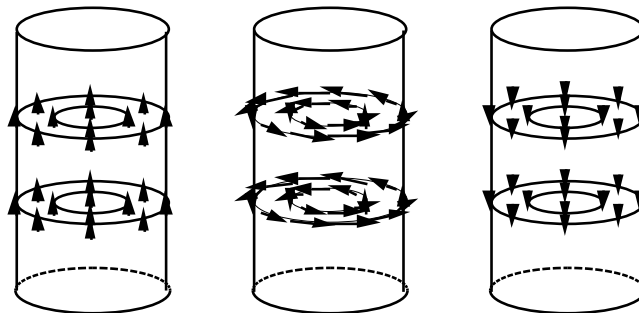


Fig. I.I.7 : Schéma de retournement de l'aimantation par enroulement des spins (curling). Les flèches indiquent la direction des spins.

Pour ce mode de retournement, il ne faut pas payer d'énergie magnétostatique car les spins restent parallèles à la surface. Par contre, il faut s'acquitter des énergies d'anisotropie et d'échange. Le champ de retournement d'un cylindre infini est :

$$H_n \cong -\frac{2K_0}{\mu_0 M_S} - \frac{1.08}{2} M_S S^{-2}$$

Pour une ellipse allongée avec les axes $c > a = b$ ($N_c < N_a = N_b$) :

$$H_n \cong N_a M_S - \frac{2K_0}{\mu_0 M_S} - \frac{k}{2} M_S S^{-2}$$

Ici, k est une constante numérique qui augmente avec le rapport $m = c/a$. Pour $m \rightarrow \infty$ (cylindre infini) $k = 1.08$ et pour $m = 1$ (sphère) $k = 1.39$ [Aharoni 1959].

Dans le cadre de ce modèle, on peut montrer que le cycle d'hystérésis d'un cylindre infini est rectangulaire si le champ est appliqué parallèlement à l'axe du cylindre, i.e. il n'y a pas de rotation réversible des spins (pas d'aimantation non uniforme) avant le retournement de l'aimantation. Le retournement se fait avec un seul saut qui retourne complètement l'aimantation du cylindre. Au cours de ce saut, l'aimantation est non uniforme.

Si l'on augmente le rayon b du cylindre, H_n s'approche asymptotiquement de $-2K_0/\mu_0 M_S$ i.e. H_n devient indépendant du rayon du cylindre.

La figure I.1.8 montre le champ de retournement réduit en fonction du rayon réduit pour les trois modes de retournement. Frei, Shtrikman, Treves et Aharoni proposent de prendre le mode qui a le champ de retournement le plus faible.

c) Champ de retournement d'un cylindre infini en fonction de l'angle

Par la suite, pour étudier la dépendance angulaire du champ de retournement d'un cylindre infini, nous négligerons l'anisotropie magnétocristalline ($K_0 \approx 0$). Tous les champs seront donnés dans leur forme réduite : $h = 2H/M_S$.

Pour un petit rayon du cylindre $S = b/b_0 \rightarrow 0$, le retournement de l'aimantation est uniforme et donné par le modèle de Stoner-Wohlfarth. En dehors de ce cas limite, Shtrikman et Treves ont calculé le champ de retournement en supposant que [Shtrikman 1959]:

- (1) le mode de retournement est soit la rotation uniforme, soit le curling ;
- (2) c'est toujours le mode de h_n le plus faible qui est choisi ;
- (3) après le saut de retournement, le système est toujours dans une position d'équilibre donnée par le modèle de Stoner-Wohlfarth.

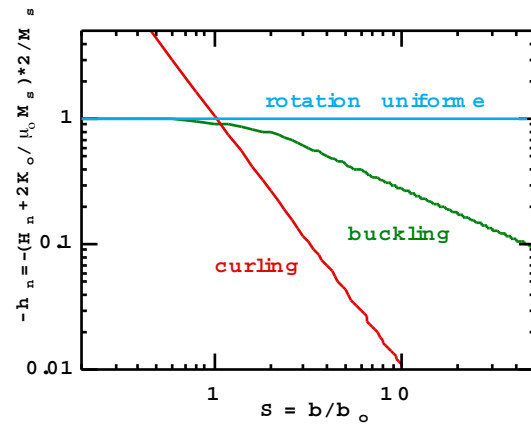


Fig. I.1.8 : Champ de nucléation en fonction du rayon réduit.

Le retournement commence toujours avec une rotation uniforme. C'est pour cette raison que la position d'équilibre est donnée par l'équation (cf. I.1 (4)) :

$$\partial_{\theta} E = \sin 2\theta + 2h \sin(\theta - \varphi) = 0$$

Ainsi pour un angle du champ appliqué non nul ($\varphi \neq 0$), les spins tournent légèrement avant le retournement. Cependant, Shtrikman et Treves ont montré que le champ de nucléation interne pour le mode de curling généralisé est indépendant des angles φ et θ et qu'il est donné par h_{ni} pour $\varphi = 0$:

$$h_{ni} = -1.08 S^{-2}$$

Le champ interne h_i avant la nucléation est donné par la somme vectorielle du champ appliqué et du champ démagnétisant :

$$h_i = |\bar{h} - N\bar{M}_s| = -\sin^2 \theta + h \cos(\theta - \varphi)$$

En utilisant les trois équations précédentes, on peut éliminer h_i et θ et on trouve que le champ de nucléation est égal à (voir annexe 2) :

$$h_n = \frac{2H_n}{M_s} = \frac{h_{ni}(1+h_{ni})}{[h_{ni}^2 + (1+2h_{ni})\cos^2 \varphi]^{1/2}}$$

La dépendance angulaire du champ de nucléation pour différents rayons S est montrée dans la figure I.1.9. Pour les rayons S faibles, le mode de curling devient la rotation uniforme et pour les rayons S très grands, le champ de nucléation est donné par :

$$h_n(\varphi) = \frac{h_n(0)}{|\cos \varphi|} \quad \text{pour } S \rightarrow \infty$$

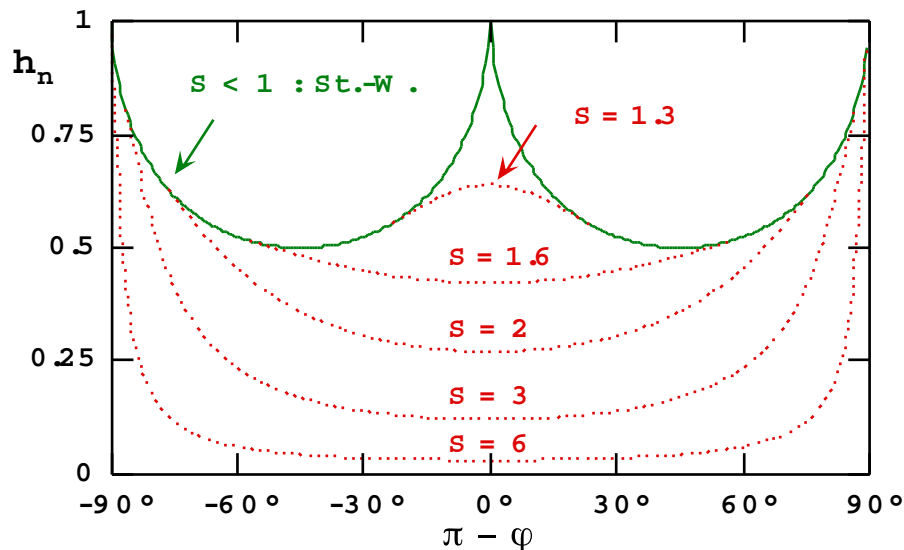


Fig. I.1.9 : Dépendance angulaire du champ de nucléation pour différents rayons réduits S du cylindre. Le mode de retournement est la rotation uniforme et le curling respectivement sur les lignes continue et en pointillé [Shtrkman 1959].

Les modes que nous venons de présenter ne sont valables que pour des particules monodomaines. Lorsque les particules sont plus grosses, elles possèdent des parois. Il faut donc d'autres modèles pour décrire la structure en domaines et la variation de l'aimantation. C'est l'objet du paragraphe suivant.

I.2 Modèles pour la structure en domaines magnétiques

La plupart des particules étudiées sont suffisamment minces pour que, dans une première approximation, nous puissions considérer que l'aimantation dans les domaines ne varie pas suivant l'épaisseur. Nous nous ramenons donc à un problème à deux dimensions.

Deux modèles bidimensionnels de la structure en domaines magnétiques sont proposés ci-dessous [Coquaz 1992], dont les domaines d'application respectifs dépendent d'un facteur de qualité défini par :

$$Q = \frac{2K_0}{\mu_0 M_S^2}$$

Ici, K_0 est la constante d'énergie d'anisotropie, M_S est l'aimantation à saturation et μ_0 est la perméabilité du vide.

I.2.1 Modèle classique de Landau-Lifshitz

Ce modèle s'adresse aux matériaux ayant une anisotropie notable, tels que le nickel, le fer et le cobalt dont la constante d'anisotropie K_0 vaut respectivement $5 \cdot 10^3$, $3,4 \cdot 10^4$ et $5,3 \cdot 10^5$ J/m³. Leurs configurations en domaines ont des directions d'aimantation privilégiées bien définies. On distingue deux cas :

1) L'énergie d'anisotropie prédomine : $Q = 2K_0 / \mu_0 M_S^2 > 1$

Les moments magnétiques s'alignent le long des directions de facile aimantation (fig. I.2.1a).

2) K notable mais $Q = 2K_0 / \mu_0 M_S^2 < 1$

L'énergie de pôles magnétiques impose une structure avec des domaines de fermeture qui peuvent quand même être aimantés suivant un axe de facile aimantation dans les systèmes à symétrie cubique (fig. I.2.1b).

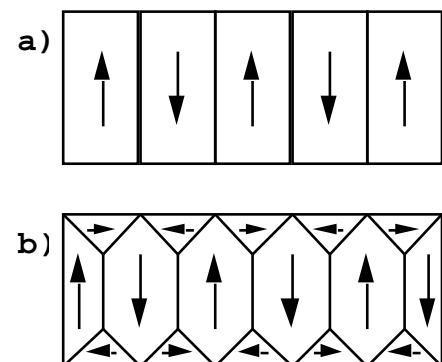


Fig. I.2.1 : Modèle classique de Landau Lifshitz.

I.2.2 Modèle de Van den Berg

Ce modèle élaboré par Van den Berg s'adresse aux matériaux idéalement doux (anisotropie K très faible). Il permet de prouver l'existence des domaines et de prévoir leur répartition. [Van den Berg 1984]. Les hypothèses pour la validité de ce modèle sont les suivantes :

- le facteur de qualité est faible : $Q = 2K_0 / \mu_0 M_S^2 \ll 1$;
- les objets sont des couches minces de surface et interface planes et parallèles, de bords cylindriques perpendiculaires aux plans du film, mais de contour arbitraire ;
- les dimensions de l'objet doivent être nettement supérieures à celles qui imposeraient une structure mono-domaine ;

- le champ extérieur et les courants de conduction doivent être nuls pour que la distribution d'aimantation soit solénoïdale ($\text{div}(\mathbf{M}) = 0$ à l'intérieur de l'objet et $\mathbf{M} \cdot \mathbf{n} = 0$ à la surface, \mathbf{n} vecteur unitaire normal à la surface) ;
- l'aimantation dans les domaines ne change pas dans la direction perpendiculaire au plan du film (structure bidimensionnelle) ;
- on néglige les accrochages de parois : la structure atteint l'état d'équilibre.

A partir de ces hypothèses, Van den Berg a développé une théorie des domaines basée sur les principes micromagnétiques [Brown 1957]. Je présente ici seulement une "recette" pour une construction rapide de la structure de base qui est la solution la plus simple [Van den Berg 1986]. Les règles sont les suivantes :

1. Les parois d'une structure de base sont les lieux géométriques de tous les centres des cercles qui sont tangents au bord de l'objet en au moins deux points et qui sont contenus dans l'objet.
2. Il n'y a pas de paroi entre le bord et sa développée (lieu géométrique des centres de courbure).
3. Une paroi ne peut s'interrompre que sur une autre paroi ou sur une singularité de la développée à savoir le centre de courbure d'un segment de bord convexe dont le rayon est localement minimum. Les courbes de base de segments de bord concave n'ont pas de points d'intersection dans la région adjacente à ce segment.

Trois exemples de la structure de base sont montrés dans les figures I.2.2 (a - c).

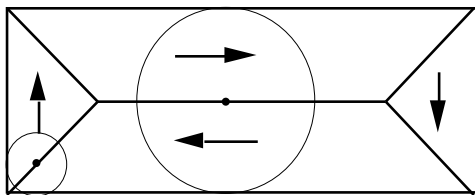


Fig. I.2.2a : Structure de Landau Lifshitz dans un motif rectangulaire.

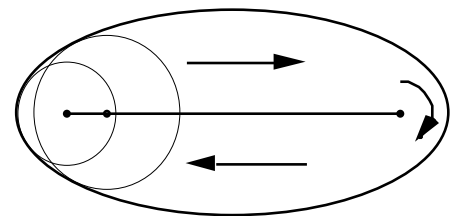


Fig. I.2.2c : La paroi de l'ellipse est formée par le segment de droite dont les extrémités sont les deux centres de courbures de rayons localement minimum.

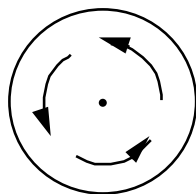


Fig. I.2.2b : La configuration en paroi d'un cercle se réduit à un seul point au centre de l'objet.

L'étude de Van den Berg s'étend aux configurations dites "composites". Les structures composites sont toute structure autorisée plus complexe que la structure de base. Van den Berg décompose la surface de l'objet en sous-régions disjointes, simplement connexes ou de type parallèle, dont l'union couvre complètement l'objet. Ensuite, pour trouver la structure en domaines, on applique les mêmes règles que pour la structure de base. La figure I.2.3 montre deux exemples d'une structure composite circulaire. Pour la construction, on décompose verticalement l'ellipse en deux parties.

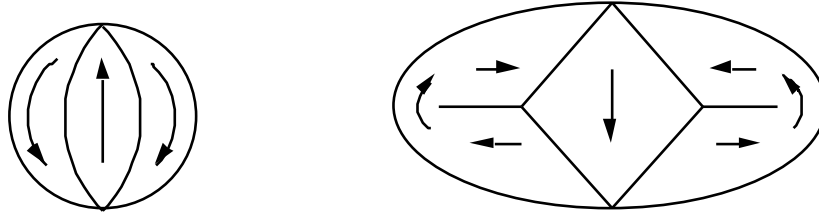


Fig. I.2.3 : Exemples de structures composites.

I.2.3 Modèle de Van den Berg généralisé dans le cas d'un champ magnétique appliqué

Bryant et Suhl [Bryant 1989] ont généralisé le modèle de Van den Berg dans le cas d'un champ magnétique appliqué. Le champ magnétique induit des pôles magnétiques et les parois (caractéristiques) se déforiment. Ceci peut entraîner une expansion et un mouvement des parois dépendant de la forme de l'objet. Nous ne présentons ici que le résultat concernant un disque de faible épaisseur. A champ nul, Van den Berg prévoit une paroi en forme d'un vortex dans le centre du disque. A champ non nul, le vortex se transforme en une paroi en forme de c, qui se déplace vers les bords du disque (voir figure I.2.5). La distance a entre l'intersection de la paroi avec l'axe x et l'axe y (voir figures I.2.4) est donnée par :

$$\frac{a}{D/2} = h \quad \text{où} \quad h = \frac{H_{\text{ext.}} D}{d M_S}$$

Ici, h est le champ appliqué réduit, M_S est l'aimantation à saturation, D et d sont respectivement le diamètre et l'épaisseur du disque. Pour $h = 1$, la paroi touche le bord du disque. Pour $h > 1$, le calcul n'est plus possible ce qui correspond physiquement à l'annihilation de la paroi. On peut noter que le champ d'annihilation dépend de l'épaisseur du disque : il décroît lorsque d augmente.

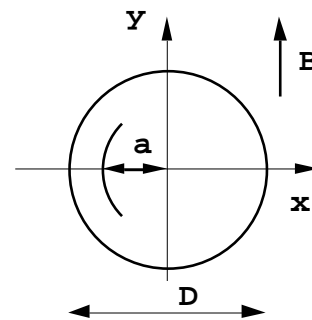
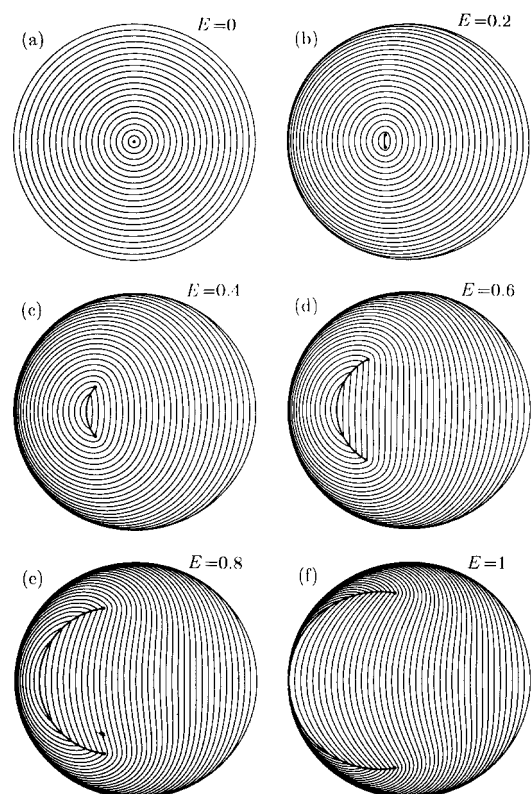


Fig. I.2.4 : Position de la paroi dans un disque

Fig. I.2.5 : Structure en domaines d'un disque pour différents champs appliqués $E = h$ [Bryant 1989].

Cette structure en domaines a été observée expérimentalement, par exemple, par Rühlig *et al.* [Rühlig 1990]. Ces auteurs ont étudié des disques élaborés à partir de multicouches permalloy - fer. L'observation des domaines a été faite en utilisant des techniques basées sur l'effet Kerr. La figure I.2.6a montre la structure en domaines pour un disque de diamètre $120\ \mu\text{m}$ et pour des champs $h < 1$. La figure I.2.6b montre un agrandissement sur les bords du disque pour les champs avant et après l'annihilation de la paroi. Le champ d'annihilation est $h_{\text{annih}} = 1.27$.

Des mesures similaires ont été faites pour des particules rectangulaires, par exemple, par Hefferman *et al.* [Hefferman 1991].

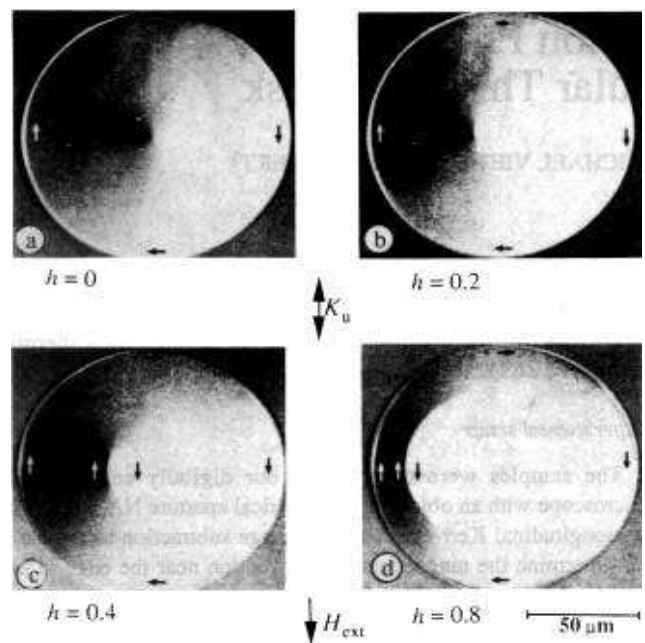


Fig. I.2.6a : Structure en domaines pour un disque de diamètre $120\ \mu\text{m}$ et pour des champs $h < 1$.

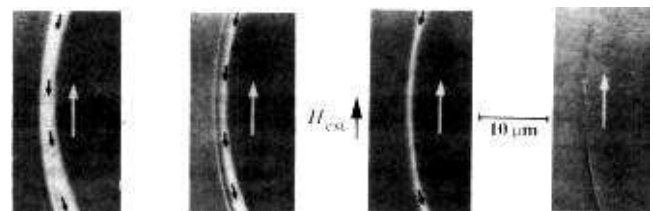


Figure I.2.6b : Agrandissement sur les bords du disque pour les champs avant et après l'annihilation de la paroi.

Après un rapide aperçu sur quelques modèles de retournement de l'aimantation, modèles quasi-statiques, nous nous intéressons maintenant à la dynamique de la variation de l'aimantation. Pour ceci il faut connaître la barrière d'énergie et sa variation en fonction du champ magnétique. Un peu plus loin, nous donnons deux mécanismes pour franchir cette barrière : soit par activation thermique, soit par effet tunnel.

I.3 Variation de la barrière d'énergie en fonction du champ magnétique

La dynamique de retournement de l'aimantation dépend fortement de la variation de la barrière d'énergie avec le champ magnétique appliqué. Le premier modèle simple a été proposé par Néel [Néel 1947/49]. On suppose que l'aimantation d'une particule isolée se retourne uniformément. La particule possède une anisotropie magnétocristalline uniaxiale. Si le champ magnétique est appliqué parallèlement à l'axe de facile aimantation, l'énergie a deux minima : $\theta = 0$ et $\theta = \pi$. Entre ces deux minima, il y a une barrière d'énergie avec une hauteur de :

$$\Delta E = VK \left(1 - \frac{\mu_0 MH}{2K} \right)^2 \quad (V : \text{volume de la particule, } K : \text{constante d'anisotropie}).$$

La variation du champ est quadratique. Ce modèle est très connu sous le nom de Stoner-Wohlfarth (cf. I.1). Il a été utilisé dans beaucoup de domaines comme le magnétisme des roches, les verres de spins et la relaxation magnétique des matériaux ferromagnétiques. Avant de regarder ce modèle plus en détail, nous allons calculer quelques formules approximatives pour la variation de la barrière d'énergie en fonction du champ appliqué. Pour ceci, il faut développer la fonction d'énergie en série de Taylor autour de la valeur du champ de retournement H_0 . Ce champ de retournement est associé à un angle de retournement noté θ_0 . L'énergie dépend de deux variables : le champ magnétique H et l'angle θ entre l'aimantation et l'axe de facile aimantation. Ce calcul reprend celui effectué par Victora jusqu'au premier ordre [Victora 1989]. Nous utilisons les abréviations suivantes :

$$\partial_{H_0} E = \left(\frac{\partial E}{\partial H} \right)_{H=H_0} \quad \partial_{\theta_0} E = \left(\frac{\partial E}{\partial \theta} \right)_{\theta=\theta_0} \quad \Delta H = H_0 - H \quad \Delta \theta = \theta - \theta_0$$

Le développement en série de Taylor s'écrit :

$$E = E_0 - \partial_{H_0} E (\Delta H) - \partial_{H_0} \partial_{\theta_0} E (\Delta H)(\Delta \theta) + \frac{1}{2} \partial_{H_0}^2 E (\Delta H)^2 + \frac{1}{6} \partial_{\theta_0}^3 E (\Delta \theta)^3 + \\ - \frac{1}{2} \partial_{H_0} \partial_{\theta_0}^2 E (\Delta H)(\Delta \theta)^2 + \frac{1}{24} \partial_{\theta_0}^4 E (\Delta \theta)^4 + O(\Delta H^{5/2})$$

La dérivée $\partial_{\theta_0} E = 0$ s'annule car le système est dans un minimum local. De plus, la dérivée $\partial_{\theta_0}^2 E = 0$ s'annule aussi car ceci est la définition du retournement de l'aimantation. Dans un premier temps, nous négligerons le terme $1/24 \partial_{\theta_0}^4 E (\Delta \theta)^4$. Nous allons voir que ce terme peut jouer un rôle important dans certains cas particuliers.

Pour un minimum ou maximum, il faut que $\frac{\partial E}{\partial \theta} = 0$, donc :

$$\frac{\partial E}{\partial \theta} = -\partial_{H_0} \partial_{\theta_0} E (\Delta H) + \frac{1}{2} \partial_{\theta_0}^3 E (\Delta \theta)^2 - \partial_{H_0} \partial_{\theta_0}^2 E (\Delta H)(\Delta \theta) = 0$$

La solution de cette équation est :

$$\Delta\theta_{2,1} = \frac{\partial_{H_0} \partial_{\theta_0}^2 E (\Delta H)}{\partial_{\theta_0}^3 E} \pm \sqrt{\left(\frac{\partial_{H_0} \partial_{\theta_0}^2 E (\Delta H)}{\partial_{\theta_0}^3 E} \right)^2 + \frac{2 \partial_{H_0} \partial_{\theta_0} E (\Delta H)}{\partial_{\theta_0}^3 E}}$$

En utilisant l'abréviation $\Delta\theta_{2,1} = a \pm \sqrt{a^2 + b}$, la différence d'énergie entre le minimum à $\Delta\theta_1$ et le maximum à $\Delta\theta_2$ s'écrit :

$$\begin{aligned} \Delta E = E(\Delta\theta_2) - E(\Delta\theta_1) = & -2 \partial_{H_0} \partial_{\theta_0} E (\Delta H) \sqrt{a^2 + b} + \\ & + \partial_{\theta_0}^3 E \left(a^2 \sqrt{a^2 + b} + \frac{1}{3} \sqrt{a^2 + b}^3 \right) - \partial_{H_0} \partial_{\theta_0}^2 E (\Delta H) a \sqrt{a^2 + b} + O(\Delta H^{5/2}) \end{aligned}$$

Donc :

$$\begin{aligned} \Delta E = E(\Delta\theta_2) - E(\Delta\theta_1) = & -2 \partial_{H_0} \partial_{\theta_0} E (\Delta H) \sqrt{\left(\frac{\partial_{H_0} \partial_{\theta_0}^2 E (\Delta H)}{\partial_{\theta_0}^3 E} \right)^2 + \frac{2 \partial_{H_0} \partial_{\theta_0} E (\Delta H)}{\partial_{\theta_0}^3 E}} + \\ & + \frac{1}{3} \partial_{\theta_0}^3 E \sqrt{3 \left(\frac{\partial_{H_0} \partial_{\theta_0}^2 E (\Delta H)}{\partial_{\theta_0}^3 E} \right)^2 \left(\frac{2 \partial_{H_0} \partial_{\theta_0} E (\Delta H)}{\partial_{\theta_0}^3 E} \right)^2 + \left(\frac{2 \partial_{H_0} \partial_{\theta_0} E (\Delta H)}{\partial_{\theta_0}^3 E} \right)^3} + O(\Delta H^{5/2}) \end{aligned}$$

Si on néglige les termes d'ordre supérieur à $O(\Delta H^2)$:

$$\begin{aligned} \Delta E = E(\Delta\theta_2) - E(\Delta\theta_1) = & -\frac{2 \partial_{H_0} \partial_{\theta_0} E (\Delta H)}{|\partial_{\theta_0}^3 E|} \sqrt{\left(\partial_{H_0} \partial_{\theta_0}^2 E (\Delta H) \right)^2 + 2 \partial_{\theta_0}^3 E \partial_{H_0} \partial_{\theta_0} E (\Delta H)} + \\ & + \frac{1}{3 \partial_{\theta_0}^3 E} \sqrt{3 \left(\partial_{H_0} \partial_{\theta_0}^2 E (\Delta H) \right)^2 \left(2 \partial_{H_0} \partial_{\theta_0} E (\Delta H) \right)^2 + \partial_{\theta_0}^3 E \left(2 \partial_{H_0} \partial_{\theta_0} E (\Delta H) \right)^3} + O(\Delta H^{5/2}) \quad (1) \end{aligned}$$

Cette expression n'est pas tout à fait exacte car nous avons négligé le terme $1/24 \partial_{\theta_0}^4 E (\Delta\theta)^4$ qui est de l'ordre de $O(\Delta H^2)$. Ce terme est souvent très faible. Plus loin, nous allons examiner le cas d'une exception à cette approximation. Si on considère seulement le premier ordre non nul, on a :

$$\Delta\theta_{2,1} = \pm \sqrt{\frac{2 \partial_{H_0} \partial_{\theta_0} E (\Delta H)}{\partial_{\theta_0}^3 E}} + O(\Delta H)$$

$$\Delta E = E(\Delta\theta_2) - E(\Delta\theta_1) = (\Delta H)^{3/2} \frac{2}{3} \sqrt{\frac{(2 \partial_{H_0} \partial_{\theta_0} E)^3}{\partial_{\theta_0}^3 E}} + O(\Delta H^2) \quad (2)$$

Le terme le plus important du développement est donc en $(\Delta H)^{3/2}$, i.e. l'exposant α de la hauteur de la barrière en fonction du champ est égal à 1.5.

Application : le modèle de Stoner-Wohlfarth

Nous allons appliquer les formules (1) et (2) au modèle de Stoner-Wohlfarth. Tous les calculs sont donnés dans l'annexe 3. Les notations sont celles du paragraphe I.1.

Le développement limité au premier ordre non nul donne :

$$\Delta E = E(\Delta\theta_2) - E(\Delta\theta_1) = 2 \left(\frac{2 \Delta H}{3 h_0} \right)^{3/2} |\sin 2\theta_0| + O(\Delta H^2), \quad \tan \theta_0 = -\tan^{1/3} \varphi, \quad h_0 = \frac{\mu_0 M H_0}{2K}$$

Pour le développement limité jusqu'au second ordre non nul, on trouve :

$$\Delta E = E(\Delta\theta_2) - E(\Delta\theta_1) \approx \frac{2}{3} \left(\frac{(\Delta H)}{h_0} \right)^{3/2} \left[\begin{array}{l} \sqrt{4\cos^2 2\theta_0 \frac{(\Delta H)}{h_0} + 6 \sin^2 2\theta_0} \\ -\frac{\sqrt{6}}{3} \sqrt{2\cos^2 2\theta_0 \frac{(\Delta H)}{h_0} + \sin^2 2\theta_0} \end{array} \right] + O(\Delta H^{5/2})$$

Pour arriver à ce résultat, nous avons négligé le terme :

$$\frac{1}{24} \partial_{\theta_0}^4 E (\Delta\theta)^4 \approx -\frac{\cos 2\theta_0}{9} \left(\frac{(\Delta H)}{h_0} \right)^2 + O(\Delta H^{5/2})$$

Ceci n'est acceptable que pour des angles θ_0 petits (θ_0 croît rapidement avec φ : $\theta_0 \approx (\pi - \varphi)^{1/3}$ pour $\pi - \varphi$ petit, voir fig. I.1.4). Par exemple pour $\theta_0 = 0$, le développement au deuxième ordre donne :

$$\Delta E \approx 0,5635 \left(\frac{(\Delta H)}{h_0} \right)^2$$

ce qui est bien différent du résultat analytique ($\alpha=2$). La figure I.3.1 compare les résultats du développement au premier et second ordres avec les résultats du calcul numérique. On voit que le développement au second ordre est une bonne approximation pour $\pi - \varphi > 0.1^\circ$.

La conclusion de cette étude est que l'exposant α de la dépendance de la hauteur de la barrière en fonction du champ, est pratiquement toujours égal à 1.5 sauf dans certains cas de haute symétrie, par exemple le modèle de Stoner-Wohlfarth pour $\varphi = 0$ ou π . Dans ces cas, une solution analytique donne $\alpha = 2$. Dans le paragraphe I.1, nous avons présenté un calcul numérique de α en fonction de φ . Ce calcul montre également bien que α est pratiquement toujours égal à 1.5, spécialement à basse température ($\varepsilon < 0.01$).

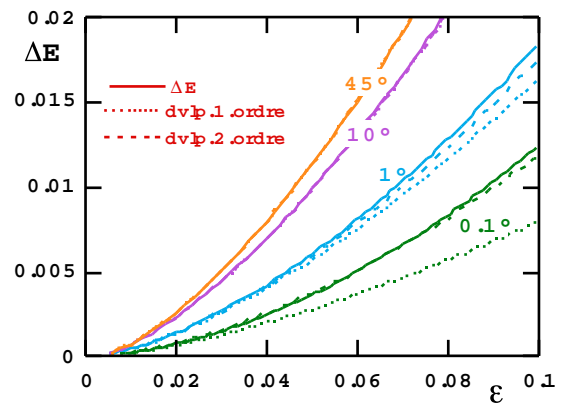


Fig. I.3.1 : Hauteur de la barrière d'énergie en fonction de $\varepsilon=1-H/H_0$ pour différents angles du champ appliqué $\pi-\varphi$. Les courbes pleines sont calculées numériquement et les courbes en pointillées sont données par un développement au premier et second ordres.

I.4 Modèle simple décrivant le passage d'une barrière d'énergie (régime classique)

Dans cette thèse, nous voulons comparer nos mesures avec un modèle simple représentant un système à deux états d'équilibre séparés par une barrière d'anisotropie. Ce modèle a été proposé par Kurkijärvi [Kurkijärvi 1972] et a été appliqué avec beaucoup de succès pour l'interprétation de mesures effectuées sur les jonctions Josephson et sur les SQUID [Fulton 1974, Jackel 1974]. Ce modèle possède un seul degré de liberté (dans notre cas, l'angle de rotation de l'aimantation d'une particule magnétique) et le système est décrit par un potentiel de forme quelconque montré dans la figure I.4.1. Un paramètre important est la hauteur de la barrière qui est une fonction du champ appliqué au système (ici le champ magnétique). Avec une augmentation du champ, on favorise un des deux états d'équilibre. Pour la température $T = 0$, le système passe de l'état avec l'énergie plus élevée à l'autre état au moment où la hauteur de la barrière s'annihile (fig. I.4.1). Pour les températures non nulles, ce passage se produit au moment où la hauteur de la barrière est de l'ordre de l'énergie thermique kT (fig. I.4.2). Dans ce cas, on parle d'une activation thermique. Un autre moyen de passer la barrière d'énergie est de le faire par effet tunnel (voir paragraphe I.5). Comme le passage de la barrière est un processus stochastique, chaque mesure de ce passage diffère des autres mesures, i.e. le passage de la barrière est décrit par une distribution (ici par une distribution de champs de retournement).

Dans le cas où le passage de la barrière se produit pour de petites hauteurs de la barrière, i.e. pour des températures basses, la hauteur de la barrière peut s'exprimer de façon approchée par la loi suivante (voir paragraphe I.3) :

$$\Delta E = E_0 h^\alpha, \quad h = \left(1 - H/H_{sw}^0\right), \quad h \ll 1$$

où E_0 est la hauteur de la barrière à champ nul et H_{sw}^0 le champ de retournement de l'aimantation (sw : switching field) à $T = 0$. α est un exposant proche de 1.5 (voir paragraphe I.3).

Si le champ magnétique est constant, on suppose que le taux de passage de la barrière est donné par une loi de type Arrhenius :

$$\Gamma = \Gamma_0 e^{-\Delta E/kT} \quad (1)$$

De plus, on suppose que la probabilité de ne pas passer la barrière est :

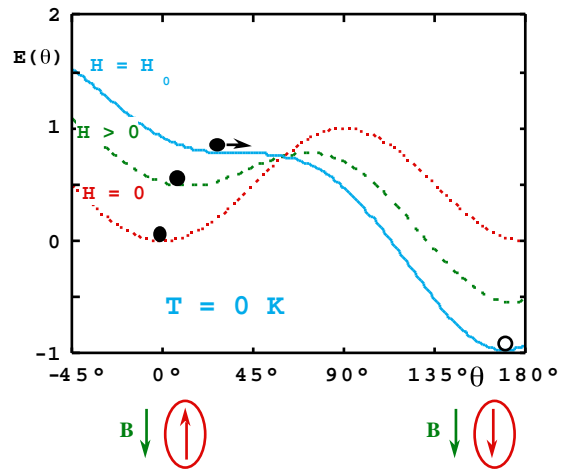


Fig. I.4.1 : Energie totale du système pour différents champs appliqués. La position du minimum local d'énergie est indiquée par les ronds noirs.

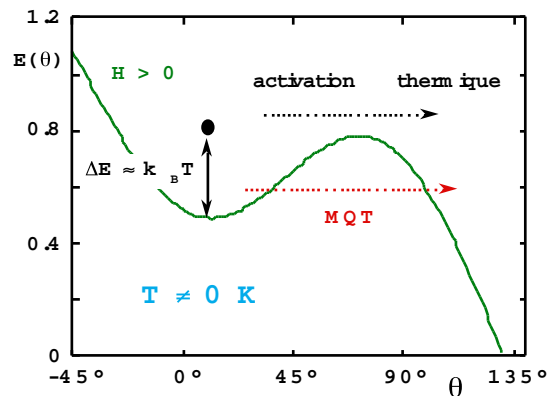


Fig. I.4.2 : Passage de la barrière activée thermiquement.

$$P(t) = e^{-\Gamma t} \quad (2)$$

De façon analogue, la probabilité de ne pas passer la barrière pour une vitesse de balayage constante est :

$$\tilde{P}(H) = \exp \left[- \int_0^H dH' \frac{\Gamma(H')}{dH'/dt} \right] \quad (3)$$

Donc, la distribution du champ de retournement est :

$$p(H) = - \frac{d\tilde{P}}{dH} = \frac{\Gamma}{dH/dt} \tilde{P}(H) \quad (4)$$

i.e. $p(H)$ est le produit de la probabilité $\Gamma/(dH/dt)$ que le retournement se passe dans l'intervalle entre H et $H+dH$, et de la probabilité $\tilde{P}(H)$ que le retournement ne soit pas encore arrivé. La figure I.4.3 montre une distribution de champ de retournement calculée numériquement.

La valeur la plus probable \bar{H}_{sw} (maximum de la distribution) et la racine de la variance σ (demi largeur) sont données par (voir annexe 4) :

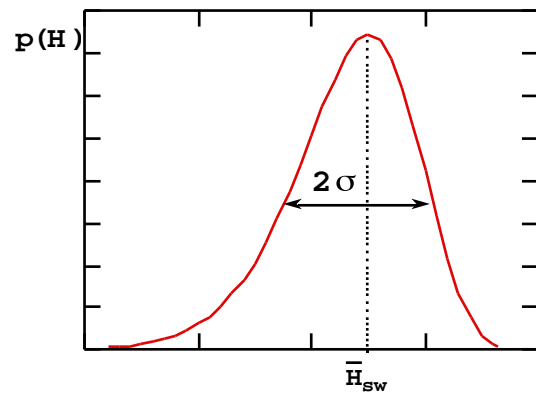


Fig. I.4.3 : Distribution du champ de retournement.

$$\bar{H}_{sw} \cong H_{sw}^0 \left(1 - \left[\frac{kT}{E_0} \ln \left(\frac{cT}{vh^{\alpha-1}} \right) \right]^{1/\alpha} \right) \quad \text{où} \quad c = \frac{k H_{sw}^0 \Gamma_0}{\alpha E_0} \quad \text{et} \quad h = 1 - \frac{H}{H_{sw}^0} \quad (5)$$

$$\sigma \cong H_{sw}^0 \frac{1}{\alpha} \left(\frac{kT}{E_0} \right)^{1/\alpha} \left[\ln \left(\frac{cT}{vh^{\alpha-1}} \right) \right]^{(1-\alpha)/\alpha} \quad (6)$$

Dans les figures I.4.4 et I.4.5, nous avons tracé \bar{H}_{sw} et σ en fonction de la température et de la vitesse de balayage de champ pour $\alpha = 1.5$. On peut voir que \bar{H}_{sw} augmente avec la vitesse de balayage de champ et aux températures plus basses. σ augmente avec la vitesse de balayage de champ et la température. Il est intéressant de remarquer que $\sigma \rightarrow 0$ pour $T \rightarrow 0$.

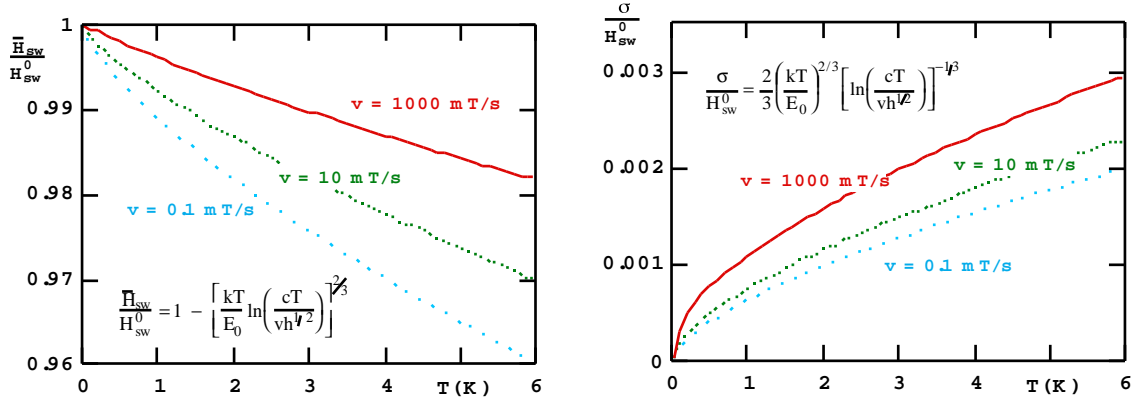


Fig. I.4.4 : Dépendance thermique du champ de retournement moyen et de la largeur de la distribution de champ de retournement calculés à partir des équations (5) et (6).

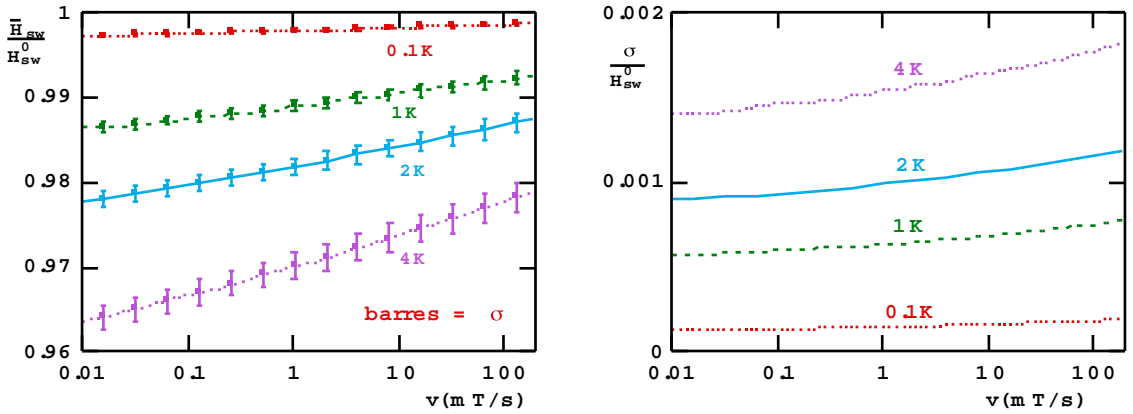


Fig. I.4.5 : Champ de retournement moyen et largeur de la distribution du champ de retournement en fonction de la vitesse de balayage du champ (équations (5) et (6)).

Dans le chapitre III, nous avons ajusté nos mesures à la formule (5). On peut alors tracer \bar{H}_{sw} en fonction de $x = \left[T \ln\left(\frac{cT}{vh^{\alpha-1}}\right)\right]^{1/\alpha}$, ce qui est montré dans la figure I.4.6. Toutes les valeurs de \bar{H}_{sw} (pour différentes températures et vitesses de balayage du champ) se réunissent en une seule droite. L'intersection de cette droite avec l'axe de \bar{H}_{sw} à $x = 0$ ($T = 0$) donne H_{sw}^0 . La pente de cette droite est égale à $-H_{sw}^0 (k/E_0)^{1/\alpha}$. Pour l'ajustement des données, nous avons trois paramètres à ajuster : α , H_{sw}^0 et c . Le paramètre c est à ajuster pour que toutes les valeurs de \bar{H}_{sw} soient sur une courbe, ensuite α est à ajuster pour que cette courbe devienne une droite et H_{sw}^0 est automatiquement donné par l'intersection de la droite avec l'axe de \bar{H}_{sw} à $x = 0$.

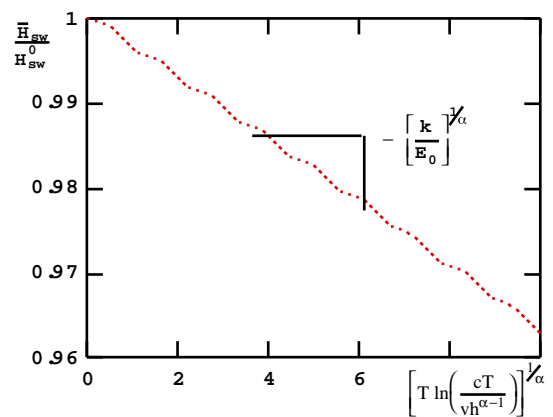


Fig. I.4.6 : Ajustement des valeurs de \bar{H}_{sw} sur l'équation (5).

Remarques :

1. Dans le paragraphe I.3, nous avons montré que α est généralement proche de 1.5. De plus, l'ajustement est peu sensible aux petites variations de α . Donc, pour simplifier le dépouillement des résultats, nous avons décidé de fixer la valeur de α à 1.5. Cette décision est discutée dans le chapitre IV. Les équations (5) et (6) s'écrivent alors :

$$\bar{H}_{sw} \cong H_{sw}^0 \left(1 - \left[\frac{kT}{E_0} \ln \left(\frac{cT}{vh^{1/2}} \right) \right]^{2/3} \right) \quad \text{où} \quad c = \frac{k H_{sw}^0 \Gamma_0}{\alpha E_0} \quad \text{et} \quad h = 1 - \frac{H}{H_{sw}^0} \quad (5')$$

$$\sigma \cong H_{sw}^0 \frac{1}{\alpha} \left(\frac{kT}{E_0} \right)^{2/3} \left[\ln \left(\frac{cT}{vh^{1/2}} \right) \right]^{1/3} \quad (6')$$

2. Il existe une méthode itérative pour calculer la distribution du champ de retournement (1) donnée par :

$$P(H) = \frac{\Gamma(H)}{v} \left[1 - \int_0^H P(H') dH' \right]$$

où $\frac{\Gamma(H)}{v}$ est la probabilité de retournement de l'aimantation pour un certain champ et $\left[1 - \int_0^H P(H') dH' \right]$ est la probabilité que l'aimantation de la particule n'ait pas encore basculé. Pour le calcul, on devine une distribution $\tilde{P}_0(H) = \tilde{P}_1(H)$ et on calcule itérativement les corrections par :

$$\tilde{P}_{i+1}(H) = \frac{\Gamma(H)}{v} \left[1 - \int_0^H \tilde{P}_i(H') dH' \right]$$

3. En utilisant les équations (5) et (6), on trouve :

$$\frac{H_{sw}^0 - \bar{H}_{sw}}{\sigma} \cong \alpha \ln \left(\frac{cT}{vh^{\alpha-1}} \right) \quad \frac{d\bar{H}_{sw}}{\sigma dT} = -\frac{1}{T} \left(1 + \ln \left(\frac{cT}{vh^{\alpha-1}} \right) \right)$$

$$\sigma = T \left(-\frac{d\bar{H}_{sw}}{dT} \right) - \frac{H_{sw}^0 - \bar{H}_{sw}}{\alpha}, \quad \alpha \neq 1 \quad (7)$$

L'équation (7) est utile pour calculer rapidement un ordre de grandeur de σ .

I.5 Effet quantique macroscopique dans les systèmes magnétiques

Un des grands intérêts des études de l'aimantation de petites particules est d'examiner l'existence d'un effet quantique macroscopique dans de tels systèmes magnétiques.

Le phénomène fondamental d'effet tunnel macroscopique étudié par Leggett [Leggett 1987] a été mis en évidence dans des jonctions Josephson [Clarke 1988]. Dans un système magnétique, l'orientation de l'aimantation ne peut tourner qu'en traversant une barrière d'anisotropie. A très basse température, lorsque l'activation thermique diminue, l'effet tunnel macroscopique sera l'effet prépondérant permettant la traversée de cette barrière [Chudnovsky 1988] (voir figures I.5.1). La hauteur de la barrière dépend de la structure microscopique de l'aimantation, et un champ magnétique permet de modifier les énergies relatives des différents puits correspondants aux états stables du système.

La mise en évidence de cet effet peut se faire, par exemple, par des mesures de relaxation de l'aimantation, préalablement saturée en sens inverse, dans un champ appliqué voisin du champ coercitif, en fonction de la température. Au dessus d'une température caractéristique T_c , la relaxation suit une loi d'activation thermique. Aux températures inférieures, elle est dominée par l'effet tunnel et son taux devient constant [Stamp 1992].

La plupart des études connues portent sur des échantillons macroscopiques constitués soit d'un ensemble de grains magnétiques noyés dans un support non magnétique [Paulsen 1991], soit de couches minces magnétiques, soit de monocristaux. On étudie alors la relaxation de l'aimantation en fonction de la température et du champ appliqué. Awschalom *et al.* [Awschalom 1992] ont publié des mesures de susceptibilité, en fonction de la fréquence, d'une suspension de molécules organiques dont chacune contient 4500 spins couplés antiferromagnétiquement. A basse température, ils ont observé certaines résonances qui pourraient être attribuées à la cohérence entre deux états magnétiques. A l'heure actuelle, ces mesures sont encore contestées.

L'interprétation des résultats obtenus est difficile car la transition entre une activation thermique et un effet tunnel doit être bien contrôlée. Tous les paramètres du comportement haute température doivent être compatibles avec les résultats dans l'état supposé quantique. Cette condition demande une

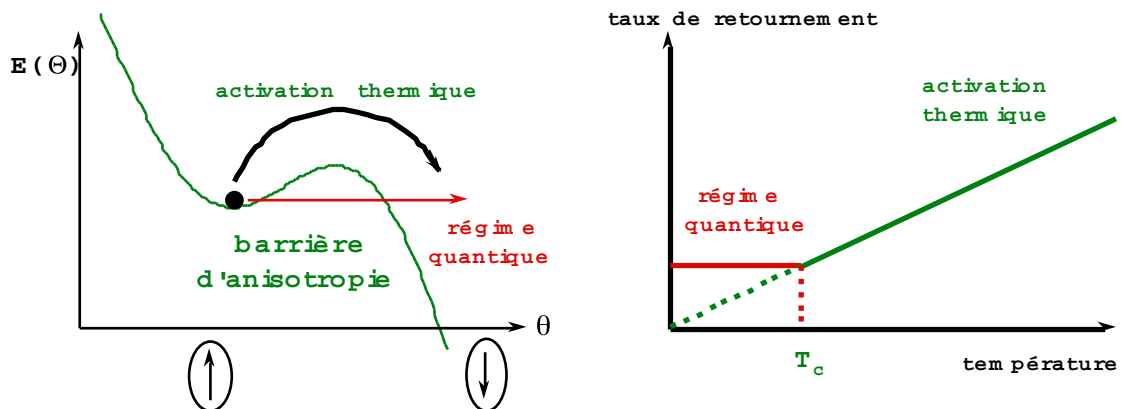


Fig. I.5.1 : Schéma de l'énergie potentielle d'une particule mono-domaine soumise à un champ magnétique appliqué dans le sens inverse de l'aimantation. Le retournement de l'aimantation est activé thermiquement à haute température et pourrait se produire par effet tunnel à basse température. Le retournement de l'aimantation par effet tunnel s'exprime par le fait que le taux de retournement devient indépendant de la température.

connaissance exacte du comportement du système dans le régime classique, qui n'est obtenue que par des mesures à hautes températures ou par simulation numérique. L'étude de l'effet tunnel magnétique dans des systèmes de grande taille est compliquée par l'interaction entre particules, la distribution de taille des particules et par la présence d'un grand nombre d'excitations de basses énergies (par exemple : ondes de spins, retournements de domaines, déplacements de parois). Enfin, une assemblée de particules identiques ne permet d'obtenir qu'une moyenne temporelle.

Il apparaît donc qu'une mesure sur un échantillon nanométrique qui serait mono-domaine simplifierait considérablement l'interprétation de ces effets.

a) Effet tunnel macroscopique de l'aimantation d'une particule magnétique du type Stoner-Wohlfarth

Le calcul de la probabilité de retournement par effet tunnel pour une particule de type Stoner Wohlfarth a été présenté par Miguel et Chudnovsky [Miguel 1995]. Un tel système possède une anisotropie uniaxiale due à la forme de la particule ou bien d'origine cristalline. Le taux de passage de la barrière est donné par $\Gamma = A e^{-B}$ où :

$$B = \frac{16 \cdot 6^{1/4}}{5} S h^{5/4} |\cot \varphi|^{1/6} \quad \approx 91^\circ < \varphi < 180^\circ$$

$$A = \left(\frac{15}{2\pi} \right)^{1/2} B^{1/2} \omega_0$$

$$\omega_0 = \left(\frac{3}{8} \right)^{1/4} h^{1/4} \frac{\sin^{1/2} \varphi |\cos \varphi|^{1/6}}{\sin^{2/3} \varphi + \cos^{2/3} \varphi} \omega_a$$

$$T_c \approx \frac{5}{18} \frac{\hbar \omega_0}{k_B} \hbar \omega_0 \approx \frac{0.15}{k_B} h^{1/4} \frac{\sin^{1/2} \varphi |\cos \varphi|^{1/6}}{\sin^{2/3} \varphi + \cos^{2/3} \varphi} \mu_0 H_a$$

φ est l'angle entre le long axe de la particule et la direction du champ appliqué, $h = (1 - H/H_0(\varphi))$ est le champ réduit, $H_0(\varphi)$ est le champ de retournement comme prédit de Stoner-Wohlfarth (cf. I.1 (7)),

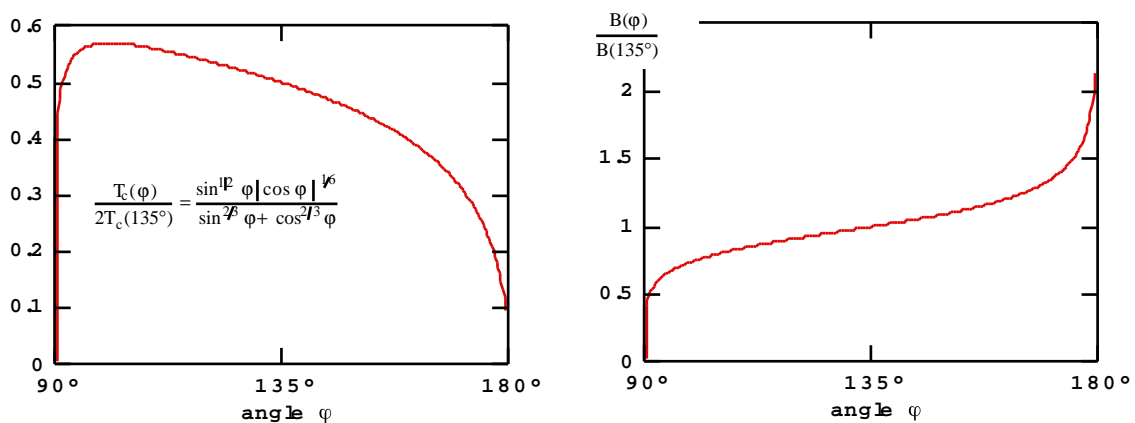


Fig. I.5.2 : Dépendance angulaire de la température T_c de changement du régime classique en régime quantique et de l'exposant B du taux de passage de la barrière ($\Gamma = A e^{-B}$).

$S = M/\hbar\gamma$ est le spin total de la particule, $\omega_a = \gamma H_a$, $H_a = 2KM$ et T_c est la température de changement du régime classique en régime quantique. Les figures I.5.2 montrent T_c et B en fonction de l'angle du champ appliqué. Ces résultats montrent que T_c est plus faible pour les petits angles du champ. Dans le cas de $\varphi = 180^\circ$, l'effet tunnel ne devrait pas être observé. Ceci vient du fait que le chemin n'est pas unique pour le retournement de l'aimantation [Stamp 1992]. Pour $\varphi = 90^\circ$, T_c est faible mais non nulle.

Application numérique :

Pour $H_a = 1T$, $h = 10^{-2}$, $\varphi = 135^\circ$, on trouve $T_c \approx 30$ mK.

b) Effet tunnel macroscopique de l'aimantation d'une particule magnétique avec une anisotropie perpendiculaire forte

Nous avons vu au paragraphe précédent que la probabilité de passer par effet tunnel pour une particule du type Stoner-Wohlfarth est très faible pour un champ aligné avec l'axe d'anisotropie. Ceci n'est plus le cas si la particule possède une forte anisotropie transverse qui brise la symétrie cylindrique autour de l'axe de facile aimantation. Dans ce cas, le retournement se produit dans le plan qui est normal à la forte anisotropie transverse. Un exemple est constitué par une particule elliptique plate. Le taux de transition par effet tunnel et la température de changement de régime sont donnés par [Chudnovsky 1988] :

$$\Gamma = \Gamma_0 e^{-B} \quad \text{avec} \quad B = \frac{8M_S}{3\mu_B} \frac{K_{||}}{K_{\perp}} h^{3/2}$$

$$T_c = 3\mu_B \sqrt{K_{||}K_{\perp}} \frac{\sqrt{h}}{8k_B M_S}$$

Ici, $K_{||}$ et K_{\perp} sont les constantes d'anisotropie généralisée respectivement parallèle et perpendiculaire à l'axe de facile aimantation de la particule.

Application numérique :

Pour un ellipsoïde $\mu_0 M_S (N_b - N_a) = K_{||}/M_S = 0.1$ T, $\mu_0 M_S N_c = K_{\perp}/M_S = 0.5$ T, $h = 10^{-2}$, on trouve $T_c \approx 20$ mK.

c) Conclusion

En ce qui concerne l'existence d'un effet quantique, les applications numériques dérivant des modèles présentés montrent que cet effet ne serait éventuellement possible qu'à très basse température (inférieures à 20 mK).

Après la présentation théorique des différents modes de retournement de l'aimantation et de la barrière d'énergie à franchir pour effectuer ce retournement, le chapitre suivant concerne notre technique de mesure : le SQUID-DC.

Chapitre II : Méthodes expérimentales

Nous avons mesuré l'aimantation de nos échantillons à l'aide de la technique de mesure des SQUID continus hystérétiques en aluminium et niobium avec des jonctions à microponts. Ces SQUID sont élaborés par lithographie électronique par Dominique Mailly au LMM à Bagnex. Le grand avantage de ce type de SQUID est que sa fabrication ne nécessite qu'une seule opération de lithographie. Nous avons adapté un système électronique développé au CRTBT, permettant des mesures avec une grande résolution sur des SQUID présentant de l'hystérésis.

Dans ce deuxième chapitre, nous présentons nos méthodes expérimentales. Après avoir rappelé les principes des SQUID continus hystérétiques, nous expliquons les différentes techniques qui nous ont permis de mesurer effectivement l'aimantation. Nous expliquons ainsi comment se fait la mesure directe du courant critique et en quoi consiste la méthode de compensation.

Différents problèmes, tels que le réchauffement des échantillons, ont été pris en compte par le couplage de la particule avec le SQUID à travers un transformateur de flux. Nous avons par la suite mis au point une méthode pour détecter le retournement de l'aimantation, méthode originale et très rapide sans influence sur ce retournement. En ce qui concerne l'influence de notre technique de mesure, elle a été étudiée par l'adjonction d'un SQUID juxtaposé mesurant le champ magnétique plus lointain.

Pour prévoir le signal mesurable par la technique des SQUID, nous avons calculé le flux magnétique induit par la particule et traversant la boucle du SQUID. En ce qui concerne la sensibilité de cette technique de mesure nous nous sommes tout d'abord intéressés à sa limite théorique, puis nous avons répertorié les différents effets la diminuant et les corrections nécessaires.

Il est important de mentionner que la connaissance du flux qui traverse la boucle du SQUID ne permet pas de remonter de manière univoque à la distribution d'aimantation dans la particule. Cependant, toute variation brutale du flux correspond nécessairement à une transition rapide de la distribution d'aimantation. Comme l'objectif expérimental principal de ce travail consiste à étudier le mécanisme déclenchant le retournement de l'aimantation, la méthode expérimentale est très bien adaptée.

Nous expliquons aussi la méthode de lithographie électronique qui nous a permis de graver des structures jusqu'à 30 nm.

Enfin nous expliquons la manière dont nous avons obtenu des très basses températures et nous décrivons les expériences proprement dites (montage de l'échantillon, connexion des SQUID...).

II.1 Principe du SQUID

Le SQUID est l'acronyme pour Superconducting QUantum Interference Device. Ce dispositif consiste en un anneau supraconducteur interrompu par une ou deux jonctions Josephson. Il permet la mesure du flux magnétique pénétrant dans l'anneau par son effet sur les interférences quantiques. Nous présentons ici le SQUID à 2 jonctions, appelé aussi SQUID D.C. car il peut être mesuré en courant continu. C'est le type de SQUID que nous avons utilisé car c'est celui qui présente les meilleures performances [Van Duzer].

a) Courant dans un supraconducteur

Dans un supraconducteur les électrons s'apparient et les paires peuvent être représentées par une fonction d'onde d'amplitude Ψ_0 et de phase φ : $\Psi(\mathbf{r}) = \Psi_0 e^{i\varphi}$.

L'action du champ magnétique sur ces paires d'électrons s'exprime par le potentiel vecteur \mathbf{A} qui modifie leur phase. Le courant est alors lié au gradient de la phase par la formule :

$$I = \frac{h}{m} \left(\nabla\varphi - \frac{2e\mathbf{A}}{h} \right) \Psi_0^2 \quad (1)$$

b) Effet Josephson

Prenons deux supraconducteurs séparés par une barrière isolante suffisamment mince pour que des paires supraconductrices puissent passer au travers par effet tunnel. Josephson a montré qu'il était possible de faire circuler un courant à travers la barrière sans différence de tension à ses bornes [Josephson 1962]. Ce courant est directement relié à la différence de phase entre les deux supraconducteurs par la formule :

$$I = I_0 \sin(\varphi_2 - \varphi_1) \quad (2)$$

où I_0 est un courant caractéristique de la transparence de la jonction. Par contre, en appliquant une différence de potentiel continue V_0 aux bornes de la jonction, on induit un courant alternatif de fréquence $2eV_0/h$.

En réalité, il suffit d'un affaiblissement local de la supraconductivité pour créer une jonction Josephson qui peut être réalisée de différentes manières : par une jonction tunnel, une jonction à micropont, ou une jonction de pointe.

L'effet Josephson dans les jonctions à microponts a été suggéré par Dayem en 1964 [Hansma 1971]. Ce type de jonction consiste à connecter deux supraconducteurs par une connexion plus étroite, que l'on appelle micropont ou pont de Dayem. Pour observer l'effet Josephson dans cette jonction, il faut que les dimensions du micropont soient plus petites que la longueur de cohérence du matériau utilisé [Weissbord 1973].

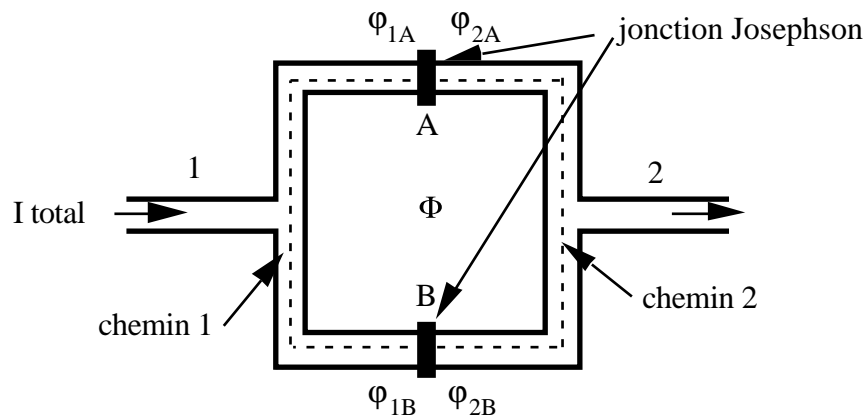


Fig. II.1.1 : Schéma représentant un SQUID continu.

c) Interféromètre

Considérons maintenant la boucle avec deux jonctions Josephson identiques (voir figure II.1.1). Dans un supraconducteur massif, le courant ne circule qu'à la surface. Il existe donc un chemin à l'intérieur du supraconducteur où le courant est nul et la variation de phase donnée par l'équation (1) s'écrit alors :

$$\nabla\varphi = \frac{2e\mathbf{A}}{h}$$

La phase doit être conservée sur un tour de l'anneau (modulo 2π). La variation de phase sur les deux jonctions est alors égale à l'intégrale du potentiel vecteur sur le tour de l'anneau, qui n'est autre que le flux pénétrant le SQUID exprimé en fonction du quantum de flux $\Phi_0 = h/2e$:

$$(\varphi_{2A} - \varphi_{1A}) + (\varphi_{1B} - \varphi_{2B}) = \frac{2e}{h} \int \mathbf{A} \cdot d\mathbf{l} = \frac{\pi\Phi}{\Phi_0}$$

Le courant total traversant le SQUID est la somme du courant circulant dans les deux jonctions et s'exprime en fonction des différences de phase. En introduisant un paramètre δ qui dépend des différences de phases, on obtient pour un SQUID symétrique et en négligeant l'inductance du SQUID :

$$I_{\text{total}} = I_0 (\sin(\varphi_{2A} - \varphi_{1A}) + \sin(\varphi_{2B} - \varphi_{1B})) = I_0 \cos(\delta) \cos\left(\frac{\pi\Phi}{\Phi_0}\right)$$

On en déduit le courant critique maximum I_c pouvant traverser le SQUID sans différence de potentiel :

$$I_c = I_0 \left| \cos\left(\frac{\pi\Phi}{\Phi_0}\right) \right|$$

La figure II.1.2 montre ce courant critique en fonction du flux pour un SQUID parfait symétrique et pour un SQUID réel en tenant compte de son inductance. Ce courant est périodique en flux avec une période Φ_0 et sa mesure permet de connaître le flux traversant l'anneau avec une résolution bien meilleure que Φ_0 . La très faible valeur de Φ_0 ($\Phi_0 = 2 \cdot 10^{-15}$ Wb) fait du SQUID un détecteur de flux extrêmement sensible.

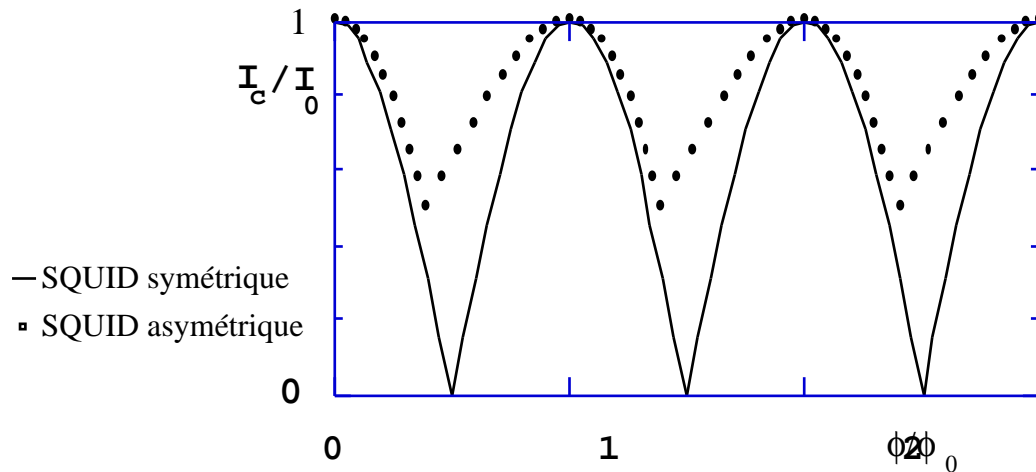


Fig. II.1.2 : Courant critique en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculairement à la boucle du SQUID.

Une hystérésis intervient au cours de l'évolution de la tension aux bornes du SQUID. Dès que le SQUID est passé d'un état supraconducteur à un état ohmique, le courant chauffe le SQUID (effet Joule) et il ne peut redevenir supraconducteur que si le courant est beaucoup plus faible que le courant critique. La figure II.1.3 montre les variations de cette tension en fonction du courant envoyé dans le SQUID. Le segment (AB) correspond à la tension existant dans les fils de connexion uniquement (mesure en 2 fils), car le SQUID est alors supraconducteur, donc non résistif. Le segment (BC) correspond à la transition supraconducteur - état normal : le courant est alors égal au courant critique I_c . De C à D, le SQUID est résistif. La pente correspond à la résistance des fils et du SQUID. Le SQUID reste ensuite dans l'état normal et ne redevient supraconducteur que vers une valeur du courant $I_{c \text{ min}}$ proche de 0.

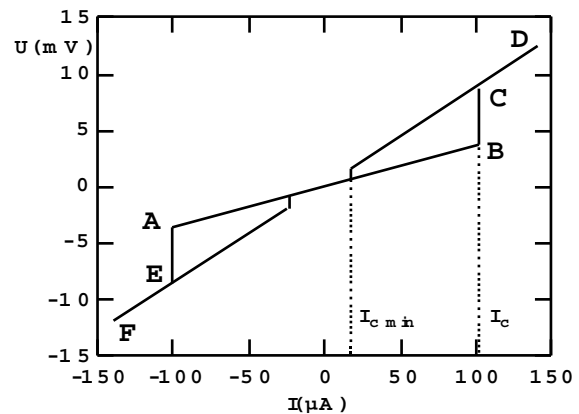


Fig. II.1.3 : Tension aux bornes du SQUID DC hystérique en fonction du courant envoyé dans le SQUID.

II.2 Mesure de l'aimantation avec un SQUID hystérétique

Le courant critique dans le SQUID étant fonction du flux magnétique traversant la boucle du SQUID, il suffit alors de mesurer ce courant critique pour pouvoir remonter à la valeur du flux, donc de l'aimantation. Nous avons développé plusieurs méthodes de mesure que nous explicitons dans ce qui suit.

II.2.1 Mesure directe du courant critique [El Khatib 1991]

Pour les petites variations du flux magnétique (inférieures à $\Phi_0/2$), le courant critique varie linéairement avec le flux. On peut donc facilement remonter à la valeur du flux. Pour obtenir une bonne sensibilité, on mesure rapidement le courant critique.

a) Fonctionnement

Les jonctions Josephson dans les SQUID utilisés ont un comportement hystérétique. La tension V aux bornes de la jonction est nulle pour un courant inférieur à I_c . La jonction transite au courant critique I_c . Si l'on diminue le courant dans la jonction, elle revient à l'état supraconducteur pour un courant $I_{c\min}$ plus petit que I_c . Pour mesurer le courant critique du SQUID, il faut balayer le cycle d'hystérésis comme indiqué sur la figure II.2.1 (cycle BCDEF). La sensibilité de la mesure est donnée par la précision de la détermination du courant critique. Le moment important de ce cycle est donc la zone comprise entre les points C et D. Pour obtenir une bonne sensibilité, il est important de faire un recyclage rapide des mesures. De plus, il est aussi important de remarquer que le système dissipe de l'énergie uniquement sur la branche EF et qu'il est donc indispensable de la parcourir très rapidement.

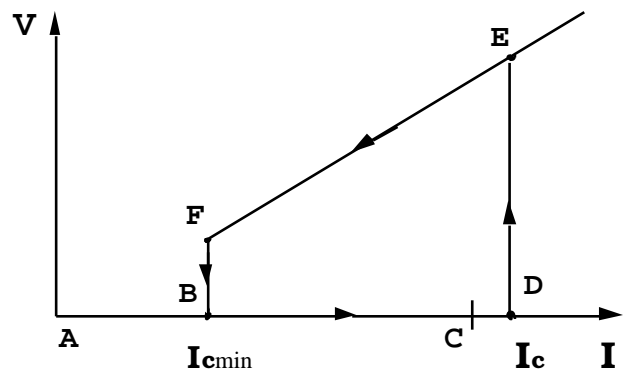


Fig. II.2.1 : Caractéristique V-I d'une jonction Josephson hystérétique ou d'un SQUID.

Ces différentes raisons nous ont conduit à choisir une variation du courant donnée par la figure II.2.2. En partant du point A ($I = 0$), le courant est porté très rapidement à la valeur $I_c - \epsilon$ (point C). On envoie ensuite une rampe linéaire jusqu'à atteindre le point D où la tension sur le SQUID passe rapidement de zéro à une valeur finie. Dès que l'on détecte une tension, le courant est porté à zéro pour minimiser la dissipation de l'énergie. La mesure du courant critique se ramène alors à une mesure du temps t_1 (la fréquence du compteur était de 100 MHz). Connaissant la pente de la rampe et le point de départ, nous pouvons facilement calculer le courant critique.

La figure II.2.3 présente la distribution du courant critique pour 60000 mesures. La largeur de cet histogramme est de l'ordre de $10^{-3}\Phi_0$.

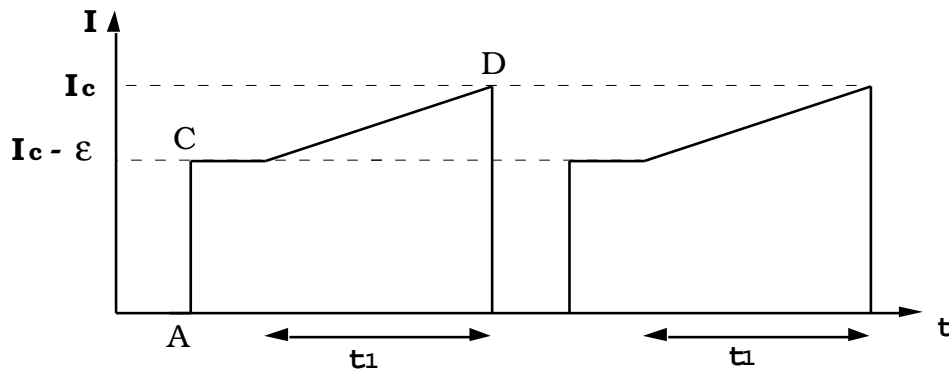


Fig. II.2.2 : Variation du courant pour la mesure du courant critique.

b) Discussion

Pour une mesure de l'aimantation, on fait la moyenne de N mesures du courant critique. La précision de chaque mesure augmente avec \sqrt{N} . D'autre part, plus N est grand plus le temps d'acquisition est long. C'est pour cette raison que la sensibilité dépend de la vitesse de mesure de I_c . Il y a plusieurs causes qui limitent cette vitesse :

1. l'augmentation du courant d'une manière contrôlée pour avoir une bonne précision de la mesure de I_c (actuellement la longueur de la rampe de courant est d'environ $100 \mu\text{s}$) ;
2. après la transition, la remise à zéro du courant nécessite un certain temps (actuellement 100 ns) ;
3. après la mesure de I_c , le SQUID se refroidit pendant un certain temps (actuellement $1 \mu\text{s}$ pour un SQUID bien thermalisé) ;
4. l'acquisition des données (actuellement pendant la rampe de courant).

La vitesse des mesures est donc limitée essentiellement par la durée de la rampe de courant. Avec le système de mesures utilisé pour ce travail, nous avons pu mesurer I_c à une fréquence maximale de 10 kHz , i.e. 10000 mesures par seconde ce qui permet une résolution de la mesure d'environ $10^{-5} \Phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$. Avec une nouvelle électronique, nous espérons augmenter la vitesse d'acquisition d'un ordre de grandeur.

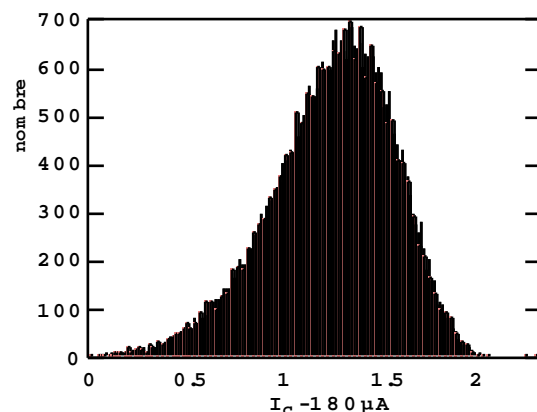


Fig. II.2.3 : Histogramme de 60000 mesures du courant critique pour un SQUID en Al.

II.2.2 Méthode de compensation ou contre-réaction

Pour les signaux supérieurs à $\Phi_o/2$ la mesure directe du courant critique devient compliquée. Il est alors très commode de choisir la méthode de compensation qui fonctionne sur l'idée de compenser le champ créé par la particule, et traversant le SQUID, à l'aide d'un champ qui annule toutes ses variations. Le champ créé par la particule est alors proportionnel au champ de compensation. On fait un étalonnage de cette compensation par la mesure du courant critique en fonction du champ créé par la bobine de compensation. On peut alors exprimer ce champ par unité de Φ_o .

a) Fonctionnement

Pour garantir un bon fonctionnement de la compensation, il faut choisir un point de travail sur la courbe de variation du courant critique en fonction du flux. Avec le champ de contre-réaction, on compense les variations d'aimantation de l'échantillon afin que le fonctionnement du SQUID reste toujours sur ce point. Pour ceci, l'ordinateur calcule après chaque mesure du courant critique la différence entre le point de travail et la mesure, puis multiplie le résultat par un gain et l'additionne sur une certaine variable qui est l'adresse du convertisseur digital - analogique commandant l'alimentation du champ de compensation.

Les figures II.2.4 (a - c) montrent trois possibilités de choix du point de travail. Dans la figure (a) le point de travail est choisi au milieu du maximum et du minimum du courant critique, ce qui permet de compenser des variations spontanées jusqu'à $\Phi_o/2$ (domaines x_1 et x_2). En général, nous choisissons ce point de travail. Dans des cas particuliers, on peut privilégier une direction de variation du champ. Pour le choix indiqué dans les figures (b) et (c), le fonctionnement de la compensation est encore bon jusqu'à un saut d'aimantation de $3/4\Phi_o$, mais seulement pour une augmentation (domaine x_2 figure (b)) ou une diminution (domaine x_1 figure (c)) du champ créé par la particule.

Une autre variable importante de la méthode de la compensation est le gain par lequel on multiplie la différence entre le point de travail et la mesure. Pour un gain assez grand, le réglage

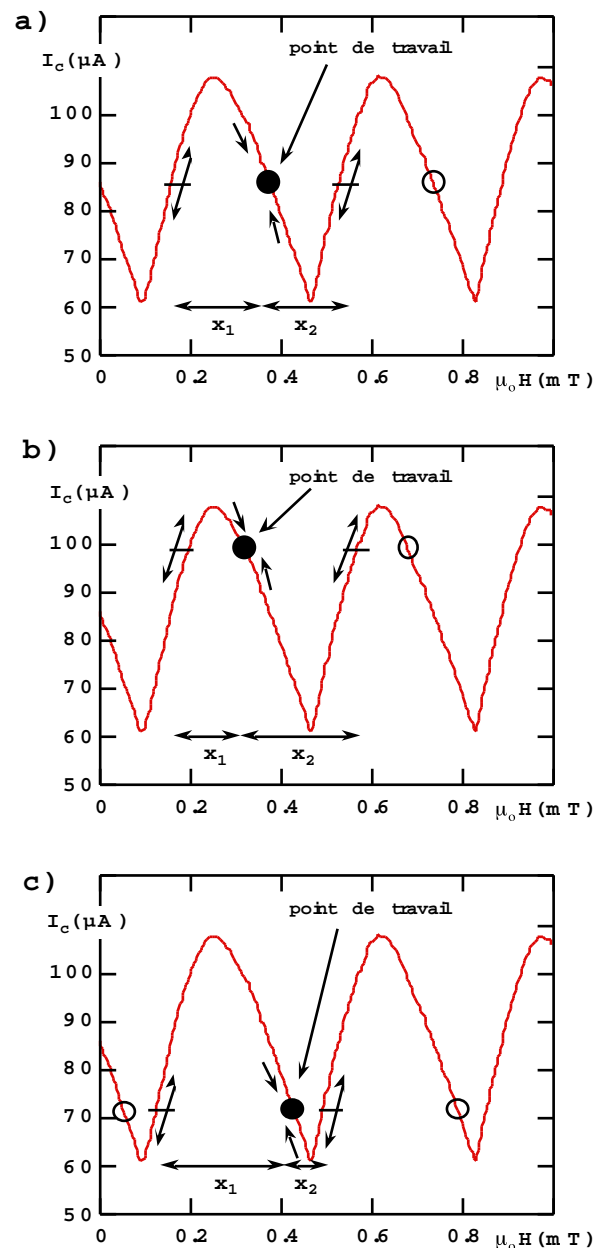


Fig. II.2.4 (a) : Point de travail situé au milieu du maximum et du minimum du courant critique. (b), (c) : Point de travail pour de grandes variations qui augmentent (b) ou diminuent (c) le champ.

de la compensation est immédiat, mais un tel gain ajoute une correction trop grande et entraîne une oscillation de la valeur du champ autour du point de travail. Par contre, pour un gain faible, la régulation prend du retard, ce qui est équivalent à une atténuation des variations du champ.

b) Discussion

La plupart des nos cycles d'hystérésis ont été mesurés par la méthode de la compensation. Elle est facile à ajuster et étalonner. Cette méthode fait un filtrage du bruit au premier ordre. L'inconvénient est que la compensation est relativement longue, i.e. les temps de repos sont de l'ordre d'un dixième de seconde. Ceci n'est pas gênant pour la mesure des cycles d'hystérésis (une mesure quasi-statique), mais les mesures de la dynamique de retournement sont limitées à des vitesses de balayage inférieures à 5 mT/s.

Un autre inconvénient est le réchauffement dû aux mesures du courant critique et qui rend impossibles les mesures en fonction de la température.

Finalement, les fluctuations du champ magnétique dues au courant d'alimentation du SQUID ne sont pas complètement négligeables (cf. figure II.2.5). Ce courant d'alimentation a une fréquence de 100 Hz à 10 kHz et son amplitude maximale est égale à la moitié du courant critique du SQUID, i.e. de l'ordre de 2 à 500 μA . On peut approximer la boucle du SQUID par un fil rectiligne de section rectangulaire. Le champ magnétique créé par un courant uniforme est donné par les équations du paragraphe II.3.3e. Les composantes B_x et B_y sont représentées en fonction de la position dans la figure II.2.6. Les valeurs maximales proches de la surface du fil sont de l'ordre de 0.2 mT pour un courant de 100 μA , ce qui représente une réelle influence sur la particule et pourrait induire des modifications de sa structure en domaines. Pour éviter ce problème, nous mesurons l'aimantation avec un courant constant. Cette solution, et d'autres, sont discutées par la suite.

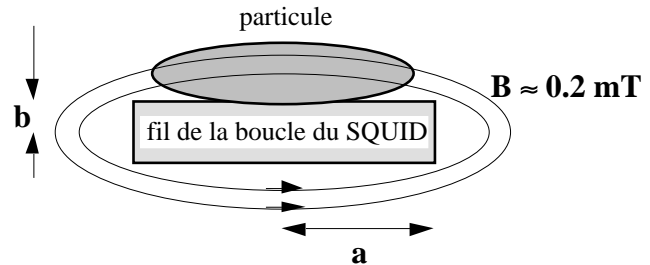


Fig. II.2.5 : Pénétration dans la particule du champ magnétique dû au courant qui parcourt la boucle du SQUID, $I = 100 \mu\text{A}$.

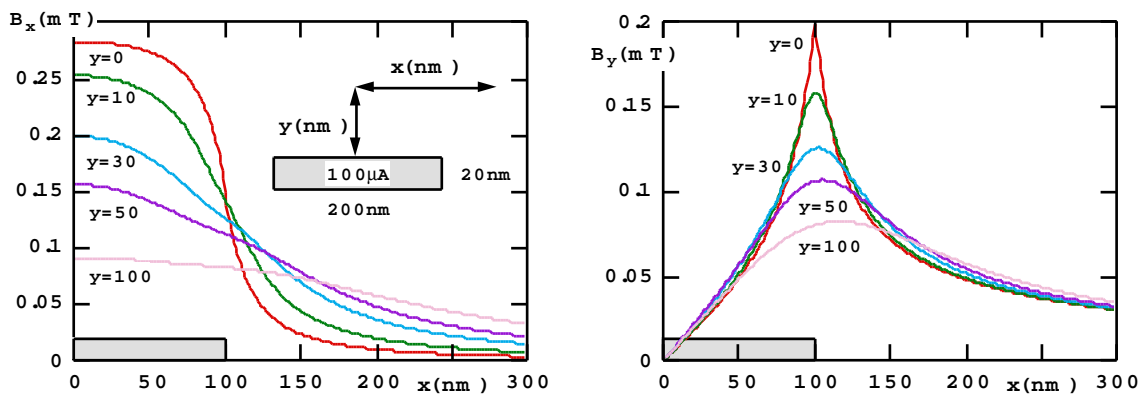


Fig. II.2.6 : Champ magnétique autour d'un fil rectiligne de section rectangulaire, $a = 100 \text{ nm}$, $b = 10 \text{ nm}$. Le fil est parcouru par un courant de 100 μA .

II.2.3 Couplage de la particule avec le SQUID à travers un transformateur de flux

Afin d'éviter un réchauffement de la particule dû à la mesure du courant critique du SQUID, nous avons élaboré un dispositif où la particule est couplée à travers un transformateur avec le SQUID. La figure II.2.7 montre le schéma du dispositif.

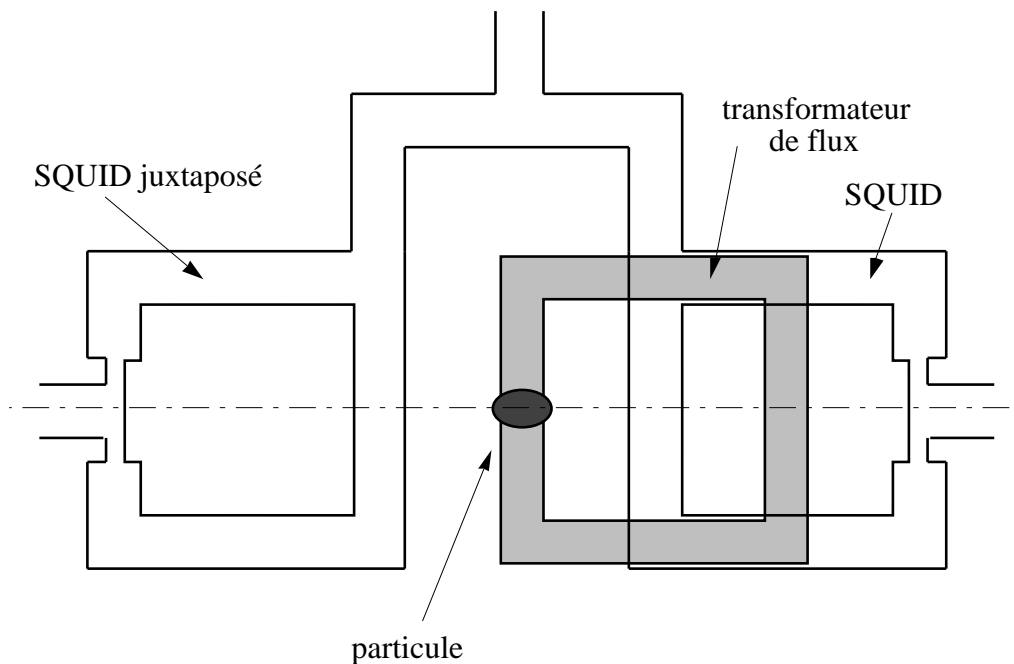


Fig. II.2.7 : Schéma du SQUID couplé à un transformateur.

a) Fonctionnement

Le flux à travers une boucle supraconductrice est quantifié, i.e. c'est un nombre entier du quantum de flux Φ_0 . Si l'on applique un champ magnétique perpendiculaire à la boucle supraconductrice (à l'aide d'une bobine ou d'une particule magnétique), la boucle crée un courant d'écran induisant un champ magnétique qui compense le champ magnétique appliqué. Si le courant d'écran dépasse le courant critique de la boucle, le champ magnétique pénètre dans la boucle à un nombre entier du quantum de flux Φ_0 près. On parle de sauts du flux.

Dans notre cas, la particule magnétique est couplée à une boucle supraconductrice (transformateur) i.e. la partie de son champ magnétique traversant la boucle provoque un courant d'écran. L'idée est maintenant de mesurer le champ magnétique dû au courant d'écran par un SQUID. Le couplage entre le transformateur et le SQUID est dans une première approximation proportionnel à l'aire d'intersection entre le SQUID et le transformateur. Par exemple, si la boucle a la même surface que le SQUID et est placée directement sur le SQUID (aire d'intersection = surface de la boucle et du SQUID), le couplage est égal à un (dans le cas idéal). Mais, dans ce cas, la boucle de SQUID est complètement écrantée i.e. il n'est pas possible de choisir un point de fonctionnement du SQUID. C'est pour cela que nous avons choisi des coefficients d'intersection (= intersection/surface) de 0.57, 0.72, 0.80.

Pour être très proche du couplage idéal, il faut minimiser la distance entre le transformateur et le SQUID. Pour cette raison, nous avons choisi d'utiliser l'oxydation naturelle de surface de l'aluminium ($\approx 2 - 3$ nm). Par conséquent, un autre phénomène apparaît : à chaque mesure du courant critique du SQUID, le transformateur est chauffé localement à l'interface transformateur - SQUID. Ceci provoque des sauts de flux, i.e. le courant d'écran ne peut pas dépasser une valeur correspondant à un flux de $\Phi_0/2$.

b) Elaboration

Nous avons réalisé deux plaquettes (avec et sans couche de résine entre le SQUID et le transformateur) possédant environ 50 dispositifs sur chaque plaquette. La couche magnétique utilisée était de 30 nm de CoZrMoNi. Tout d'abord, nous avons gravé les particules à partir de la couche magnétique (paragraphe II.5). Après, nous avons évaporé, d'abord des anneaux (transformateurs) en aluminium sur chaque particule et ensuite, des SQUID en aluminium sur chaque transformateur. L'isolation électrique entre le SQUID et le transformateur a été faite soit par la couche d'oxyde du transformateur, soit par une couche supplémentaire de résine d'environ 100 nm d'épaisseur. La figure II.2.8 montre un exemple d'une telle réalisation.

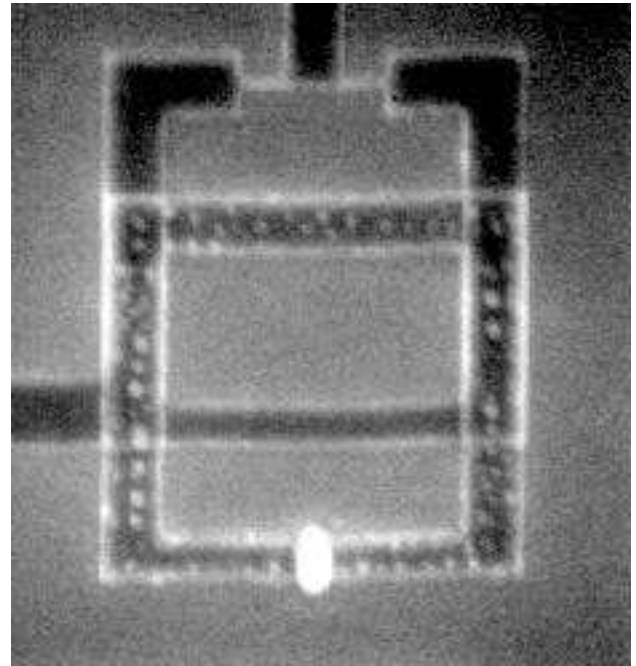


Fig. II.2.8 : La photo montre un SQUID ($2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$) couplé à un transformateur et une particule de CoZrMoNi ($300 \text{ nm} \times 200 \text{ nm} \times 30 \text{ nm}$).

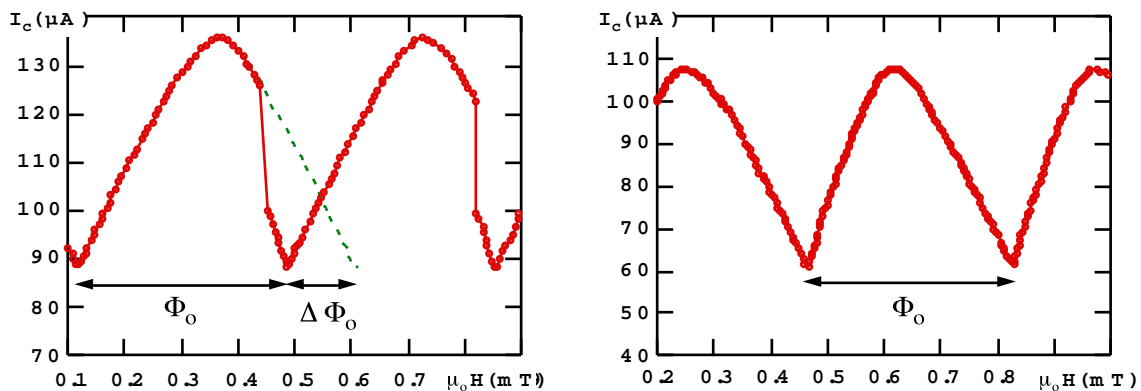


Fig. II.2.9 : Caractéristique d'un SQUID : (à gauche) couplé avec un transformateur et (à droite) sans transformateur (pour le SQUID juxtaposé, voir figure II.2.7).

c) Mesure

La figure II.2.9 montre la caractéristique d'un SQUID avec transformateur et sans transformateur. Son coefficient d'intersection de surface est 0.72. On peut voir l'influence du transformateur : la caractéristique est interrompue par des sauts de flux. Un saut de Φ_0 dans le transformateur induit un signal d'environ $\Delta\Phi_0 = \Phi_0 / 4$, i.e. les signaux capturés par le transformateur sont transmis au SQUID avec une amplitude réduite d'un facteur 0.25. Pour un couplage idéal l'amplitude du signal serait seulement réduite d'un facteur 0.72.

Nous n'avons pas mesuré de signal des particules magnétiques. La raison de cette absence, trouvée quelques mois plus tard, est une oxydation rapide des particules de CoZrMoNi, oxydation due au Zr.

d) Conclusion

Même sans avoir approfondi la méthode de couplage de la particule avec le SQUID à travers un transformateur, nous pouvons quand même dire que cette technique est une bonne méthode pour découpler la particule de la dissipation du SQUID. Les pertes de signal d'un facteur 0.25 sont acceptables et certainement améliorables. Cependant, il y a encore quelques problèmes à résoudre :

1. Ce dispositif est plus sensible à un champ magnétique dans le plan du SQUID-transformateur qu'un SQUID seul. Ceci vient du fait que la surface n'est plus parfaitement plane après le premier niveau de lithographie. Des marches ou autres défauts sont très favorables à l'ancrage des vortex qui induisent des signaux anormaux dans le SQUID et peuvent complètement cacher un signal magnétique.

2. La couche séparatrice supplémentaire de résine entre le SQUID et le transformateur a introduit un phénomène non expliqué. Le courant critique était plus faible pour les champs inférieurs à 10 mT que pour les champs $10 \text{ mT} < B < 60 \text{ mT}$. Dans la figure II.2.10, nous avons tracé le courant critique minimal et maximal d'un tel SQUID pour montrer ce phénomène. Il est possible qu'il s'agisse d'un effet de proximité entre deux supraconducteurs (le champ critique du matériau massif en aluminium est de 8 mT).

3. A cause de la couche séparatrice isolante, les SQUID étaient moins bien thermalisés. Par conséquent, un délai supplémentaire était nécessaire pour que le SQUID refroidisse après une mesure du courant critique. Ceci a en fait diminué la sensibilité du SQUID.

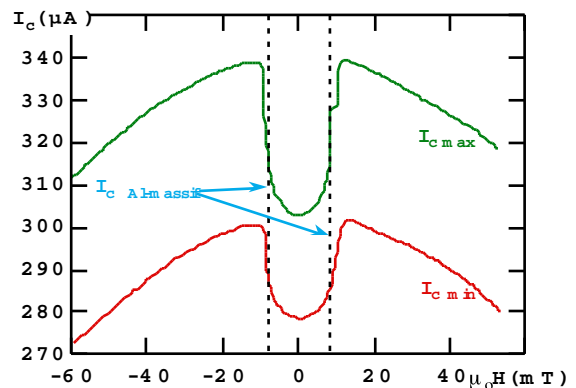


Fig. II.2.10 : Courants minimal et maximal pour un SQUID séparé du transformateur par une couche de résine.

II.2.4 Méthode pour détecter rapidement le retournement de l'aimantation

Pour mesurer le courant critique de la boucle du SQUID, on augmente le courant traversant la boucle jusqu'à une valeur où le SQUID passe de l'état supraconducteur à l'état normal. A ce moment, on ramène le courant à zéro, ce qui dure 100 ns. Le SQUID dissipe de la chaleur pendant ces 100 ns. Ainsi, chaque mesure du courant critique est accompagnée d'une dissipation de chaleur, i.e. d'un réchauffement de la particule. Pour éviter ce réchauffement, nous avons mis au point une méthode originale qui détecte rapidement le retournement de l'aimantation.

a) Fonctionnement

Le SQUID est polarisé avec un courant légèrement au-dessous du courant critique. Le champ appliqué perpendiculairement au plan du SQUID est fixé tel que le point de fonctionnement soit aux points A ou B de la figure II.2.11 respectivement, pour des sauts d'aimantation positif ou négatif. Le saut d'aimantation de la particule provoque un changement du flux $+\Delta\Phi$ ou $-\Delta\Phi$ tel que le courant critique est plus faible qu'auparavant et que le SQUID passe de l'état supraconducteur à l'état normal. C'est le changement de tension aux bornes du SQUID qui signale le saut d'aimantation de la particule.

b) Discussion

Nous avons essayé de tester cette méthode pour savoir si la distribution du courant critique peut avoir une influence sur la distribution du champ de retournement de la particule. Comme on ne peut pas simuler la variation du champ magnétique due au retournement de l'aimantation par un champ magnétique appliqué (le retournement se produit à l'échelle de quelques nanosecondes), nous avons fait des rampes de champ avec une vitesse de balayage constante. Partant d'un point de fonctionnement A (figure II.2.11), nous avons augmenté le champ magnétique, avec une vitesse de balayage du champ constante, jusqu'au champ H_C pour lequel le SQUID passe de l'état supraconducteur à l'état résistif. Pour chaque vitesse de balayage du champ et pour chaque température nous avons mesuré 1000 fois le champ H_C . A partir des distributions obtenues, nous avons calculé leurs largeurs σ . La

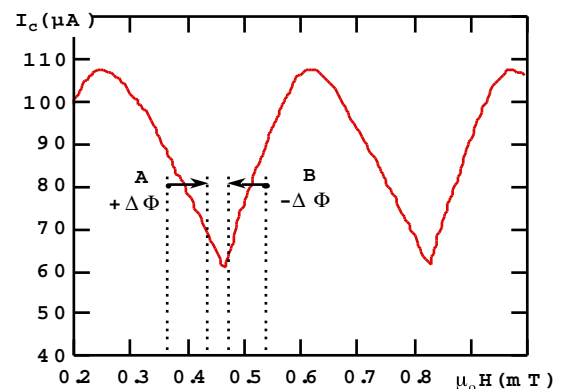


Fig. II.2.11 : Courant critique en fonction du champ magnétique appliqué perpendiculairement à la boucle du SQUID.

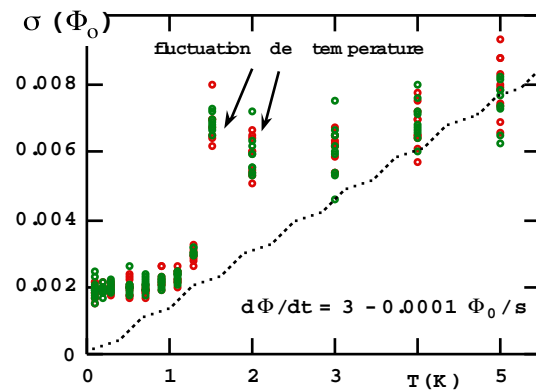


Fig. II.2.12 : Dépendance thermique de la largeur de la distribution σ de H_C pour des vitesses de balayage du champ entre 10^{-4} et $3 \Phi_0/s$. Pour les températures entre 1.5 et 2.5 K, σ est augmenté par des fluctuations de température supplémentaires de quelques mK (fluctuations dues au cryostat).

figure II.2.12 montre ces largeurs en fonction de la température. σ augmente linéairement avec la température pour $T > 1.5$ K et σ est constant pour $T < 1.5$ K. Le fait que σ devienne constant à basse température peut être dû à l'effet tunnel quantique ou à un bruit intrinsèque au SQUID. Pour être sûr que la distribution de H_C n'intervienne pas dans la distribution du champ de retournement, nous n'avons utilisé cette méthode que pour des sauts supérieurs à $\Phi_0/10$. Grâce à cette méthode, nous avons pu détecter le champ de retournement d'une particule magnétique avec une précision inférieure à 0.01 mT (égal à un pas de champ) pour une vitesse de balayage de 200 mT/s (le temps de détection est actuellement de 200 ns).

II.2.5 Dispositif des SQUID juxtaposés

Pour étudier l'influence de notre technique de mesure sur la particule magnétique, nous avons élaboré un dispositif où la particule est plus ou moins bien couplée avec le SQUID. L'un des SQUID est bien couplé avec la particule (i.e. la particule est sur la boucle du SQUID) et l'autre SQUID, moins bien couplé, est juxtaposé. Ce SQUID mesure le champ magnétique lointain.

La figure II.2.13 montre un exemple d'une telle réalisation et les figures II.2.14 montrent les cycles d'hystérésis d'une particule de Co, mesurés par ces SQUID. Les cycles d'hystérésis sont identiques sauf que l'amplitude du SQUID juxtaposé est cent fois plus faible que celle du SQUID bien couplé.

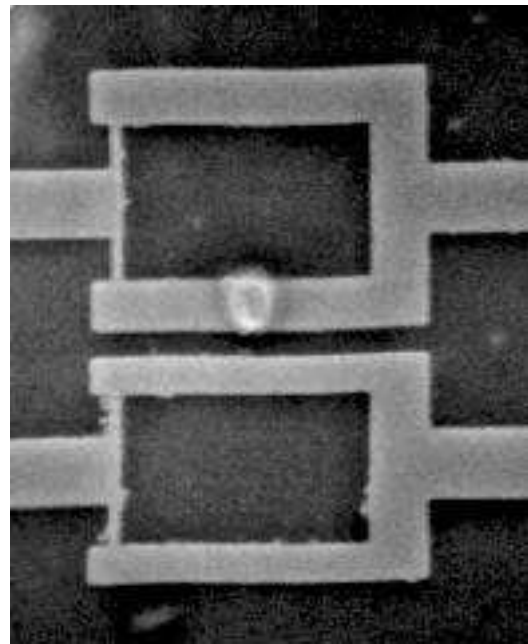


Fig. II.2.13 : La photo montre deux SQUID juxtaposés ($1.3 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$). Il y a une particule de Co ($300 \text{ nm} \times 200 \text{ nm} \times 35 \text{ nm}$) sur la boucle du SQUID au haut.

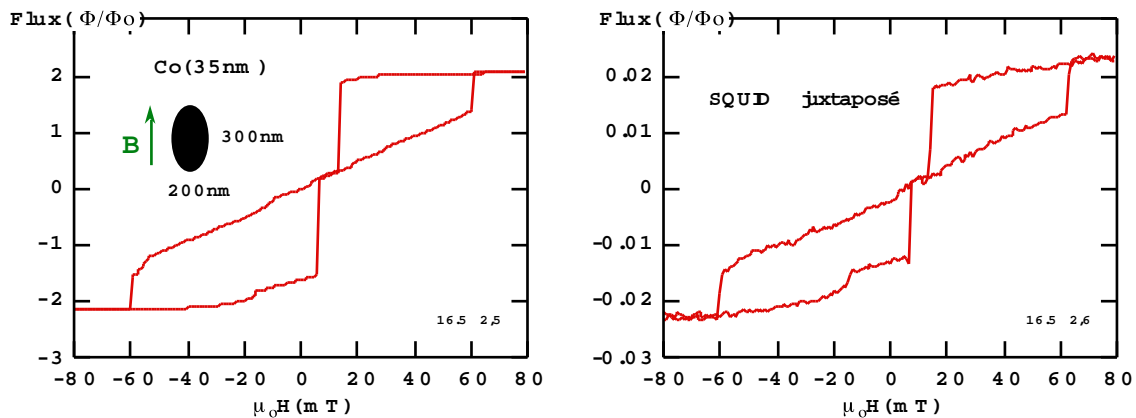


Fig. II.2.14 : Cycles d'hystérésis de la particule de Co montrée dans la photo de la figure II.2.13. Le signal du SQUID juxtaposé est cent fois plus faible que celui du SQUID bien couplé. (16.5 2,5) est le numéro du SQUID (c.f. II.7).

II.2.6 Mesure de deux composantes de l'aimantation

Dans le but de mesurer plusieurs composantes de l'aimantation d'une particule magnétique, nous avons élaboré des dispositifs composés de plusieurs SQUID. Le dispositif le plus grand que nous avons réalisé, est montré dans la figure II.2.15. Il permet de mesurer plusieurs composantes du flux d'une particule déposée au milieu du dispositif. L'électronique du SQUID utilisé au cours de la thèse n'était pas conçue pour mesurer plusieurs SQUID simultanément. Mais avec la nouvelle électronique en construction, nous envisageons de mesurer 32 SQUID simultanément [Cernicchiaro 1996].

Dans le paragraphe III.3.2, nous présentons quelques résultats d'un dispositif composé de deux SQUID.

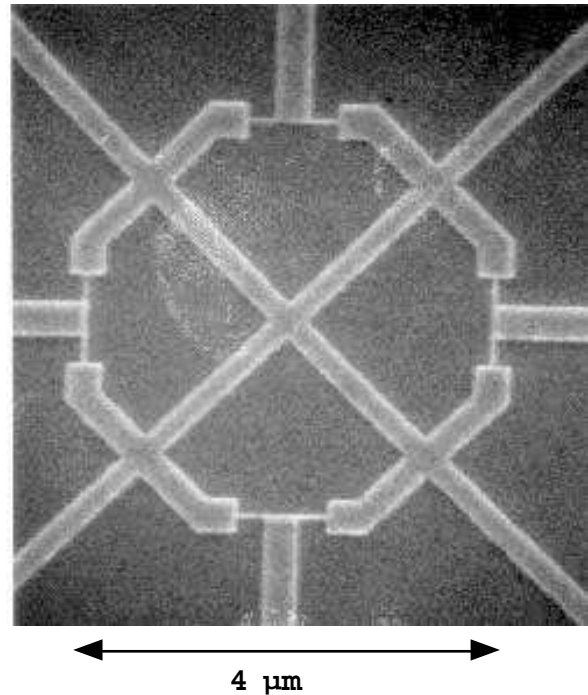


Fig. II.2.15 : La photo montre un dispositif composé de quatre SQUID qui permettent de mesurer plusieurs composantes de flux d'une particule déposée au milieu du dispositif.

II.3 Couplage entre la particule magnétique et la boucle du SQUID

Dans les paragraphes précédents, nous avons présenté notre technique de mesure. La question est maintenant de savoir quelle est la quantité de flux d'une particule magnétique qui traverse la boucle du SQUID. Pour ceci, il faut connaître le champ magnétique créé par une particule magnétique (II.3.1). On peut ensuite déterminer la position idéale de la particule par rapport au SQUID (II.3.2). Finalement, un dernier calcul permet de prévoir le signal induit par la particule magnétique (II.3.3).

II.3.1 Champ magnétique d'une petite particule magnétique

a) Champ magnétique créé par une sphère aimantée

Une petite sphère homogène en un matériau magnétique (de taille inférieure à l'épaisseur de la paroi de ce matériau) possède un moment magnétique constant. Cette sphère est caractérisée par le vecteur aimantation \vec{M} , moment magnétique par unité de volume. Ce milieu aimanté produit le même champ que si la sphère était creuse et parcourue par un courant de densité surfacique $\vec{j} = \vec{M} \times \vec{n}$ en chaque point, où \vec{n} désigne le vecteur unitaire radial. Le calcul du champ magnétique montre que le champ extérieur à la sphère aimantée est égal au champ d'un dipôle magnétique placé dans le centre de la sphère et de moment magnétique $m = M V$, où V est le volume de la sphère.

Les composantes radiale, orthoradiale et le module du champ sont donnés par les équations suivantes [Jackson] :

$$B_r = 2 \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{m}{r^3} \cos \theta \quad B_\theta = \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{m}{r^3} \sin \theta \quad B = \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{m}{r^3} \sqrt{1 + 3\cos^2 \theta}$$

Le champ magnétique dans la sphère est constant et vaut :

$$B_0 = \frac{2}{3} \mu_0 M$$

L'application à une sphère de Co ($M = 1.4 \cdot 10^6$ A/m) donne un champ maximal à la surface et dans la sphère de $B_0 = 1.2$ T.

b) Champ magnétique créé par une particule magnétique

On peut calculer le champ magnétique créé par une particule magnétique à l'aide des équations de Maxwell pour la magnétostatique :

$$\text{rot } \vec{H} = 0 \quad \text{div } \vec{B} = 0 \quad \vec{B} = \mu_0 (\vec{H} + \vec{M})$$

On peut donc définir un potentiel magnétique scalaire Ψ tel que :

$$\vec{H} = -\text{grad } \Psi \quad \Delta \Psi = \text{div } \vec{M}$$

On peut résoudre cette dernière équation à l'aide de la fonction de Green :

$$\Psi(\vec{r}) = \frac{1}{4\pi} \left(\int_V \frac{\text{div } \vec{M}(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} dV + \int_\sigma \frac{\vec{M}(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d\vec{\sigma} \right) \quad (1)$$

Le champ magnétique est donné par l'équation suivante :

$$\vec{B} = \mu_0 (-\text{grad } \Psi + \vec{M}) \quad (2)$$

Pour simplifier l'équation (1), on fait l'hypothèse que l'aimantation est homogène et parallèle à l'axe Ox :

$$\text{div } \vec{M} = 0 \quad \vec{M}(\vec{r}') = M_S \vec{e}_x$$

M_S étant l'aimantation de saturation. L'équation (1) devient :

$$\Psi(\vec{r}) = \frac{M_S}{4\pi} \int_\sigma \frac{\vec{e}_x d\vec{\sigma}}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \quad (1')$$

où l'intégration se fait sur la surface de l'échantillon. Le champ magnétique à l'extérieur de la particule s'écrit :

$$\vec{B}(\vec{r}) = \frac{\mu_0 M_S}{4\pi} \int_\sigma \frac{\vec{r} - \vec{r}'}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3} \vec{e}_x d\vec{\sigma} \quad \vec{B}(\vec{r}) = \frac{\mu_0 M_S}{4\pi} \vec{I}(\vec{r}) \quad (2')$$

Ici, $\vec{I}(\vec{r})$ est une intégrale qui contient la géométrie de l'échantillon. C'est une intégrale sans dimension.

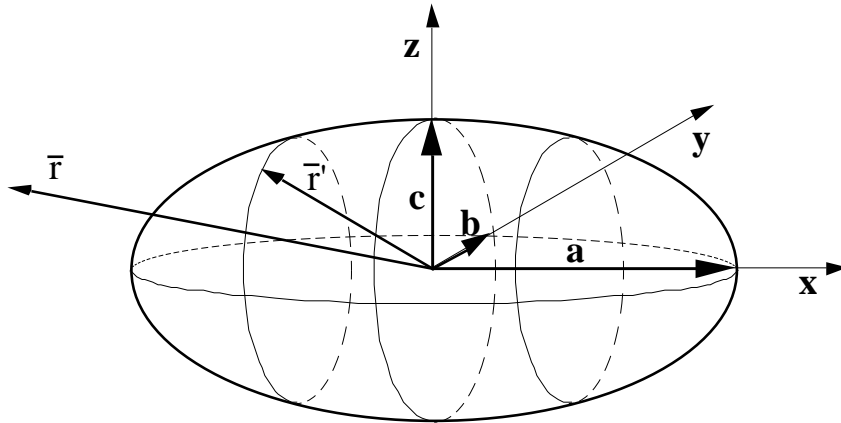


Fig. II.3.1 : Ellipsoïde de demi-axes a, b et c.

c) Application : Champ magnétique créé par un ellipsoïde aimanté

Pour un ellipsoïde, le vecteur \vec{r}' du centre de l'ellipsoïde à la surface vaut (voir figure II.3.1) :

$$\vec{r}' = \begin{pmatrix} a \cos\varphi \sin\vartheta \\ b \sin\varphi \sin\vartheta \\ c \cos\vartheta \end{pmatrix}$$

et le vecteur de l'élément de surface perpendiculaire à surface est :

$$d\vec{\sigma} = \left(\frac{\partial \vec{r}'}{\partial \varphi} \times \frac{\partial \vec{r}'}{\partial \vartheta} \right) d\varphi d\vartheta = \begin{pmatrix} ab \cos\varphi \sin^2\vartheta \\ ac \sin\varphi \sin^2\vartheta \\ ab \cos\vartheta \sin\vartheta \end{pmatrix} d\varphi d\vartheta$$

Le potentiel du champ magnétique s'écrit :

$$\Psi(\vec{r}) = \frac{M_S}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^\pi d\vartheta \frac{\begin{pmatrix} bc \cos\varphi \sin^2\vartheta \\ ac \sin\varphi \sin^2\vartheta \\ ab \cos\vartheta \sin\vartheta \end{pmatrix} \cdot \vec{e}_x}{\sqrt{(x - a \cos\varphi \sin\vartheta)^2 + (y - b \sin\varphi \sin\vartheta)^2 + (z - c \cos\vartheta)^2}}$$

Le champ magnétique à l'extérieur de l'ellipsoïde est $\vec{B} = -\mu_0 \text{grad } \Psi$:

$$\vec{B}(\vec{r}) = \frac{\mu_0 M_S}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^\pi d\vartheta \frac{\begin{pmatrix} x - a \cos\varphi \sin\vartheta \\ y - b \sin\varphi \sin\vartheta \\ z - c \cos\vartheta \end{pmatrix} bc \cos\varphi \sin^2\vartheta}{\left((x - a \cos\varphi \sin\vartheta)^2 + (y - b \sin\varphi \sin\vartheta)^2 + (z - c \cos\vartheta)^2 \right)^{3/2}} \quad (2'')$$

Les figures II.3.2 montrent le champ magnétique calculé numériquement à partir de la formule précédente.

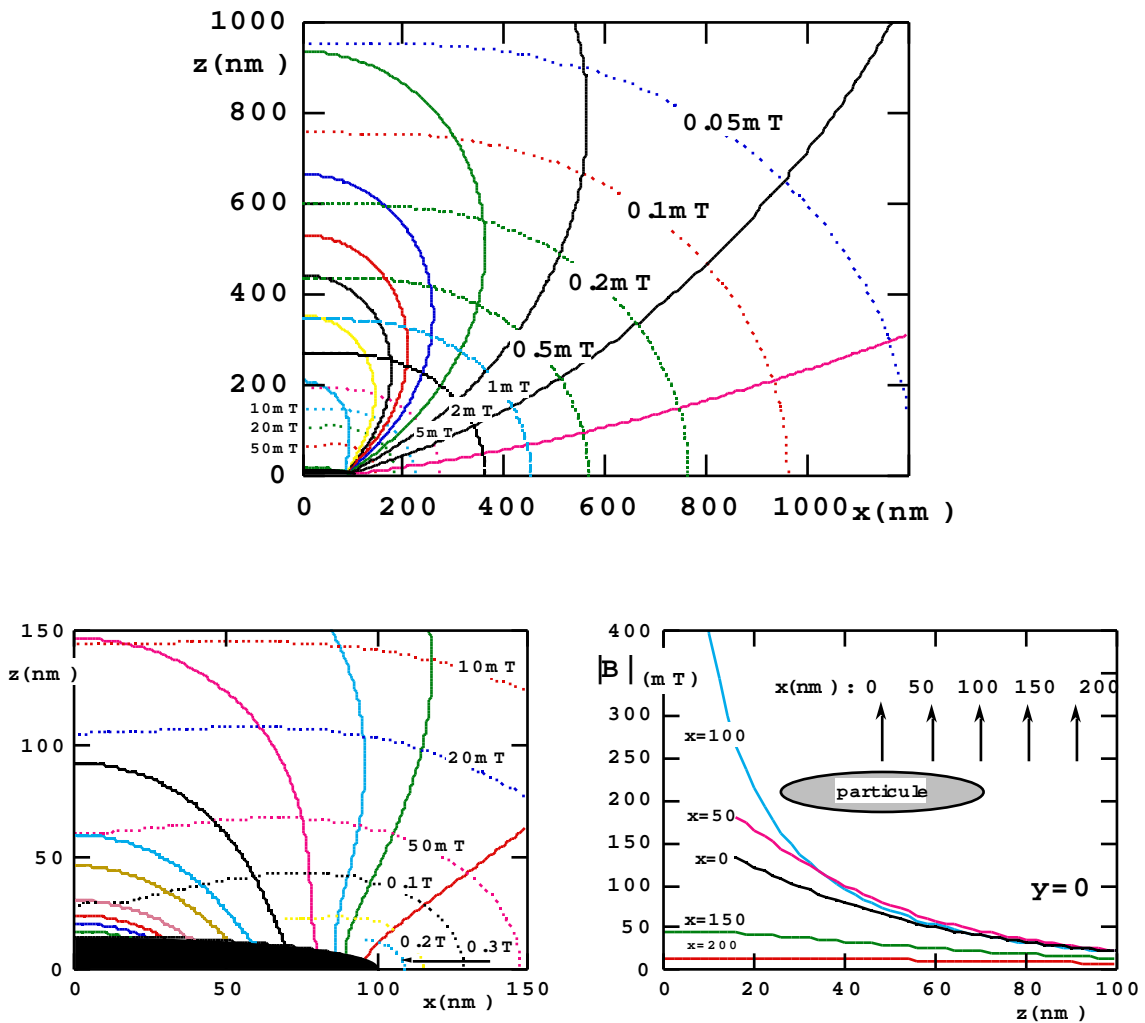


Fig. II.3.2 : Champ magnétique d'un ellipsoïde de Co (200 nm x 50 nm x 15 nm) calculé numériquement à partir de la formule (2").

II.3.2 Position de la particule sur le SQUID

Pour trouver la position la plus favorable à la mesure de l'aimantation d'une particule isolée, il faut maximiser le flux à travers la boucle du SQUID. Si l'on dépose, par exemple, la particule au milieu de la boucle, la plupart des lignes de flux se referment dans la boucle et se compensent mutuellement. A l'aide de cet exemple, on peut facilement comprendre qu'il faut déposer la particule sur le fil de la boucle. Cette position est montrée dans la figure II.3.3.

La question est maintenant de savoir quel est le flux qui traverse la boucle et comment ce flux va diminuer si l'on s'éloigne de la position idéale.

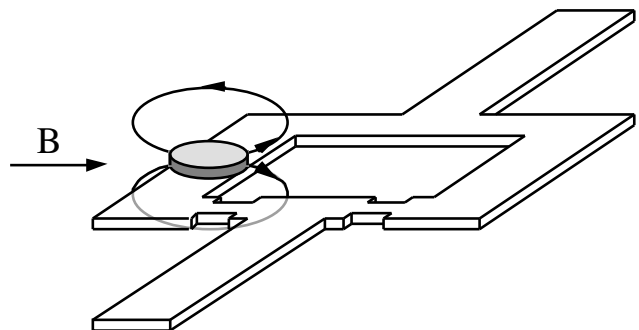


Fig. II.3.3 : Position idéale de la particule sur le SQUID.

II.3.3 Facteur de couplage entre la particule magnétique et la boucle de SQUID

Connaissant le champ créé par une petite particule magnétique et pour déterminer le signal induit dans le SQUID par cette particule, il nous faut maintenant étudier le couplage existant entre la particule magnétique et la boucle du SQUID.

Le facteur de couplage entre la particule magnétique et la boucle de SQUID est le facteur de proportionnalité entre le moment magnétique de la particule et le flux mesuré par le SQUID. Ce facteur est important à connaître pour interpréter l'amplitude du signal mesuré et pour prévoir la taille minimale de la particule. Nous donnons ici quelques méthodes pour calculer ce facteur. Malheureusement, nous allons remarquer que seul un calcul analytique est possible si nous faisons des approximations plus ou moins importantes dépendant du cas considéré.

a) Flux maximal mesurable d'une particule sphérique

Avant de calculer le flux mesurable réellement par un SQUID, nous calculons la borne supérieure, i.e. le flux total émis par une particule sphérique.

Le champ magnétique dans une particule sphérique avec une aimantation uniforme est :

$$B_0 = \frac{2}{3} \mu_0 M$$

Pour avoir le maximum de flux émis par la particule, il faut intégrer ce champ sur la surface πR^2 , où R est le rayon de la particule, et diviser le résultat par 2 car on ne peut capturer avec le SQUID que la moitié du flux (voir figure II.3.3) :

$$\Phi_{\max} = \frac{1}{2} B_0 S = \frac{1}{3} \mu_0 M \pi R^2$$

Exemple : Le flux maximal mesurable par le SQUID provenant d'une particule sphérique de Co ($M=1.4 \cdot 10^6$ A/m) avec un diamètre de 5 nm est d'environ :

$$\Phi_{\max} = 5.6 \cdot 10^{-3} \Phi_0$$

b) Méthode de l'inductance mutuelle de deux circuits

Pour calculer le couplage entre la particule magnétique et le SQUID, on peut utiliser l'équivalence entre l'aimantation de la particule et des courants fictifs ampériens circulant à la surface de la particule. La distribution des courants superficiels \vec{j} est donnée par $\vec{j} = \vec{M} \times \vec{n}$, où \vec{M} est l'aimantation de la particule et \vec{n} est la normale à la surface. Ensuite, il est souvent très utile d'utiliser le théorème de réciprocité :

L'inductance mutuelle M_{12} d'un circuit (C_1) avec un deuxième circuit (C_2) est égale à l'inductance mutuelle inverse M_{21} du circuit (C_2) avec (C_1) :

$$M_{12} = M_{21} = M$$

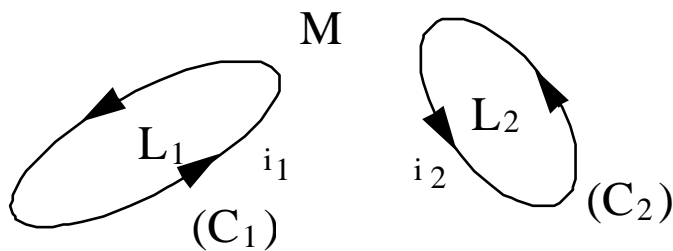


Fig. II.3.4 : Schéma de l'inductance mutuelle entre deux circuits.

Si ϕ_1 et ϕ_2 désignent les flux d'induction magnétique qui traversent (C₁) et (C₂) respectivement et L₁ et L₂ les inductances de chaque circuit (voir figure II.3.4) :

$$\begin{aligned} \phi_1 &= L_1 i_1 + M i_2 \\ \phi_2 &= L_2 i_2 + M i_1 \end{aligned}$$

En l'occurrence, le flux envoyé par un courant I circulant dans les spires fictives de la particule, à travers la boucle du SQUID est égal au flux envoyé en sens inverse par le courant I circulant dans le SQUID, à travers les spires fictives. Si I désigne le courant fictif total circulant à la surface de la particule, on peut définir une distribution de spires fictives par unité de longueur n(x) :

$$j(x) = n(x) I$$

Le flux total de \vec{B} à travers les spires fictives de la particule est :

$$\Phi = \int dx n(x) \iint_{S(x)} B_x(x, y, z) dy dz$$

où S(x) est la surface des spires fictives. Comme n(x) est proportionnel à M, et B_x proportionnel à I, et en utilisant le théorème de la réciprocité, on obtient finalement que le flux à travers la boucle du SQUID est M que multiplie une intégrale à calculer (souvent numériquement). Dans la suite, nous appliquons cette méthode à quelques cas simples.

c) Couplage d'une particule sphérique avec un fil rectiligne de section négligeable et pour r >> R

Pour une particule sphérique ayant une aimantation uniforme, la distribution des courants superficiels est $j = M \sin(\theta)$. Avec le courant total I circulant à la surface de la particule, la distribution de spires fictives par unité de longueur n(x) est :

$$j(x) = M \sin(\theta(x)) = n(x) I$$

Pour une particule très petite par rapport à la distance particule - fil, on peut supposer que le champ B est uniforme travers les spires fictives. Le champ magnétique d'un fil rectiligne est donné par :

$$B(r) = \frac{\mu_0 I}{2\pi r}$$

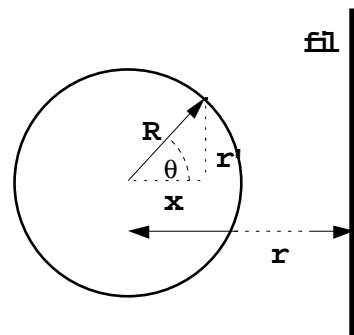


Fig. II.3.5 : Coupe à travers une particule de rayon R.

où r est la distance entre la particule et le fil. Avec la surface $S(x) = \pi r'^2 = \pi (R^2 - x^2)$ et $\sin(\theta(x)) = \sqrt{R^2 - x^2}/R$ (voir la figure II.3.5) le flux autour du fil, i.e. à travers la boucle de SQUID, si le fil représente cette boucle, est :

$$\Phi(r) = \int dx \frac{M}{I} \sin(\theta(x)) \iint_{S(x)} B(r) dy dz$$

$$\Phi(r) = \pi \frac{M}{I} \frac{\mu_0 I}{2\pi} \frac{1}{r} \int_{-R}^R dx \frac{\sqrt{R^2 - x^2}}{R} (R^2 - x^2) = \frac{3}{16} \pi \mu_0 M \frac{R^3}{r} = \frac{9}{64} \mu_0 m \frac{1}{r}$$

$$\Phi(r) = \frac{9}{64} \mu_0 m \frac{1}{r} \quad r \gg R$$

où $m = VM$ est le moment magnétique et V est le volume de la particule $V = \frac{4}{3} \pi R^3$. Ce résultat montre que lorsque r décroît, le signal mesuré augmente rapidement avec $1/r$.

Exemple :

Le flux mesuré par le SQUID d'une particule sphérique de Co ($M = 1.4 \cdot 10^6$ A/m) avec un diamètre de 5 nm ($R = 2.5$ nm) à une distance de $r = 15$ nm est d'environ $5 \cdot 10^{-4} \Phi_0$ (cf. figure II.3.7).

d) Couplage d'une particule sphérique avec un fil rectiligne de section négligeable et pour $r \geq R$

L'approximation de $r \gg R$ n'est pas justifiée si on veut un couplage maximal avec le SQUID car, dans ce cas, r doit être le plus petit possible. Restons d'abord dans la limite d'une particule beaucoup plus petite que la boucle de SQUID et dans l'approximation du SQUID par un fil rectiligne infiniment long.

Calculons d'abord le coefficient d'inductance mutuelle M d'une boucle circulaire plate de rayon R , et d'un fil rectiligne infiniment long, placé dans le plan de la boucle plate, à la distance r du centre de la boucle. Le flux de

$$B(x) = \frac{\mu_0 I}{2\pi} \frac{1}{x}$$

envoyé par le fil à travers la surface élémentaire hachurée $dS = dx \cdot 2\sqrt{R^2 - (x-r)^2}$ (fig. II.3.6) est :

$$d\Phi = dS B(x) = \frac{\mu_0 I}{\pi} dx \frac{\sqrt{R^2 - (x-r)^2}}{x}$$

Donc, l'inductance mutuelle fil - boucle est :

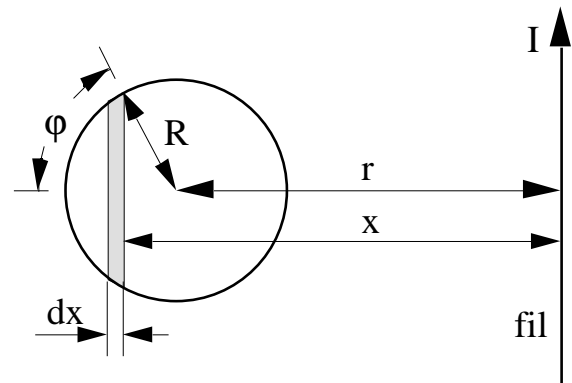


Fig. II.3.6 : Schéma de l'inductance mutuelle bobine - fil.

$$M = \frac{\Phi(r)}{I} = \frac{1}{I} \int_{S(x)} dS B(x) = \frac{\mu_0}{\pi} \int_{r-R}^{r+R} dx \frac{\sqrt{R^2 - (x-r)^2}}{x}$$

En effectuant le changement de variable $x - r = R \cos \varphi$ et en utilisant l'intégrale

$$\int_0^\pi \frac{d\varphi}{r + R \cos \varphi} = \frac{\pi}{\sqrt{r^2 - R^2}}, \text{ on trouve :}$$

$$M = \mu_0 r \left[1 - \sqrt{1 - \frac{R^2}{r^2}} \right]$$

Dans la limite $r \gg R$ on retrouve un résultat similaire à celui du paragraphe précédent :

$$\Phi(r) = I M = \frac{m}{S} M \approx \frac{m}{\pi R^2} \frac{\mu_0 R^2}{2 r} = \frac{m}{2 \pi r}$$

Si r est de l'ordre de R , il faut faire une autre intégration. L'inductance mutuelle d'une tranche de la sphère est :

$$dM \approx dn(z) \mu_0 r'(z) \left[1 - \sqrt{1 - \frac{R'^2(z)}{r'^2(z)}} \right] \cos(\varphi(z))$$

Avec les formules suivantes, on peut écrire :

$$dn(z) = \frac{M}{I} \sin(\theta(z)) dz = \frac{M}{I} \frac{\sqrt{R^2 - z^2}}{R} dz, \quad r' = \sqrt{r^2 + z^2}, \quad \cos \varphi(z) = \frac{r}{r'}$$

$$M \approx \mu_0 \int_{-R}^R dz \frac{M}{I} \frac{\sqrt{R^2 - z^2}}{R} r' \left[1 - \sqrt{1 - \frac{R^2}{r^2 + z^2}} \right] \frac{r}{r'}$$

$$\Phi(r) \approx I M \approx \mu_0 M \frac{r}{R} \left(\frac{\pi}{2} R^2 - \int_{-R}^R dz \sqrt{R^2 - z^2} \sqrt{1 - \frac{R^2}{r^2 + z^2}} \right)$$

Comme nous n'avons pas trouvé de solution à l'intégrale elliptique, nous l'avons intégrée numériquement. La figure II.3.7 montre le flux d'une particule de Co d'un diamètre de 10 nm en fonction de la position r .

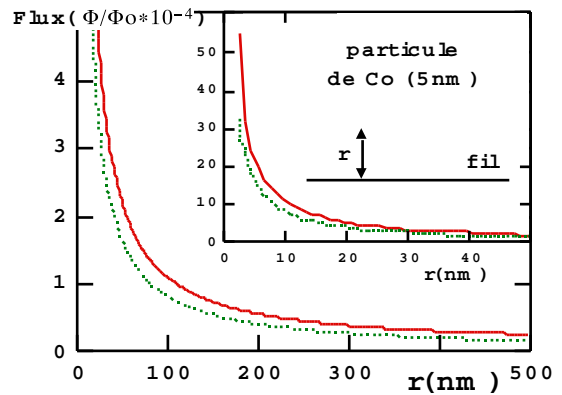


Fig. II.3.7 : Couplage entre une particule sphérique ($R = 2.5 \text{ nm}$) et un fil rectiligne. La ligne en pointillés est calculée en utilisant le résultat de II.3.3c ($\Phi \propto 1/r$).

e) Couplage d'une particule sphérique avec un fil rectiligne de section rectangulaire

Comme les dimensions de la particule sont souvent de même ordre que les dimensions de la section du fil de la boucle du SQUID, on ne peut que difficilement négliger ces dernières. De plus, nous avons prochainement l'intention d'étudier des particules d'une taille bien inférieure aux dimensions de la section de fil. C'est pour cela que nous donnons ici un calcul du

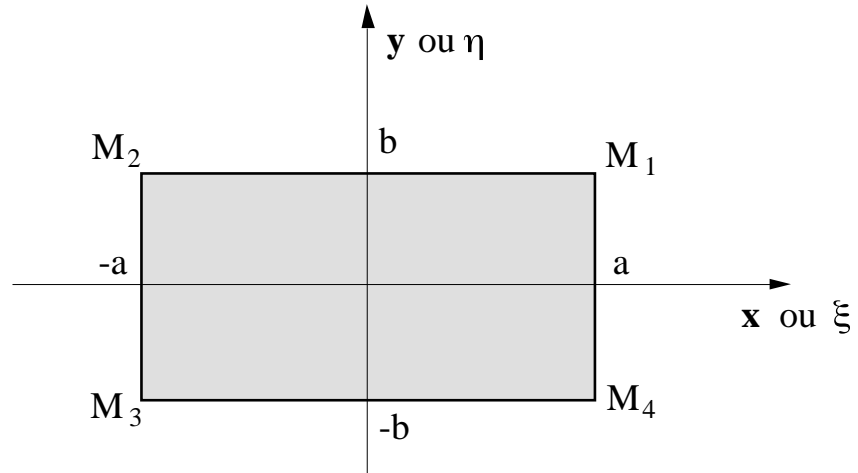


Fig. II.3.8 : Section du fil rectiligne rectangulaire.

couplage d'une particule sphérique avec un fil rectiligne à section rectangulaire. Nous regardons la limite d'une particule beaucoup plus petite que la boucle du SQUID et que la section du fil. Ceci nous permet d'approximer la particule par un dipôle magnétique.

Nous présentons deux calculs différents qui conduisent au même résultat. La racine est identique dans les deux calculs (équations de Maxwell), mais les approximations sont justifiées de manière différentes. Dans la première méthode, nous calculons l'induction mutuelle entre un dipôle et un fil rectiligne à section rectangulaire. Dans la deuxième méthode, nous calculons le déphasage dans un fil supraconducteur rectiligne à section rectangulaire. Finalement, nous discutons le résultat des deux méthodes.

1^{ère} Méthode : induction mutuelle entre un dipôle et un fil rectiligne de section rectangulaire

Comme dans les cas précédents, il est utile d'utiliser le théorème de réciprocité. C'est pourquoi nous devons d'abord calculer le champ magnétique d'un fil rectiligne à section rectangulaire avec une distribution de courant uniforme à travers la section du fil. Pour le calcul analytique, c'est le potentiel complexe $\zeta(z)$ (voir formule (113) dans la référence [Durand]) qui est le plus facile à calculer. On a :

$$\zeta(z) = F + iV = -\frac{J}{2\pi} \int_{-a}^a d\xi \int_{-b}^b d\eta \log(z - \zeta)$$

avec $\zeta = \xi + i\eta$. $A_z = \mu_0 F$ est le potentiel-vecteur et V le potentiel scalaire. En désignant par z_i les coordonnées complexes des sommets M_i (voir figure II.3.8), on trouve :

$$\frac{2\pi}{J} \zeta(z) = 6ab + \frac{1}{2} \left\{ \begin{array}{l} +(z - z_1)^2 \log(z - z_1) - (z - z_2)^2 \log(z - z_2) \\ +(z - z_3)^2 \log(z - z_3) - (z - z_4)^2 \log(z - z_4) \end{array} \right\}$$

L'induction magnétique se déduit directement de $\zeta(z)$ de la formule :

$$\mathbf{B}_x + i\mathbf{B}_y = -\mu_0 \frac{d\zeta}{dz} = \frac{\mu_0 J}{2\pi} \left\{ \begin{array}{l} +(z - z_1)\log(z - z_1) - (z - z_2)\log(z - z_2) \\ +(z - z_3)\log(z - z_3) - (z - z_4)\log(z - z_4) \end{array} \right\}$$

En utilisant la définition du logarithme complexe,

$$\log(z) = \log(x + iy) = \log\left(\sqrt{x^2 + y^2}\right) + i \arctan\left(\frac{y}{x}\right), \text{ on trouve :}$$

$$\mathbf{B}_x = \frac{\mu_0 I}{2\pi(4ab)} \left\{ \begin{array}{l} +\frac{(x-a)}{2} \log\left[\frac{(x-a)^2 + (y-b)^2}{(x-a)^2 + (y+b)^2}\right] \\ +\frac{(x+a)}{2} \log\left[\frac{(x+a)^2 + (y+b)^2}{(x+a)^2 + (y-b)^2}\right] \\ +(y-b) \left[\arctan\left(\frac{(y-b)}{(x+a)}\right) - \arctan\left(\frac{(y-b)}{(x-a)}\right) \right] \\ +(y+b) \left[\arctan\left(\frac{(y+b)}{(x-a)}\right) - \arctan\left(\frac{(y+b)}{(x+a)}\right) \right] \end{array} \right\} = \frac{\mu_0 I}{2\pi(4ab)} [\dots]_x$$

$$\mathbf{B}_y = \frac{\mu_0 I}{2\pi(4ab)} \left\{ \begin{array}{l} +\frac{(y-b)}{2} \log\left[\frac{(x-a)^2 + (y-b)^2}{(x+a)^2 + (y-b)^2}\right] \\ +\frac{(y+b)}{2} \log\left[\frac{(x+a)^2 + (y+b)^2}{(x-a)^2 + (y+b)^2}\right] \\ +(x-a) \left[\arctan\left(\frac{(y-b)}{(x-a)}\right) - \arctan\left(\frac{(y+b)}{(x-a)}\right) \right] \\ +(x+a) \left[\arctan\left(\frac{(y+b)}{(x+a)}\right) - \arctan\left(\frac{(y-b)}{(x+a)}\right) \right] \end{array} \right\} = \frac{\mu_0 I}{2\pi(4ab)} [\dots]_y$$

Pour un dipôle magnétique $\mu = I S$ orienté dans la direction x et avec le théorème de réciprocité, le flux autour du fil s'écrit :

$$\Phi_{\text{dipôle-SQUID}} = S \mathbf{B}_x = \frac{\mu_0 \mu}{2\pi(4ab)} [\dots]_x$$

En supposant que le champ magnétique est uniforme à travers les spires fictives d'une particule sphérique avec un moment magnétique $m = M V$, le flux autour du fil s'écrit :

$$\Phi_{\text{sphère-SQUID}} = \frac{9 \mu_0 m}{64 (4ab)} [\dots]_x$$

Avant la discussion de ce résultat, nous allons déduire le même résultat avec une autre méthode.

2^{ème} Méthode : couplage d'une particule sphérique avec un fil supraconducteur rectiligne, de section rectangulaire

Dans la mesure où les dimensions de la section du fil sont beaucoup plus petites que celles de la longueur de pénétration λ du supraconducteur (pas de courant d'écrantage), et que le courant et le champ appliqué sont faibles, on peut utiliser la théorie de London qui est une forme simplifiée de la théorie de Ginzburg-Landau. L'équation pour le courant s'écrit :

$$\mu_0 \lambda^2 \mathbf{j} = \left(\frac{\Phi_0}{2\pi} \nabla \varphi - \mathbf{A} \right)$$

On suppose que la fonction d'onde des paires d'électrons est $\psi(\vec{r}) = |\psi| e^{i\varphi(\vec{r})}$, avec $|\psi|$ constant et une phase $\varphi(\vec{r})$, les notations étant celles de la figure II.3.9.

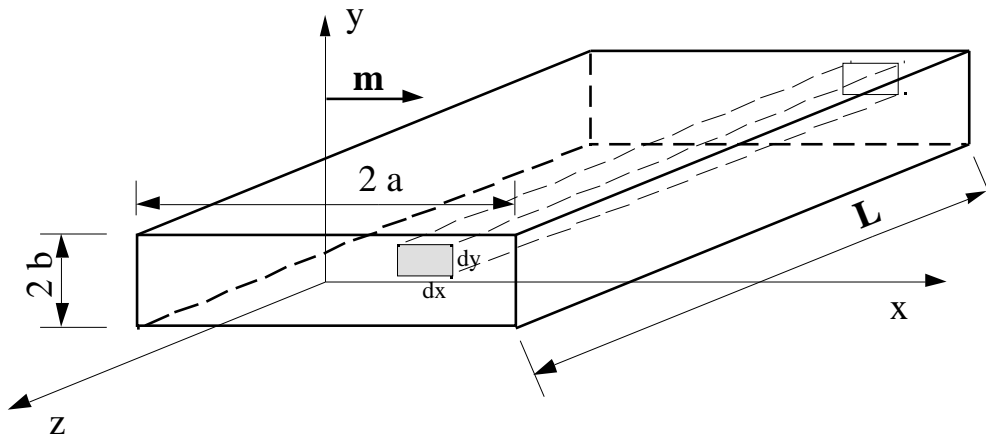


Fig. II.3.9 : Le fil rectiligne et le dipôle m .

On suppose que le fil est d'une longueur telle que la phase est constante à travers la section du fil pour les endroits éloignés du dipôle. La différence de phase entre $z = -\infty$ et $z = \infty$ est $\nabla \varphi = \varphi_2 - \varphi_1 = \varphi(z = \infty) - \varphi(z = -\infty)$. L'intégrale du courant sur l'élément $dx dy$ est :

$$\mu_0 \lambda^2 \int_{-\infty}^{\infty} dz j_z(x, y, z) = \frac{\Phi_0}{2\pi} (\varphi_2 - \varphi_1) - \int_{-\infty}^{\infty} dz A_z(x, y, z)$$

d'où l'expression pour la différence de phase :

$$(\varphi_2 - \varphi_1) = \frac{2\pi}{\Phi_0} \left[\int_{-\infty}^{\infty} dz A_z(x, y, z) + \mu_0 \lambda^2 \int_{-\infty}^{\infty} dz j_z(x, y, z) \right]$$

Ensuite, on intègre sur la section :

$$(\varphi_2 - \varphi_1) \iint_{S(a,b)} dx dy = \frac{2\pi}{\Phi_0} \left[\iint_{S(a,b)} dx dy \int_{-\infty}^{\infty} dz A_z(x, y, z) + \mu_0 \lambda^2 \iint_{S(a,b)} dx dy \int_{-\infty}^{\infty} dz j_z(x, y, z) \right]$$

En utilisant la condition de conservation du courant et la longueur L du fil, nous obtenons :

$$\iint_{S(a,b)} dx dy \int_{-\infty}^{\infty} dz j_z(x, y, z) = \int_{-\infty}^{\infty} dz J_0(4ab) \approx \int_0^L dz J_0(4ab) = i_0 L$$

On aboutit à la différence de phase due au dipôle :

$$\varphi_2 - \varphi_1 \approx \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_{-a}^a \frac{dx}{2a} \int_{-b}^b \frac{dy}{2b} \int_{-\infty}^{\infty} dz A_z(x,y,z) + \mu_0 \lambda^2 \frac{i_0 L}{4ab}$$

Si on suppose que le dipôle ne modifie que faiblement le courant i_0 , on néglige le dernier terme dû au courant. Le potentiel vecteur d'un dipôle en point $(x_0, y_0, 0)$ est :

$$\vec{A} = \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{\vec{\mu} \times \vec{R}}{R^3} = \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{1}{R^3} \begin{pmatrix} \mu \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} x - x_0 \\ y - y_0 \\ z \end{pmatrix} = \frac{\mu_0 \mu}{4\pi} \frac{1}{R^3} \begin{pmatrix} 0 \\ -z \\ (y - y_0) \end{pmatrix}$$

$$\Delta\Phi = \frac{\Phi_0}{2\pi} (\varphi_2 - \varphi_1) \approx \frac{\mu_0 \mu}{4\pi} \int_{-a}^a \frac{dx}{2a} \int_{-b}^b \frac{dy}{2b} \int_{-\infty}^{\infty} dz \frac{(y - y_0)}{\left((x - x_0)^2 + (y - y_0)^2 + z^2 \right)^{3/2}}$$

En utilisant les formules suivantes :

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{dz}{(a^2 + z^2)^{3/2}} = \lim_{z' \rightarrow \infty} \left[\frac{z}{a^2 \sqrt{a^2 + z^2}} \right]_{-z'}^{+z'} = \frac{2}{a^2}, \quad \int \frac{dx}{a^2 + x^2} = \frac{1}{a} \arctan\left(\frac{x}{a}\right),$$

$$\int \arctan\left(\frac{a}{y}\right) dy = y \arctan\left(\frac{a}{y}\right) + \frac{a}{2} \ln\left(\frac{a^2 + y^2}{a^2}\right), \quad \arctan\left(\frac{x}{y}\right) = \frac{\pi}{2} - \arctan\left(\frac{y}{x}\right),$$

l'intégration triple donne le même résultat que la composante B_x du champ magnétique d'un fil rectiligne à section rectangulaire (voir 1^{ère} méthode) :

$$\Delta\Phi = -\frac{\mu}{I} B_x(x_0, y_0) = -\frac{\mu_0 \mu}{2\pi(4ab)} [\dots]_{x(x_0, y_0)}$$

Le signe négatif vient du fait que le dipôle est orienté en sens opposé au champ magnétique.

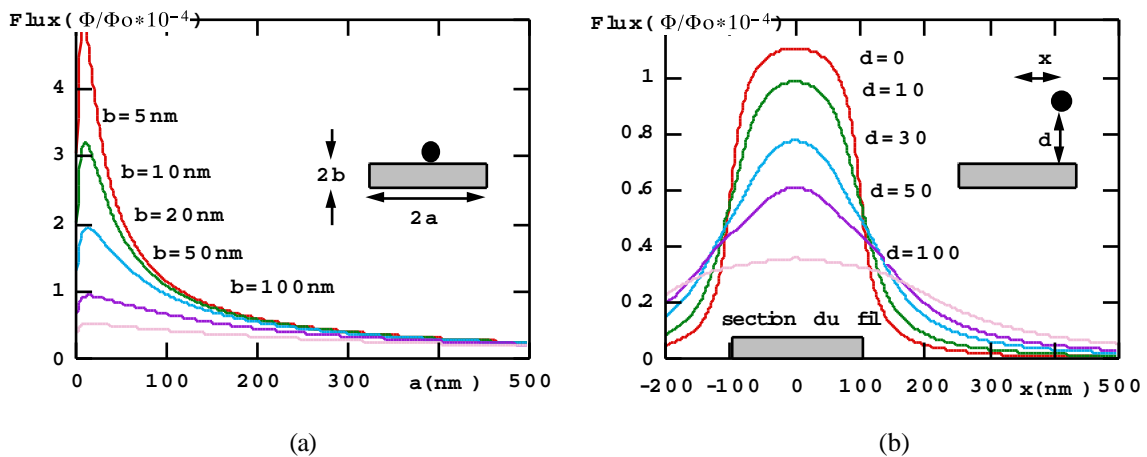


Fig. II.3.10 : Flux, mesuré par le SQUID, d'une particule sphérique de Co avec un diamètre de 5 nm. (a) : Flux en fonction des dimensions de la section du fil. La distance entre la particule et le SQUID est choisie minimale : $y = b + R$, et la particule est centrée sur le fil : $x = 0$. (b) : Flux en fonction de la position x et pour différentes distances $y = b + R + d$. Les dimensions de la section du fil sont $a = 100$ nm et $b = 10$ nm.

Exemple :

Le flux, mesuré par le SQUID, d'une particule sphérique de Co ($M = 1.4 \cdot 10^6$ A/m) avec un diamètre de 5 nm est d'environ :

$$\frac{\Phi_{\text{sphère Co(5nm)-SQUID}}}{\Phi_0} = 2 \cdot 10^{-3} \frac{1}{ab} [\dots]_x \text{ (nm)}$$

Les figures II.3.10 montrent ce flux en fonction des dimensions de la section du fil et de la position de la particule. On peut voir que le couplage diminue fortement pour une augmentation de la section du fil. Lorsque les dimensions de la section du fil sont inférieures aux dimensions de la particule, l'approximation faite (champ homogène dans la particule) n'est plus valable et le couplage diminue à nouveau.

Aussi, l'augmentation de la distance entre la particule et le fil (direction Oy) réduit le couplage. Pour les déplacements en x supérieurs à environ 100 nm, il est favorable de faire un petit déplacement en y pour augmenter le signal.

f) Couplage d'une particule elliptique avec la boucle de SQUID

Pour la plupart des mesures présentées dans ce travail, la particule (≈ 100 nm) est d'un ordre de grandeur plus petite que le SQUID ($\approx 1 \mu\text{m}$). Les particules ont des formes diverses. Dans ce cas, il est plus adapté de négliger la section de la boucle et d'intégrer le champ magnétique de la particule sur la surface de la boucle du SQUID. Pour un ellipsoïde, le flux qui traverse la boucle du SQUID est donné par (voir II.3.1):

$$\Phi = \int_{\text{SQUID}} d\sigma B_x(\vec{r}) = \frac{\mu_0 M_S}{4\pi} \int_{\text{SQUID}} d\sigma I_x(\vec{r}) = \frac{\mu_0 M_S}{4\pi} F$$

Ici, l'intégrale F contient la géométrie de l'échantillon et du SQUID. Elle a la dimension d'une surface. Le moment magnétique est $m = M_S V = N \mu_B$ où N est le nombre de magnétons de Bohr μ_B et V le volume de l'échantillon.

Le flux traversant le SQUID peut alors s'écrire :

$$\Phi = N \frac{\mu_0 \mu_B}{4\pi} \alpha \quad \text{où} \quad \alpha = \frac{F}{V}$$

Ici, α exprime le couplage entre le SQUID et l'échantillon. Normalisé avec le quantum de flux $\Phi_0 = 2 \cdot 10^{-15}$ Vs et exprimé avec les valeurs numériques, on peut définir le rapport suivant :

$$S = \frac{\Phi}{\Phi_0} \approx 10^{-9} N \alpha (1/\mu\text{m})$$

Les intégrales ne se résolvent que numériquement. La figure II.3.11 représente les valeurs de S pour différentes formes, mais avec le même volume. On peut déduire de cette figure, par exemple, qu'une particule sphérique a un couplage plus important qu'un ellipsoïde si elle est bien placée. Mais le couplage diminue plus rapidement avec le déplacement. Le couplage est meilleur si la particule ronde est plate (rondelle) et si l'on tourne l'ellipsoïde de 90° , le couplage est encore meilleur.

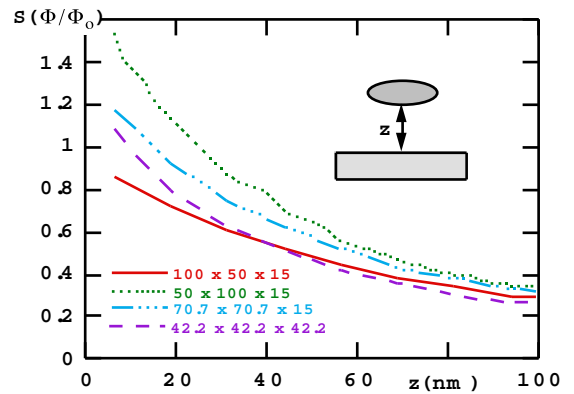


Fig. II.3.11 : Influence de la forme de la particule sur le flux à travers la boucle du SQUID et en fonction de la distance entre le fil du SQUID et la particule. Les dimensions des particules sont données en nm avec la notation : $2a \times 2b \times 2c$.

II.3.4 Résumé du signal induit par une particule magnétique

Dans les paragraphes précédents, nous avons présenté différentes méthodes pour calculer le signal induit par une particule magnétique. Nous résumons ici les résultats finaux en les appliquant à une particule sphérique de Co ($M = 1.4 \cdot 10^6$ A/m), de diamètre 5 nm ($R = 2.5$ nm) (cf. figure II.3.12).

a) Flux maximal :

$$\Phi_{\max} = \frac{\mu_0 M \pi R^2}{3} = 5.6 \cdot 10^{-3} \Phi_0$$

c) Couplage d'une particule sphérique avec un fil rectiligne en négligeant sa section et pour $r \gg R$:

$$\Phi(r) = \frac{3}{16} \pi \mu_0 M \frac{R^3}{r} \approx 5 \cdot 10^{-4} \Phi_0 \quad \text{pour } r = 15 \text{ nm}$$

d) Couplage d'une particule sphérique avec un fil rectiligne en négligeant sa section et pour $r \approx R$:

$$\Phi(r) \approx I M \approx \mu_0 M \frac{r}{R} \left(\frac{\pi}{2} R^2 - \int_{-R}^R dz \sqrt{R^2 - z^2} \sqrt{1 - \frac{R^2}{r^2 + z^2}} \right) \approx 7 \cdot 10^{-4} \Phi_0 \quad \text{pour } r = 15 \text{ nm}$$

e) Couplage d'une particule sphérique avec un fil rectiligne de section rectangulaire :

$$\Phi_{\text{sphère-SQUID}} = \frac{9 \mu_0 m}{64 (4ab)} [\dots]_x \approx 10^{-4} \Phi_0$$

f) Couplage d'une particule elliptique avec la boucle de SQUID en négligeant la section du fil :

$$\Phi = N \frac{\mu_0 \mu_B}{4\pi} \alpha \approx 5 \cdot 10^{-3} \Phi_0$$

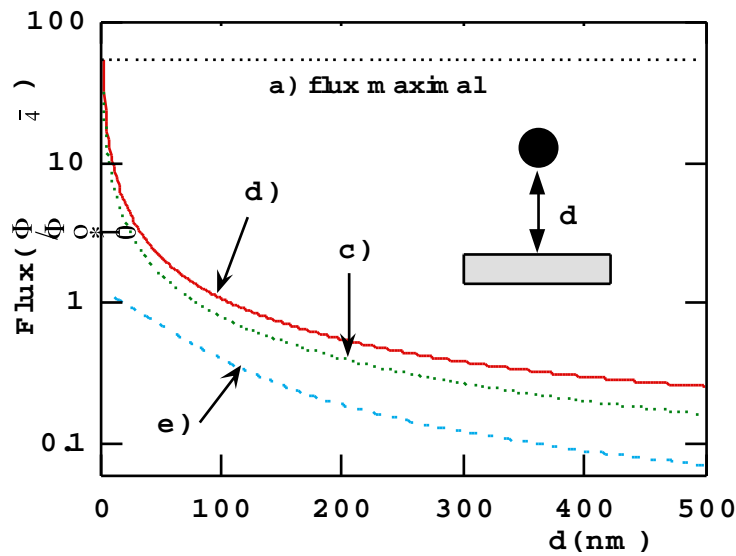


Fig. II.3.12 : Graphe résumant les résultats des paragraphes précédents concernant le signal induit par une particule sphérique de Co avec un diamètre de 5 nm. Le flux induit par la particule est tracé en fonction de la distance d .

II.4 Sensibilité de notre technique de mesure

Connaissant la technique de mesure et le flux magnétique induit par une particule, nous pouvons maintenant discuter la sensibilité de nos mesures. Tout d'abord, nous abordons le problème d'un point de vue théorique (II.4.1), puis nous passons en revue les facteurs diminuant la sensibilité (II.4.2) et les corrections nécessaires (II.4.3). Enfin nous donnons la sensibilité effectivement obtenue (II.4.4).

II.4.1 Limite théorique de la sensibilité des SQUID

La limite théorique de la sensibilité de la technique des SQUID est la limite quantique, i.e. l'énergie mise en jeu pendant une seconde doit être supérieure à (h est la constante de Planck) :

$$dE > h / t \approx 10^{-33} \text{ J}$$

L'énergie intervenant dans les SQUID est donnée par :

$$dE = L(dI)^2 = d\phi^2 / L$$

L'inductance L d'un SQUID avec un diamètre $R = 1 \mu\text{m}$ et une largeur $a = 0.2 \mu\text{m}$ pour le fil de la boucle est :

$$L = \mu_0 * R(\ln(8R / a) - 7/ 4) \approx 10^{-6} R \approx 1 \text{ pH}$$

La plus petite variation du flux est donc donnée par :

$$dE \approx 10^{-33} \text{ J} = (d\phi)^2 / L \Rightarrow d\phi / \phi_0 \approx 10^{-8}$$

Si on veut atteindre expérimentalement cette sensibilité, il faut mesurer la réponse du SQUID à la fréquence de Josephson qui est typiquement de 10 GHz. Ceci n'est généralement pas possible. Dans notre cas avec un SQUID hystérétique, nous pouvons mesurer actuellement le courant critique de la

boucle du SQUID avec une fréquence de 10 kHz. La sensibilité maximale est donc réduite par un facteur de :

$$\sqrt{f_{\text{Josephson}} / f_{\text{cyclage}}} = \sqrt{10 \text{ GHz} / 10 \text{ kHz}} = 1000$$

i.e. la sensibilité de notre technique de mesure est $10^{-5} \phi_0$ (cf. II.2.1).

II.4.2 Effets diminuant la sensibilité de la mesure du flux magnétique

Notre méthode de mesure est très efficace grâce à la proximité du SQUID et de la particule. Cependant, la résolution en flux magnétique est diminuée pour plusieurs raisons.

a) Champ magnétique appliqué

Le champ magnétique appliqué dans le plan du SQUID diminue la sensibilité. Ceci est essentiellement dû à la pénétration de ce champ dans les microponts du SQUID, diminuant ainsi le courant critique du SQUID, ce qui équivaut à un signal parasite. Pour réduire cette pénétration du champ magnétique, nous fabriquons les SQUID les plus minces possibles (10 à 50 nm). Par exemple, le champ critique pour l'aluminium est de 8 mT mais un SQUID en aluminium d'épaisseur de 20 nm ou 50 nm fonctionne jusqu'à des champs respectivement de 0.5 T ou 0.15 T.

b) Courant de Foucault

Toutes les variations du champ magnétique induisent des courants d'écran (courants de Foucault) dans un conducteur. L'amplitude de ces courants est proportionnelle à la conductivité et à la vitesse de changement du champ (dB/dt). L'influence de ces courants n'est pas négligeable car on utilise souvent de bons conducteurs (par exemple du cuivre) à basse température pour la thermalisation. D'autre part, ces courants sont aussi très utiles pour écranter l'échantillon de toutes les fluctuations du champ à haute fréquence. L'influence de ces courants sur les mesures conduit à un retard du champ magnétique appliqué. Ce retard est proportionnel à la vitesse du changement du champ (dB/dt).

c) Rémanence des bobines de champ

Une source de bruit est la rémanence des bobines utilisées. Ceci peut être très gênant, spécialement pour la bobine supraconductrice de la compensation (paragraphe II.2.2). La rémanence introduit un retard du champ magnétique pour chaque inversion de l'aimantation. La rémanence des bobines supraconductrices peut être minimisée en utilisant des fils supraconducteurs multifilaments. Pour ce travail, nous avons essayé deux fils différents :

un fil de 60 filaments, 0.12 mm de diamètre (Vacuumschmelze, Allemagne) et un fil de 14496 filaments de 0.55 μm , 0.13 mm de diamètre (P. Tixador, CRTBT et GEC ALSTHOM, Belfort, France).

Le dernier était satisfaisant pour nos études.

d) Signaux venant de l'environnement du SQUID

Un bruit qui donne le même signal que la rémanence d'une bobine vient de tous les objets supraconducteurs (spécialement des boucles supraconductrices) dans l'environnement du SQUID. La figure II.4.1 montre le cycle d'hystérésis d'un SQUID sans particule, mesuré tout au début de nos études. L'origine principale de ce cycle était les soudures dans la dilution du cryostat et les soudures du porte-échantillon. Nous avons effectué les changements nécessaires pour réduire ce signal d'un facteur mille.

e) Fils de connexion en aluminium

Un signal peu gênant vient des fils de connexion du SQUID en aluminium. Ces fils sont supraconducteurs au-dessous de 1 K. Le champ magnétique appliqué est légèrement incliné, donnant ainsi une composante proportionnelle au champ appliqué qui traverse la boucle du SQUID. Ceci s'arrête brusquement pour les champs appliqués supérieurs à 8 mT (H_C de l'aluminium). L'amplitude est typiquement de l'ordre de $\Phi_0/100$ si les fils de connexions sont éloignés de plus de 0.5 mm du SQUID (voir figure II.4.2). On peut facilement retrancher ce signal en utilisant des fils de connexion en or ou en effectuant les mesures à des températures supérieures à 1 K.

f) Flux piégé dans la boucle du SQUID

Dans certains cas, on peut avoir un flux piégé dans la boucle du SQUID qui peut bouger en provoquant des sauts de flux (figure II.4.3). Les SQUID fabriqués avec plus d'une étape de lithographie (gradiomètre à SQUID, SQUID avec transformateur de flux) ou les SQUID déposés sur une surface "salie" (par exemple par des restes de gravure) sont spécialement sensibles et présentent parfois des flux piégés. On peut facilement différencier ces sauts de flux des sauts dus à une particule magnétique car ces sauts sont très sensibles aux changements de la température et du champ perpendiculaire.

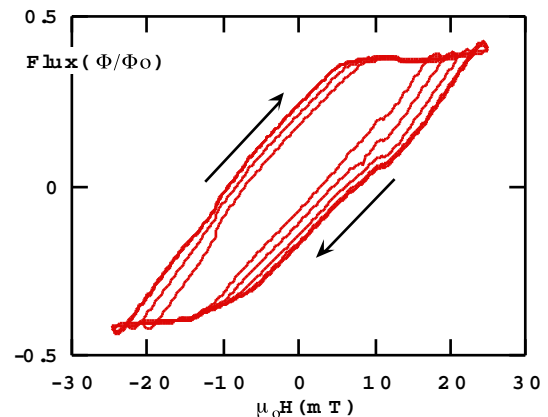


Fig. II.4.1 : Cycle d'hystérésis et cycle mineur d'un SQUID sans particule tout au début de ce travail. Ce signal est dû à des soudures supraconductrices.

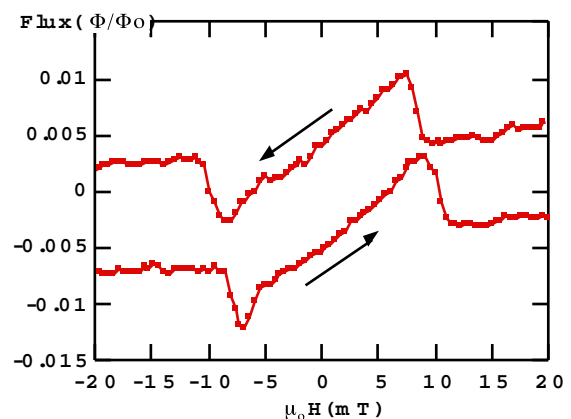


Fig. II.4.2 : Signal venant des fils de connexion en Al.

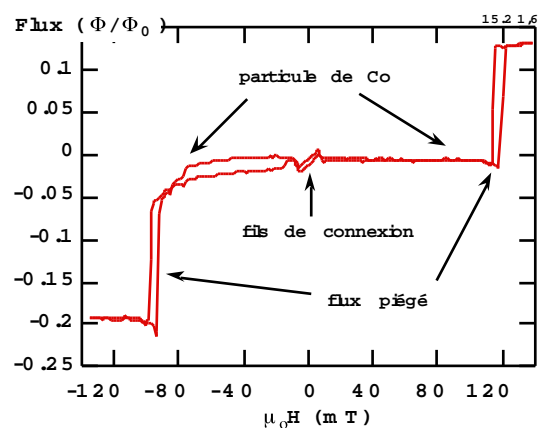


Fig. II.4.3 : Cycle d'hystérésis avec des sauts de flux.

g) Fluctuations de température

Comme le courant critique du SQUID est une fonction de la température (spécialement au dessus de 250 mK ou 1 K pour respectivement un SQUID en aluminium ou niobium), toutes les fluctuations de la température réduisent la sensibilité de la mesure. Les figures II.4.4 montrent la dépendance en température de I_C et de sa dérivée. Par exemple pour un SQUID en niobium, un changement de 1 mK à 4 K provoque une variation de $\Phi_0/1000$.

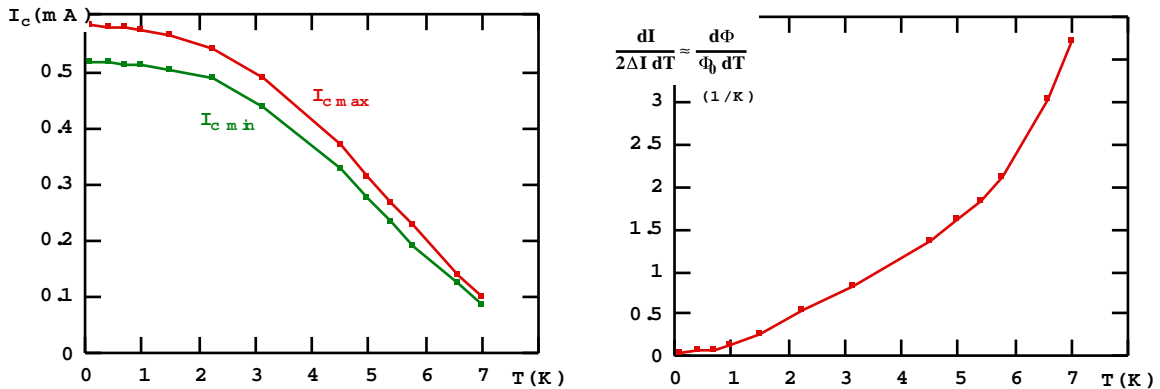


Fig. II.4.4 : Dépendance thermique du courant critique I_C du SQUID en Nb et de sa dérivée.

h) Signal en forme de huit

Finalement, on peut observer un signal en forme de huit (voir figure II.4.5) qui est dû à un effet mémoire du courant critique. Pour une augmentation du champ magnétique dans le plan du SQUID, le courant critique diminue (voir paragraphe II.4.2a), mais, pour une diminution du champ, I_C augmente plus rapidement qu'il n'a diminué lors de l'augmentation du champ. Cet effet est plus important pour un SQUID en aluminium qu'en niobium. Un exemple est montré dans la figure II.4.5. L'origine de ce phénomène est probablement lié à une expulsion inhomogène du champ magnétique.

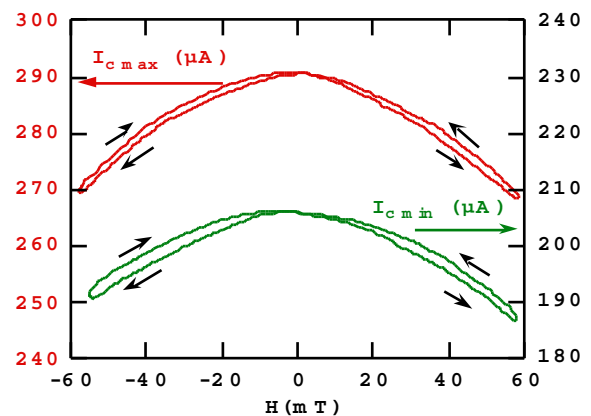


Fig. II.4.5 : Courants critiques maximal et minimal pour un SQUID en aluminium (45 nm) en fonction du champ magnétique dans le plan du SQUID.

II.4.3 Correction des mesures

Pour réduire les effets diminuant la sensibilité de la mesure du flux magnétique (paragraphe précédent), nous avons corrigé le signal mesuré. Nous présentons ici les différentes corrections effectuées.

a) Composante résiduelle perpendiculaire au plan du SQUID

Une difficulté de l'expérience est d'aligner le champ appliqué dans le plan du SQUID. Ceci peut se faire, par exemple, à l'aide d'un SQUID juxtaposé sans particule. Mais en général, nous avons utilisé la méthode consistant à saturer l'échantillon et à soustraire la composante résiduelle qui traverse la boucle du SQUID.

b) Pénétration du champ dans les microponts

L'effet le plus gênant pour les mesures est la pénétration du champ dans les microponts du SQUID, effet diminuant le courant critique. Cependant, on peut facilement soustraire une grande partie du signal dû à la pénétration du champ. Une formule trouvée expérimentalement pour la soustraction est :

$$\Phi_{\text{corrigé}} = \pm \left\{ \Phi_{\text{mesuré}} + [\cosh(H/a) - 1]/b \right\} \quad (1)$$

Les paramètres a et b sont des fonctions de l'épaisseur et du matériau du SQUID, et le signe est donné par le signe du gain de la compensation (voir paragraphe II.2.2). La figure II.4.6 montre le signal mesuré sur des SQUID sans particule, avant et après la soustraction. Presque toutes les mesures de ce travail sont corrigées à l'aide de la formule (1).

Après cette correction, les signaux parasites restant ($< \Phi_0/100$) sont essentiellement dus au "bruit" venant de l'environnement du SQUID.

En général, nous avons aussi corrigé le signal venant des fils de connexion. Aucune autre correction n'a été ensuite nécessaire.

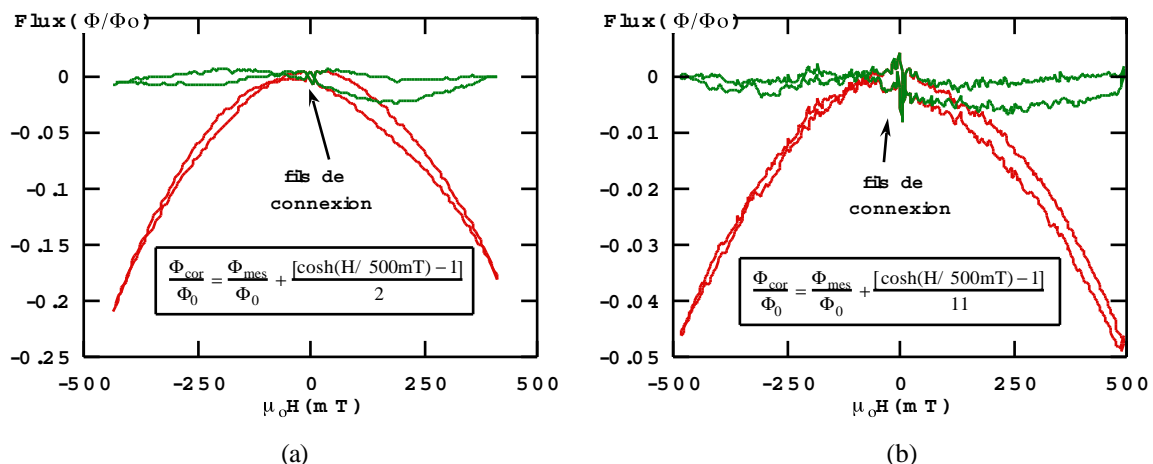


Fig. II.4.6 : Signal mesuré avec des SQUID (a) en Al et (b) en Nb (épaisseur 20 nm) sans particule magnétique, avant et après avoir soustrait le signal venant de la pénétration du champ magnétique appliqué dans le plan du SQUID.

II.4.4 Sensibilité obtenue avec les SQUID hystérétiques en Al et Nb

Avec la méthode de mesure directe du courant critique (paragraphe II.2.1), la résolution obtenue sur le flux magnétique avec un SQUID en aluminium ou niobium est respectivement de $10^{-5} \Phi_0$ et $10^{-4} \Phi_0$ à champ faible et constant (< 10 mT). Ces résolutions sont réduites par un ordre de grandeur à champ fort (< 1 T).

Avec la méthode de mesure par compensation (paragraphe II.2.2), la résolution obtenue sur le flux magnétique avec un SQUID en aluminium ou niobium est de $10^{-4} \Phi_0$ pour des vitesses de balayage de 1 mT/s.

On peut approximativement transformer les variations de flux mesurées par le SQUID en variations du moment magnétique. Pour ceci, nous avons utilisé la sensibilité de $4 \cdot 10^7 \mu\text{B}/\Phi_0$, une valeur obtenue pour les particules élaborées par lithographie électronique (cf. III.3). Cette valeur est du même ordre que les valeurs calculées au paragraphe II.3.3.

On peut illustrer la sensibilité à l'aide des trois exemples suivants :

1. Une particule de Co en forme d'ellipse de 200 nm par 100 nm et d'épaisseur 30 nm, contient environ $7 \cdot 10^7$ spins (μB). On peut mesurer expérimentalement un signal de l'ordre de $1 \Phi_0$ pour cette particule, ce qui est un signal important pour un SQUID.

2. Un signal encore mesurable de $10^{-3} \Phi_0$ correspond au renversement d'environ 10^5 spins i.e. un cube en cobalt de 6 nm d'arête.

3. Le signal d'un agrégat de Co avec un diamètre de 5 nm ($10^4 \mu\text{B}$) serait de $2.5 \cdot 10^{-4} \Phi_0$.

II.4.5 Amélioration de la sensibilité - SQUID shunté

L'inconvénient de la technique des SQUID hystérétiques que nous venons de présenter est que nous sommes limités par la fréquence de recyclage des mesures (cf. II.2.1). Pour pallier à ce problème on peut utiliser des SQUID shuntés.

Ces SQUID sont très semblables à ceux dont nous avons déjà discuté si ce n'est que des résistances sont mises en parallèle des jonctions Josephson (figure II.4.7). La figure II.4.8 montre schématiquement la caractéristique d'un tel SQUID : cette caractéristique ne présente plus d'hystérésis contrairement à la caractéristique de la figure II.1.3. Dans ce cas le passage de l'état supraconducteur à l'état résistif est continu, i.e. il est possible de stabiliser le système dans un état où seules les jonctions Josephson

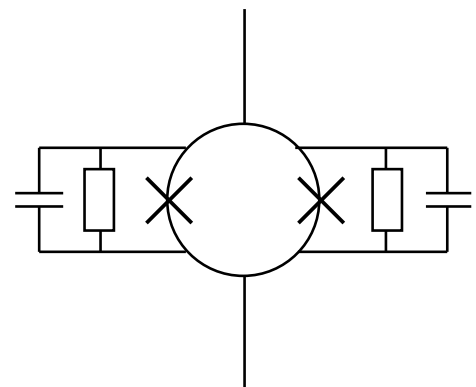


Fig. II.4.7 : Schéma représentant un SQUID shunté.

sont normal. Cet état est obtenu en polarisant le SQUID avec un courant constant I_p (figure II.4.8). La mesure de la tension aux bornes du SQUID en fonction du champ appliqué perpendiculairement au plan du SQUID montre que cette tension est périodique selon la variation avec le flux et que la période est Φ_0 . Il suffit alors de mesurer la tension aux bornes du SQUID pour remonter à la variation du flux.

La difficulté expérimentale est que la mesure induit un chauffage continu de l'ordre de 10^{-9} Watt qui bien que négligeable devant la puissance frigorifique du cryostat à dilution est très difficile à évacuer dans un échantillon de taille micrométrique.

Expérimentalement, pour éliminer les bruits liés à la mesure de la tension, on peut utiliser des techniques courantes comme, par exemple, l'amplification du signal à l'aide d'un "lock-in" ou / et des circuits résonants.

La résolution d'un tel SQUID shunté peut s'approcher de la limite quantique et atteindre $10^{-8} \Phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$, on peut donc espérer d'étudier le retournement de 100 à 1000 spins.

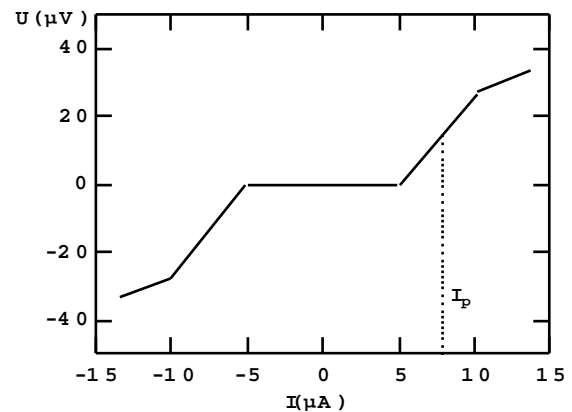


Fig. II.4.8 : Schéma de la tension aux bornes d'un SQUID shunté en fonction du courant appliqué.

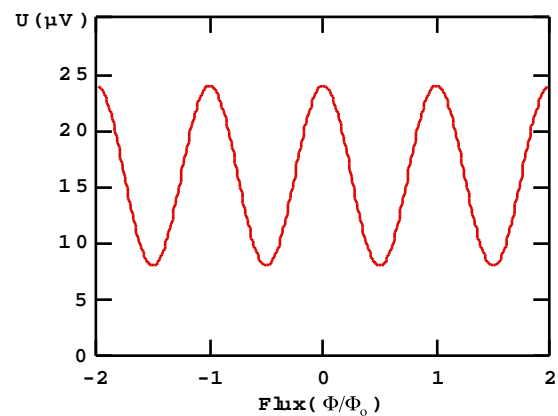


Fig. II.4.9 : Schéma de la tension aux bornes du SQUID shunté en fonction du champ appliqué perpendiculairement à la boucle du SQUID pour un courant I_p constant.

Dans la fin de ce chapitre, nous expliquons l'élaboration expérimentale des SQUID et des particules : c'est la technique de lithographie électronique. Nous expliquons ensuite comment nous avons obtenu de très basses températures à l'aide de notre cryostat. Enfin nous décrivons l'expérience elle-même.

II.5 Lithographie électronique

Au cours de cette thèse, je me suis rendu plusieurs fois au laboratoire L2M à Bagnex pour fabriquer nos échantillons avec Dominique MAILLY. Nous avons choisi la méthode de lithographie électronique qui permet de graver des structures jusqu'à 30 nm.

II.5.1 Principe de la lithographie électronique

Nous avons utilisé un système monocouche, ce qui est la technique la plus simple. Les différentes étapes sont représentées sur la figure II.5.1. On dépose tout d'abord la résine (par exemple du Polyméthylmétacrylate (PMMA)) par rotation sur un substrat (par exemple Si, GaAs). Pour les traits les plus fins, l'épaisseur de résine est de l'ordre de trois fois l'épaisseur du dépôt métallique (soit 150 nm pour nos SQUID d'épaisseur 50 nm). On balaie ensuite la zone à graver (insolation de l'échantillon) avec un faisceau d'électrons focalisés, ce qui provoque soit un pontage des chaînes (résines négatives), soit une coupure des chaînes (résines positives). Puis on dissout les petites chaînes avec un solvant. On obtient un sillon de la structure souhaitée. Le métal est déposé sur toute la surface de l'échantillon. Il couvre donc la résine et le substrat à l'endroit du sillon. La dissolution de la résine dans un solvant permet de ne conserver que le trait métallique. On appelle cette dissolution "lift-off".

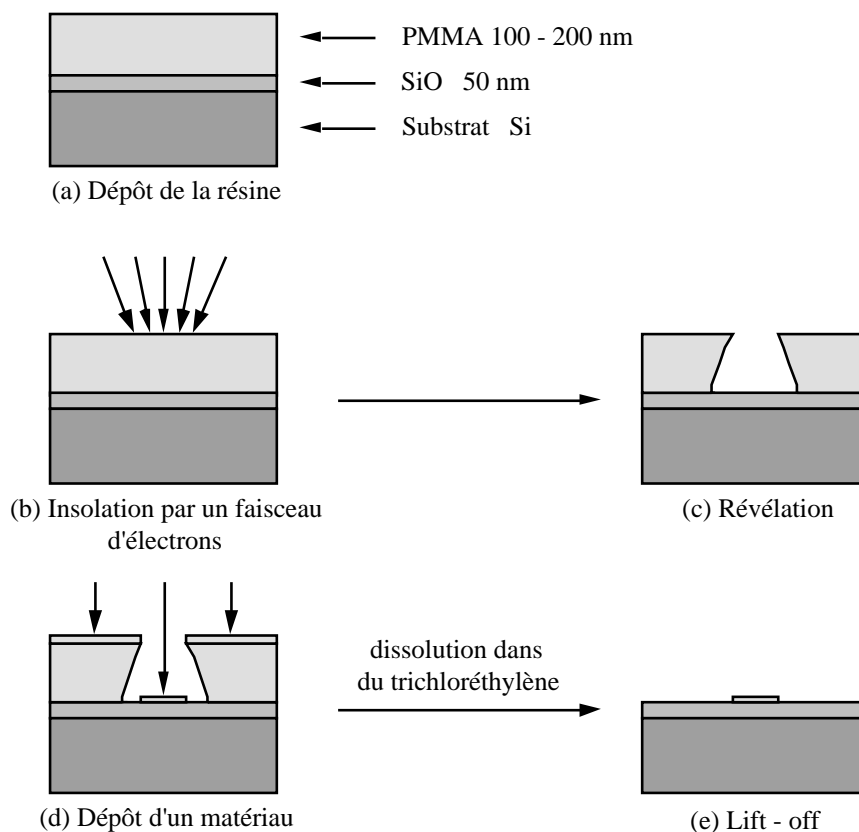


Fig. II.5.1 : Etapes de la lithographie électronique utilisant la technique de monocouche.

Le fait que l'insolation se fasse par un balayage plutôt que par une insolation globale (lithographie optique) a pour conséquence des temps d'exposition qui peuvent être très longs suivant la complexité du motif. Ainsi, il nous fallait environ une minute pour insoler un SQUID avec ses plots de connexion.

Une autre technique est le système tricouche qui permet d'obtenir de très grands rapports entre l'épaisseur de résine et la largeur du trait.

II.5.2. Fabrication des SQUID et des particules magnétiques par lithographie électronique

Nous avons utilisé deux méthodes pour la fabrication de nos échantillons.

a) Méthode de "lift-off"

Nous avons choisi cette méthode pour déposer des SQUID en aluminium sur des particules ou pour déposer des particules sur des SQUID en niobium. Les étapes principales de la fabrication sont les suivantes :

- dépôt de la résine électrosensible sur une plaquette avec les particules ou sur une plaquette avec des SQUID en niobium ;
- insolation des SQUID ou des ellipses et révélation ;
- dépôt d'une couche d'aluminium ou d'une couche magnétique ;
- lift-off pour avoir des SQUID ou ellipses.

b) Méthode de gravure à partir d'une couche mince

On fabrique tout d'abord la couche mince dans les meilleures conditions possibles. Dans notre cas, nous utilisons la méthode de gravure à partir d'une couche mince pour des couches de niobium (fabrication des SQUID en niobium) ou pour des couches magnétiques (fabrication des particules). Les étapes principales sont les suivantes :

- dépôt de la résine électrosensible sur la couche de niobium ou sur la couche magnétique ;
- insolation des SQUID ou des ellipses et révélation ;
- dépôt d'une couche d'aluminium ;
- lift-off pour avoir des SQUID ou des ellipses en aluminium sur la plaquette ;
- exposition de la couche en niobium à un plasma réactif (SH_6) ou à un faisceau d'ions (Ar^+) (cas d'une couche magnétique) qui élimine la couche en question, sauf là où il y a la protection par les motifs en aluminium ;
- dissolution du masque en aluminium dans une solution diluée de soude.

II.6 Méthode d'obtention des très basses températures

Nous avons effectué des mesures dans une gamme de températures situées entre 100 mK et 7 K. L'échantillon se trouve à l'intérieur d'une enceinte refroidie à 4.2 K par une circulation de ⁴He liquide. L'échantillon lui-même est refroidi par détente d'un mélange ³He/⁴He entre 2 K et 7 K et par dilution du même mélange pour les plus basses températures.

a) Principe d'un réfrigérateur à dilution

Avec le réfrigérateur à dilution d'³He dans l'⁴He, il est possible obtenir des températures allant jusqu'à 2 mK. Il est fondé sur la séparation de phase d'un mélange d'³He et d'⁴He en dessous de 0.87 K (cf. figure II.6.1). Une "phase concentrée" légère et plus riche en ³He flotte sur une "phase diluée" plus riche en ⁴He. L'³He s'évapore plus facilement que l'⁴He. Par extraction de l'³He de la "phase diluée" on force l'³He de la "phase concentrée" à traverser le niveau de séparation de phase. Cela entraîne un refroidissement du système dans des conditions adiabatiques (cf. figure II.6.2). L'entretien de ce processus est obtenu par réinjection de l'³He pompé au niveau de l'évaporateur (phase diluée) dans la partie riche en ³He au moyen d'un circuit de pompage extérieur.

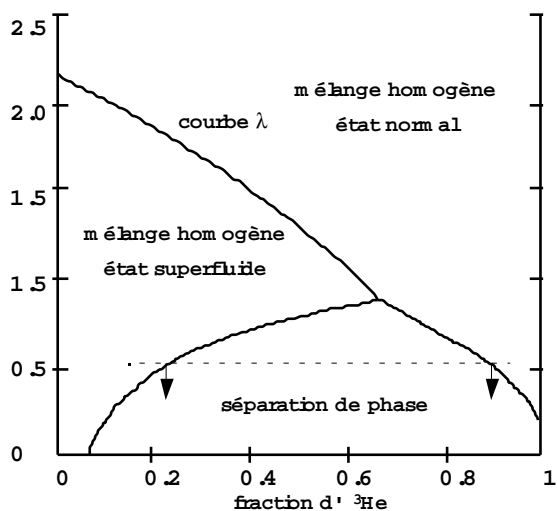


Fig. II.6.1 : Diagramme de phase ³He + ⁴He [Lounasmaa 1974].

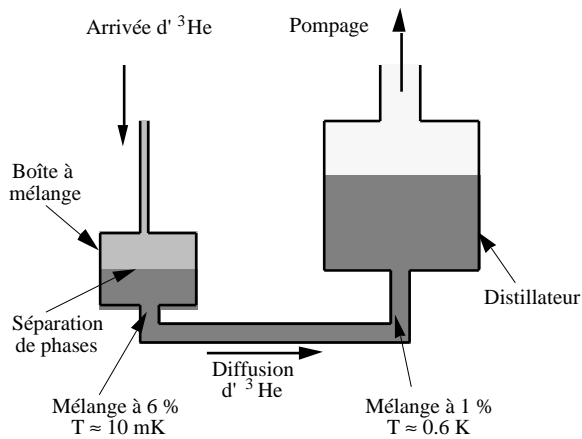


Fig. II.6.2 : Schéma d'un réfrigérateur à dilution.

b) Le cryostat utilisé

Le cryostat utilisé pour les expériences est basé sur le principe de dilution de ^3He dans ^4He . Il se distingue des cryostats classiques par sa compacité et sa facilité d'utilisation. Il a la particularité de travailler la "tête haute" (la partie froide où se trouve l'échantillon étant au sommet).

Le cryostat est composé de différents niveaux (voir figure II.6.3). Le premier niveau est constitué d'une cloche qui isole l'intérieur du cryostat de l'atmosphère. Le vide dans le cryostat avant refroidissement est d'environ 0.1 Pa. Lors du refroidissement, tout le gaz résiduel est piégé sur les parois froides. Il y a trois niveaux d'écrantage de rayonnement de chaleur dans le cryostat qui sont respectivement à 80 K, 20 K et 4 K. Le niveau à 4 K est directement refroidi par de ^4He liquide. Les deux autres niveaux sont refroidis par le gaz d' ^4He venant du niveau à 4 K. La plaque à 4 K sert de température de base pour la dilution. La partie la plus froide de la dilution, la boîte à mélange, est directement couplée à la plaque à 60 mK portant le porte-échantillon. Pour les températures situées au-dessus de 60 mK, on chauffe la plaque à 60 mK à l'aide d'une résistance électrique pilotée par un micro-ordinateur. Des sondes de température (en carbone et en germanium) permettent à un programme de réguler la température du cryostat à une valeur de consigne donnée.

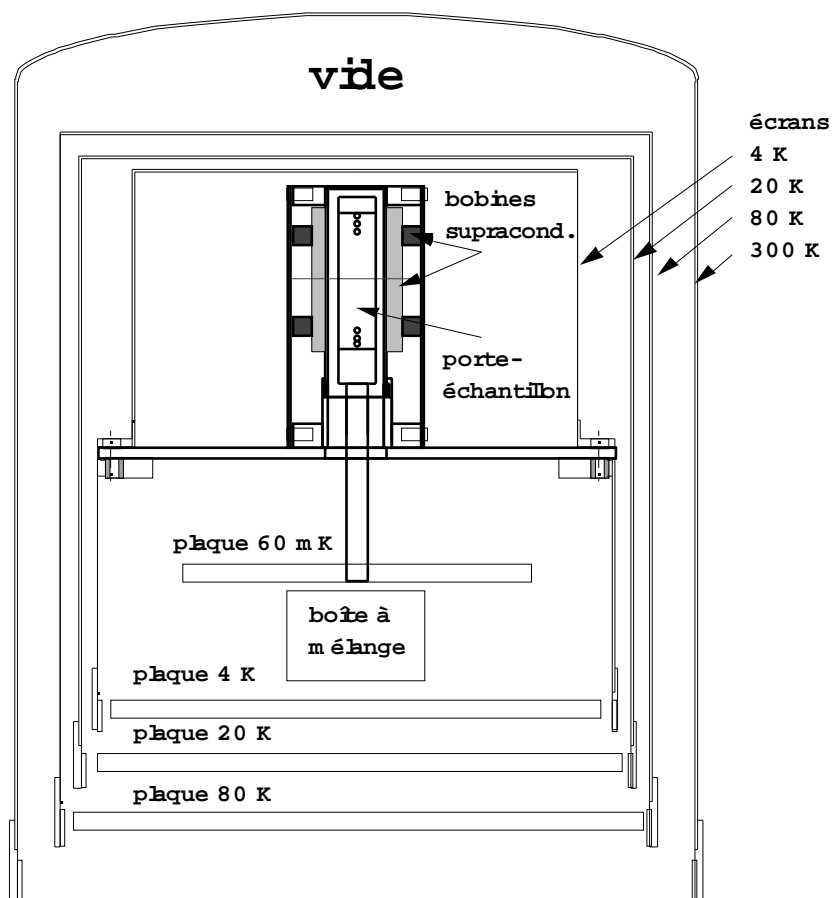


Fig. II.6.3 : Schéma de la tête du cryostat utilisé.

II.7 Description de l'expérience

a) Montage de l'échantillon

La plaquette avec les SQUID placée sur un porte-échantillon est mise dans le cryostat à dilution sur la plaque à 60 mK (voir figure II.6.3). Autour du cryostat sont placées des bobines de Helmholtz, créant des champs dans chacune des directions d'un trièdre orthogonal. De plus, nous utilisons des bobines de Helmholtz supraconductrices montées sur la plaque à 4 K (figure II.6.3) pour pouvoir appliquer des champs magnétiques allant jusqu'à 1 T. Trois sources de courant permettent d'alimenter ces bobines.

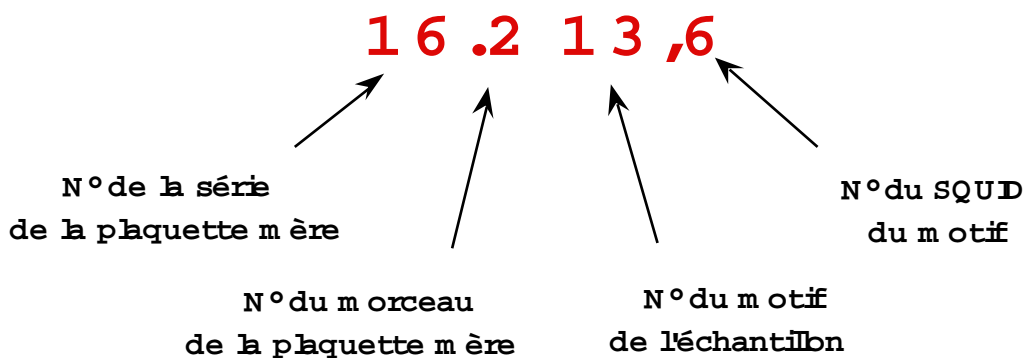


Fig. II.7.1 : Nomenclature des échantillons.

b) Nomenclature des échantillons

Au cours de ma thèse, Dominique Mailly a élaboré plus de 5000 SQUID* et nous en avons connectés et testés plus des deux tiers. Il était donc très important d'introduire une nomenclature souple et commode qui allait au-delà de la date de fabrication. Un exemple de la nomenclature que j'ai choisie est montré dans la figure II.7.1. Le premier numéro désigne la série de la plaquette. Nous avons échantillonné une plaquette en 10 à 20 morceaux désignés par le deuxième numéro. Nous avons collé un ou plusieurs morceaux sur une plaquette de connexion. Le troisième numéro désigne les motifs sur une plaquette de connexion. Enfin, le quatrième numéro désigne le SQUID du motif (cf. figure II.7.2). Pour différencier le numéro de la plaquette de connexion (les deux premiers numéros) et le numéro du SQUID (les deux derniers numéros), les deux premiers numéros sont séparés par un point et les derniers deux numéros sont séparés par une virgule.

Pour pouvoir retrouver un certain SQUID et les fichiers de mesures, ces numéros sont marqués sur presque tous les graphes de cette thèse.

* Merci, Dominique !

c) Connexions des SQUID

Nous avons utilisé plusieurs méthodes pour connecter électriquement les SQUID. La figure II.7.2 montre une de ces méthodes. Au lieu de connecter chaque SQUID avec deux fils (plus et masse), on connecte N SQUID par N+1 fils (N plus et masse).

La plaquette avec les SQUID est placée sur un porte-échantillon qui permet de faire le lien entre le cryostat et les échantillons. Pour assurer le contact électrique, on soude des fils en aluminium de 33 μm de diamètre entre les connexions électriques du porte-échantillon et les plots des SQUID. On peut au maximum connecter 24 SQUID sur le porte-échantillon.

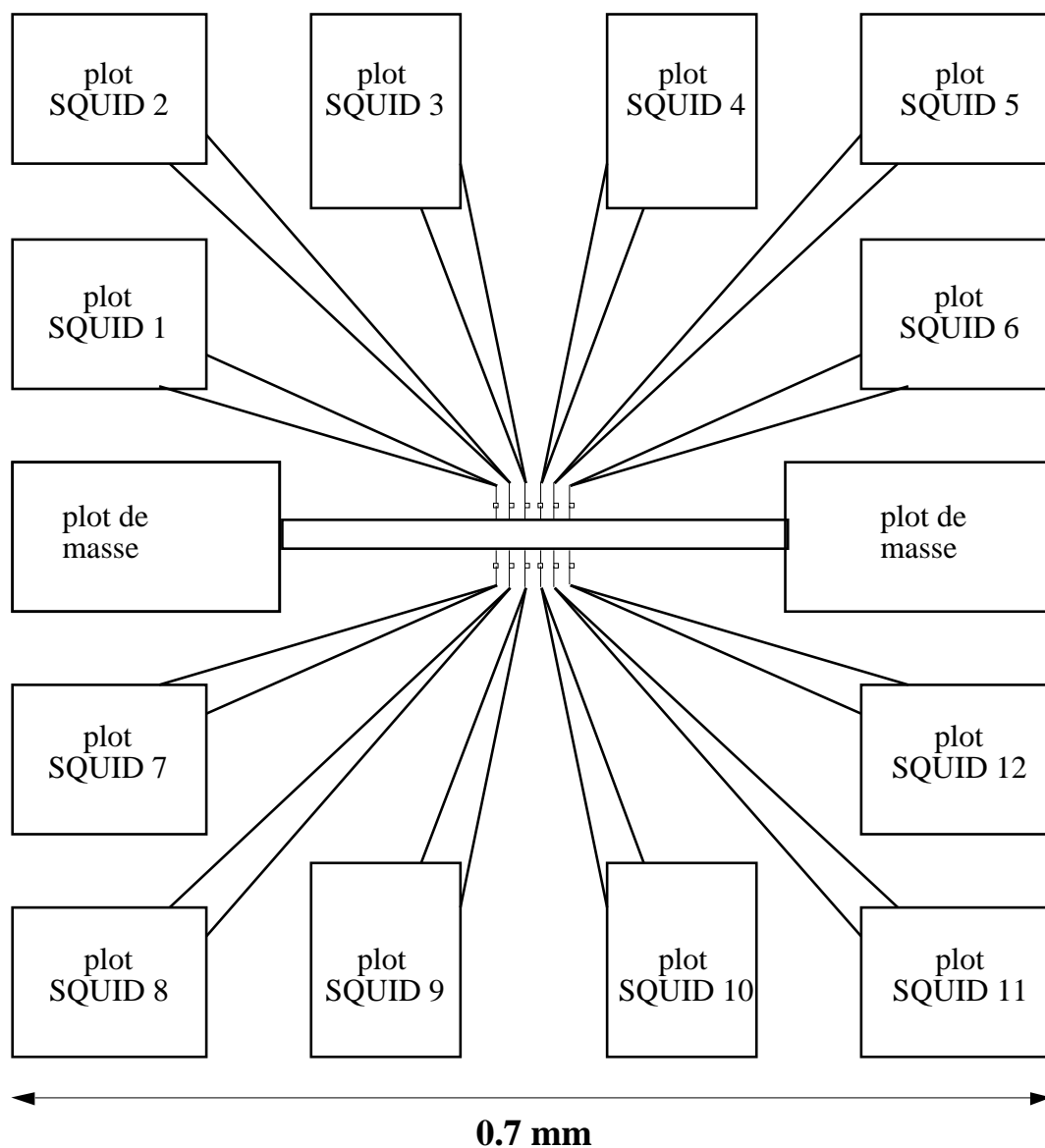


Fig. II.7.2 : Motif le plus utilisé pour connecter efficacement 12 SQUID.

Chapitre III : Résultats expérimentaux

Dans ce troisième chapitre sont présentés et détaillés de manière systématique les différents échantillons que nous avons étudiés.

Cette partie commence par l'explication de notre protocole de mesure en ce qui concerne les propriétés quasi-statiques et dynamiques. Sont ensuite répertoriés les cinq grands types de cycles d'hystérésis observés selon les matériaux et les systèmes étudiés.

En ce qui concerne nos différents échantillons, nous avons tout d'abord étudié des particules submicroniques elliptiques ou rectangulaires élaborées par lithographie électronique. Nous avons tout particulièrement approfondi notre étude avec les particules de Co nanocristallisé. Ces particules, seules ou en réseau, ont montré différents comportements : rotation uniforme ou retournement non uniforme de l'aimantation, particules possédant une paroi. Ce qui concerne les autres particules (Co, Ni, Fe, etc.), amorphes ou cristallisées, les résultats principaux ne sont pas présentés dans cette partie mais dans l'annexe 5.

Nous avons aussi étudié des fils magnétiques qui sont des particules intéressantes par leur anisotropie de forme maximale. Le lecteur rapide pourra après la partie concernant les fils passer directement à la discussion des mesures dans le chapitre IV.

Dans l'annexe 6 sont présentées les premières mesures effectuées sur des particules de Co monocristallin avec une taille d'environ 20 nm.

Enfin, les plus petits systèmes que nous ayons étudiés sont des agrégats cristallisés de Ni, Co et Fe. Cette étude a été commencée en vue de l'isolation d'un seul agrégat et donc de l'étude d'un échantillon pratiquement sans défauts, car cristallisé, et présentant peu d'impuretés.

III.1 Protocole de mesure

Nous présentons ici un protocole de mesure appliqué à plusieurs systèmes magnétiques (particules, fils et couches minces). On peut séparer ce protocole en deux parties : (i) propriétés quasi-statiques et (ii) propriétés dynamiques.

III.1.1 Propriétés quasi-statiques

a) Cycle d'hystérésis

Pour caractériser l'échantillon, nous avons mesuré tout d'abord des cycles d'hystérésis, i.e. la réponse de l'aimantation de l'échantillon à des variations du champ appliqué dans son plan, parallèlement ou perpendiculairement à l'axe de facile aimantation de l'échantillon. Généralement, nous avons fait varier le champ magnétique entre deux valeurs extrémales, à des vitesses de balayage constantes entre 0.01 mT/s et 100 mT/s. L'aimantation de l'échantillon est mesurée à l'aide d'un SQUID, placé au-dessus ou au-dessous de l'échantillon, qui mesure le flux magnétique créé par la particule et traversant la boucle de SQUID. Ce flux est à peu près proportionnel à la projection de l'aimantation de la particule sur l'axe x dans la figure III.1.1. En particulier, pour des angles φ faibles, le flux est proportionnel à l'aimantation, le facteur de proportionnalité étant donné par le facteur de couplage calculé dans le paragraphe II.3.3.

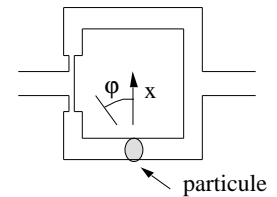


Fig. III.1.1 : SQUID avec une particule magnétique.

b) Dépendance angulaire du retournement de l'aimantation

Nous avons étudié la dépendance angulaire du retournement de l'aimantation pour obtenir des informations sur le type de retournement. Nous avons enregistré d'abord des cycles d'hystérésis en fonction de l'angle φ du champ magnétique appliqué dans le plan du SQUID. L'angle φ est toujours mesuré entre l'axe de facile aimantation et la direction du champ appliqué. Ensuite, dans le cas de sauts d'aimantation, nous avons mesuré la dépendance angulaire des distributions du champ de retournement. Enfin, nous avons essayé d'ajuster les mesures avec les modèles courants de retournement de l'aimantation (voir le chapitre I).

c) Champ constant tournant

Dans le but d'obtenir des informations sur le type de retournement, il est aussi intéressant d'étudier la réponse de l'aimantation de la particule par rapport à un champ constant tournant. De telles études n'ont pas pu être effectuées pendant la durée de ma thèse à cause de la capacité modeste de l'ordinateur, mais elles vont être réalisées prochainement.

III.1.2 Propriétés dynamiques

Pour étudier la dynamique de retournement de l'aimantation, nous avons choisi deux méthodes différentes :

(i) mesure de la distribution du champ de retournement en fonction de la température et la vitesse de balayage ;

(ii) mesure de la probabilité de retournement à un certain champ constant en fonction de la température.

a) Champ de retournement de l'aimantation H_{sw} et sa distribution

Nous avons étudié en détail les champs de retournement de l'aimantation H_{sw} (sw pour l'anglais switching) des cycles d'hystérésis des types A, B et C (voir le paragraphe III.2). Pour différentes températures et vitesses de balayage, nous avons mesuré H_{sw} 100 à 1000 fois pour connaître sa distribution. A partir de cette distribution, nous avons calculé la moyenne arithmétique \bar{H}_{sw} et la largeur σ qui est donnée par la racine carrée de la variance (écart quadratique moyen). Ensuite, nous avons étudié ces deux valeurs statistiques en fonction de la température et de la vitesse de balayage du champ. Dans les graphes, les barres d'erreur indiquent la largeur σ de la distribution de H_{sw} .

Nous avons comparé nos mesures avec le modèle simple de Kurkijärvi (cf. I.4, en particulier pour la définition des paramètres) :

$$\bar{H}_{sw} \cong H_{sw}^0 \left(1 - \left[\frac{kT}{E_0} \ln \left(\frac{cT}{vh^{\alpha-1}} \right) \right]^{1/\alpha} \right) \quad \text{où} \quad c = \frac{k H_{sw}^0 \Gamma_0}{\alpha E_0} \quad \text{et} \quad h = 1 - \frac{H}{H_{sw}^0} \quad (1)$$

Dans certain cas, nous avons ajusté la formule (1) à nos mesures. Pour ceci, il faut tracer \bar{H}_{sw} en fonction de $x = \left[T \ln \left(\frac{cT}{vh^{\alpha-1}} \right) \right]^{1/\alpha}$. Finalement, on compare les mesures de σ avec la prédiction du modèle de Kurkijärvi donnée par la formule suivante :

$$\sigma \cong H_{sw}^0 \frac{1}{\alpha} \left(\frac{kT}{E_0} \right)^{1/\alpha} \left[\ln \left(\frac{cT}{vh^{\alpha-1}} \right) \right]^{(1-\alpha)/\alpha} \quad (2)$$

b) Probabilité de retournement de l'aimantation

Pour une température donnée, nous avons augmenté rapidement le champ jusqu'à une certaine valeur. Ensuite, le champ appliqué restant constant, nous avons mesuré le temps d'attente nécessaire pour que l'aimantation se retourne, ce temps est appelé le temps de retournement t_{sw} . Ceci est répété 100 à 200 fois pour obtenir des histogrammes. L'intégration et la normalisation des t_{sw} donnent la probabilité de retournement $P(t)$. Nous avons mesuré $P(t)$ pour différents champs et températures.

Nous avons comparé les mesures de $P(t)$ avec un modèle basé sur l'activation thermique de type Arrhenius :

$$P(t) = e^{-(\Gamma t)^\beta} \quad \text{avec} \quad \Gamma = \Gamma_0 e^{-E/kT}$$

Ici $\Gamma = 1/\tau$, où τ est le temps de retournement moyen et β est un paramètre qui exprime l'écart des mesures par rapport à la loi d'Arrhenius pour laquelle $\beta=1$.

III.2 Les différents types de cycles d'hystérésis [Wernsdorfer 1995/1-2]

Avant d'étudier le retournement de l'aimantation plus en détail sur nos différents échantillons, nous allons présenter d'abord brièvement les différents types de cycles d'hystérésis. Nous avons choisi 5 types différents de cycles d'hystérésis résumant tous les cycles d'hystérésis mesurés sur les particules composées des différents matériaux. L'ordre choisi va d'un système simple (particule quasi-mono-domaine) aux systèmes complexes (particules multi-domaines). Les propriétés présentées dans ce paragraphe sont indépendantes de la vitesse de balayage du champ et de la température (< 7 K).

Type A:

La caractéristique de ce type de cycles d'hystérésis est que l'aimantation se retourne complètement par un seul saut d'aimantation dans un temps inférieur à $100 \mu\text{s}$ (limite actuelle de l'électronique du SQUID). Avant et après le saut, l'aimantation varie réversiblement. Ce comportement est très proche de celui d'une particule mono-domaine, ce qui est prévu par le modèle de retournement uniforme de Stoner-Wohlfarth (cf. I.1). Cependant, pour la plupart des particules, nous avons observé un changement du module d'aimantation avant le retournement. Ceci est un indice pour un retournement non uniforme. Nous pensons que le retournement de l'aimantation est initié par un centre de nucléation composé d'environ 10^4 spins et qu'il est suivi par la propagation rapide d'une paroi retournant les 10^8 spins de la particule. Les mesures de la dynamique de retournement de l'aimantation ont confirmé que le volume d'activation déclenchant le retournement est beaucoup plus petit que le volume de la particule (cf. III.3.2).

Les particules possèdent deux configurations de l'aimantation minimisant l'énergie magnétostatique : soit parallèle, soit antiparallèle à l'axe de facile aimantation de la particule. On peut très bien voir la stabilité de ces deux configurations en appliquant le champ à un certain angle par rapport à l'axe facile. Par exemple, pour la particule de Co dans la figure III.2.1, le retournement de l'aimantation se produit en deux sauts pour les angles supérieurs à 16° (cf. III.3.2).

Les conditions nécessaires pour avoir un retournement de ce type sont une petite taille de la particule et une anisotropie importante (de forme ou cristalline) bien définie dans une direction.

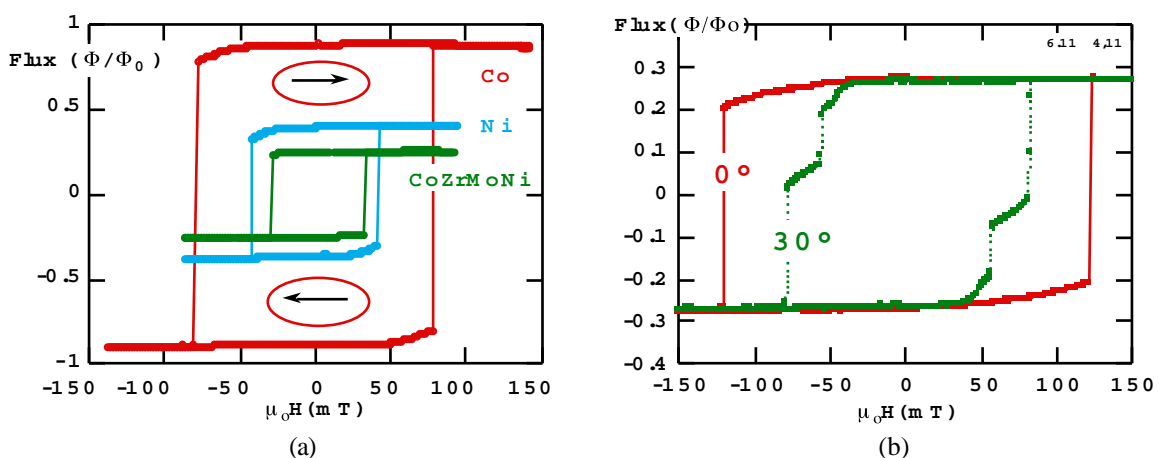


Fig. III.2.1 : (a) Trois cycles d'hystérésis de type A : particules de Ni, Co et $\text{Co}_{81}\text{Zr}_9\text{Mo}_8\text{Ni}_2$ avec une taille d'environ $200 \times 100 \times 30 \text{ nm}^3$. (b) Le cycle d'hystérésis d'une particule de Co est de type A pour $\varphi = 0^\circ$ et de type B pour $\varphi = 30^\circ$.

Type B:

Ce type de cycle d'hystérésis est mesuré sur des particules plus grandes que celle du type A. La configuration, venant d'un état saturé, est stable jusqu'à champ nul. Il faut alors appliquer un champ antiparallèle à l'aimantation pour que l'aimantation commence à se retourner par plusieurs sauts qui sont reproductibles (figure III.2.2). Ici, une ou plusieurs parois se propagent entre des barrières d'énergie de configuration et / ou des défauts. Les conditions nécessaires pour avoir un retournement de ce type sont une taille suffisamment grande pour pouvoir stabiliser une paroi dans la particule, un champ de nucléation de la paroi assez important et un champ démagnétisant faible.

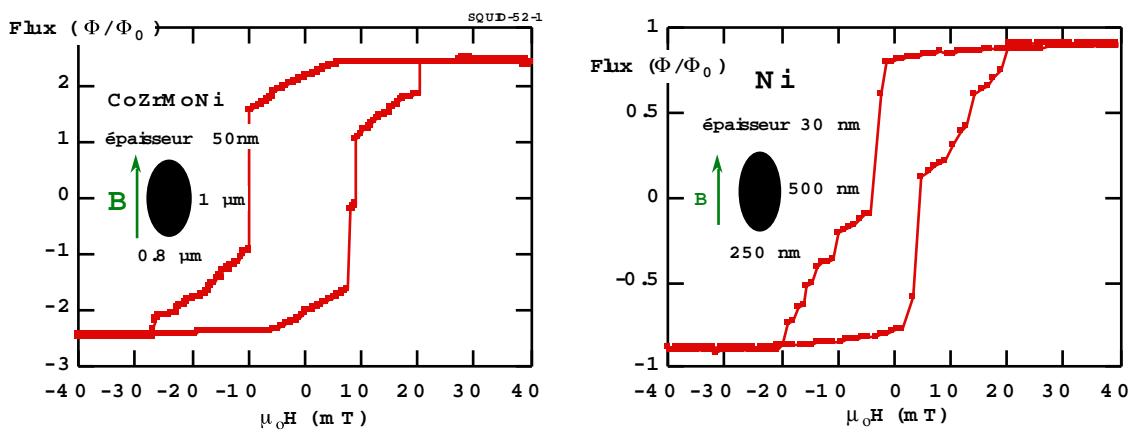


Fig. III.2.2 : Cycles d'hystérésis de type B : particule de CoZrMoNi et Ni.

Type C:

Ce cycle d'hystérésis est très proche du type B, mais ici l'aimantation commence à se retourner avant atteindre le champ nul, i.e. la configuration de l'aimantation saturée n'est pas stable à champ nul (voir la figure III.2.3). Les conditions nécessaires pour avoir un retournement de ce type sont une taille suffisamment grande pour pouvoir stabiliser une paroi dans la particule (comme pour le type B), un champ de nucléation de la paroi faible et un champ démagnétisant important.

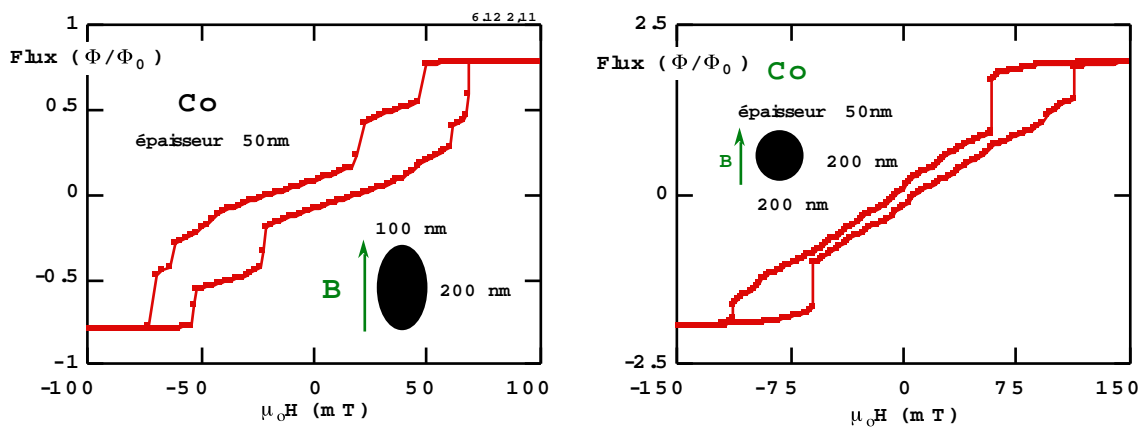


Fig. III.2.3 : Cycles d'hystérésis de type C de particules de Co.

Type D :

Le cycle d'hystérésis de type D est caractérisé par un grand nombre de très petits sauts d'aimantation qui ne sont pas reproductibles i.e. deux cycles d'hystérésis faits dans les mêmes conditions présentent des sauts d'aimantation complètement différents. Nous avons mesuré ce type de cycle sur les particules faites en terres rares (figure III.2.4) et pour des ensembles d'agrégats (figure III.2.5). Ces matériaux possèdent des anisotropies magnétocristallines importantes et souvent distribuées au hasard. La longueur de corrélation ferromagnétique des terres rares est souvent faible (typiquement entre 1 à 10 nm). Ceci implique que les sauts d'aimantation sont à l'échelle nanoscopique i.e. qu'ils sont beaucoup plus petits que ceux des métaux de transition de configuration électronique 3d comme Co, Ni et Fe. Contrairement à ces matériaux, les cycles d'hystérésis des particules faites en terres rares sont relativement indépendants de la forme des particules.

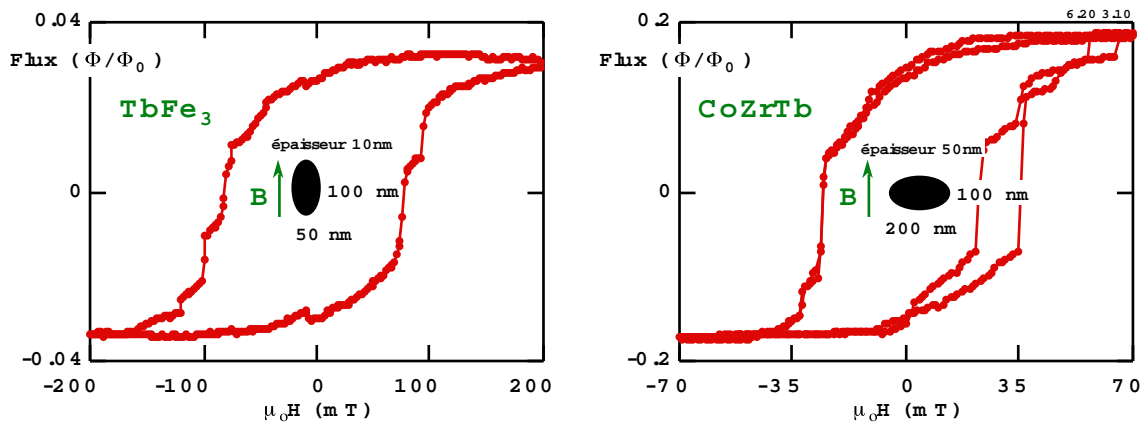


Fig. III.2.4 : Cycles d'hystérésis de type D de particules de TbFe_3 et de CoZrTb .

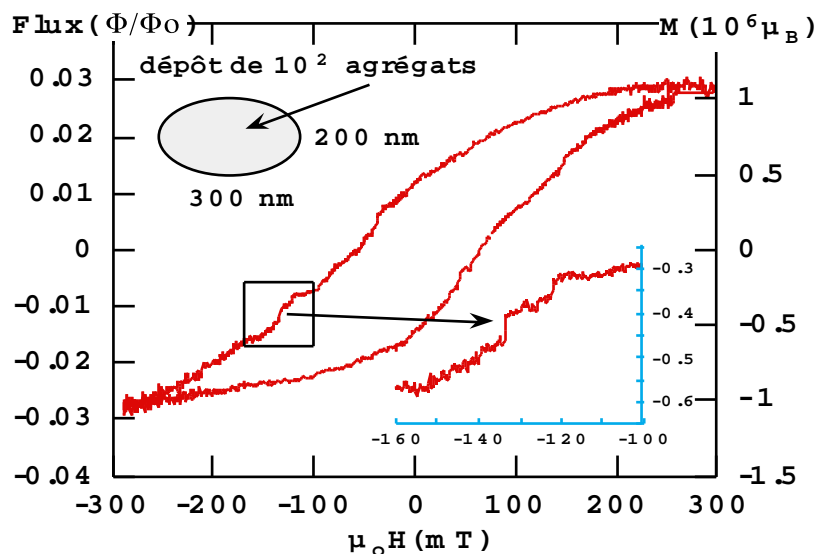


Fig. III.2.5 : Cycle d'hystérésis du type D d'un ensemble de 10^2 agrégats de Co (cf. III.5).

Cycle d'hystérésis mineur :

Un cycle d'hystérésis mineur est un cycle d'hystérésis avec un champ appliqué maximal qui est inférieur au champ de saturation. Un cycle d'hystérésis mineur avec un seul saut d'aimantation est dû soit au changement d'une configuration des parois à une autre configuration (figure III.2.6), soit au déplacement d'une paroi entre deux centres de piégeage (figure III.2.7). A l'aide de cycles mineurs, on peut étudier le retournement d'une petite partie de la particule sans faire intervenir la complexité de la particule entière. On ne peut faire un tel cycle que sur les particules ayant un retournement de l'aimantation de types B ou C.

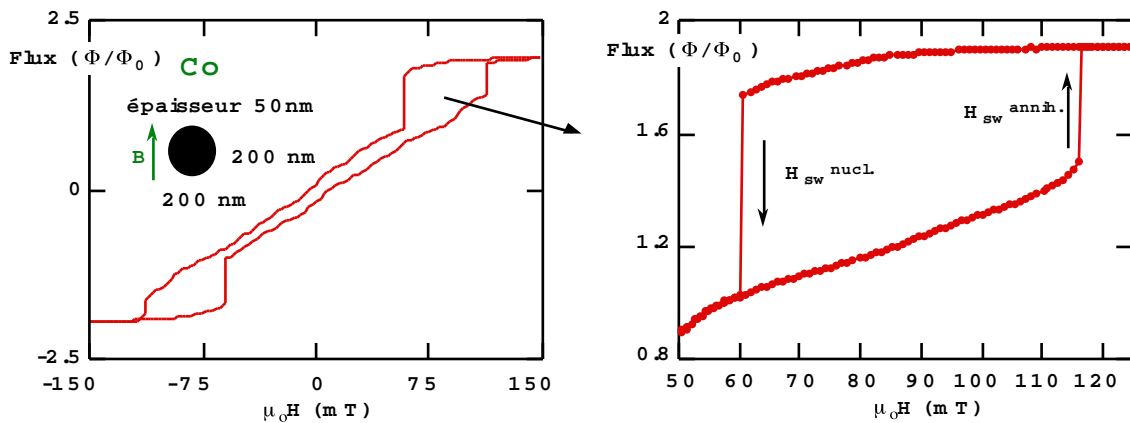


Fig. III.2.6 : Cycle d'hystérésis de type C d'une particule de Co. L'agrandissement montre un cycle mineur correspondant à la nucléation et à l'annihilation d'une paroi.

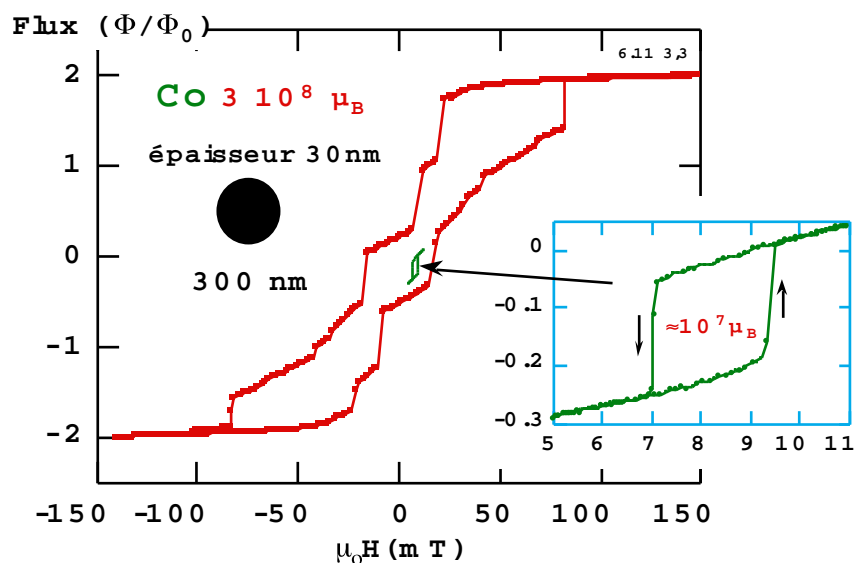


Fig. III.2.7 : Cycle d'hystérésis de type C d'une particule de Co. L'agrandissement montre un cycle mineur.

III.3 Particules submicroniques élaborées par lithographie électronique

Nous abordons maintenant les comportements des différents échantillons que nous avons étudiés. En ce qui concerne nos différents échantillons, nous avons tout d'abord étudié des particules submicroniques elliptiques ou rectangulaires élaborées par lithographie électronique (cf. II.5). Ces particules ont des contours elliptiques ou rectangulaires avec des dimensions comprises entre 50 nm et 1 μm et des épaisseurs allant de 5 à 50 nm. Grâce à la grande performance de la lithographie électronique et à la technique experte de Dominique Mailly, nous avons pu placer ces particules sur la boucle des SQUID avec une précision de quelques dizaines de nanomètres.

A la recherche d'une "particule idéale", nous avons essayé plusieurs matériaux et techniques d'élaboration des couches magnétiques. Dans le tableau III.3.1, nous avons résumé tous les matériaux et leurs caractéristiques. Dans les paragraphes suivants, nous présentons uniquement quelques résultats pour le matériau Co nanocristallisé. Quelques résultats des autres matériaux sont présentés dans l'annexe 5. Une comparaison entre les différents matériaux est donnée dans le chapitre IV.

Nous avons particulièrement bien étudié les particules de Co nanocristallisé. Nous avons pu mettre en évidence pour certaines une rotation pratiquement uniforme de l'aimantation. Pour d'autres, part contre, le retournement est non uniforme. Nous avons aussi étudié des particules possédant une paroi. Et nous avons enfin étudié un réseau de particules de Co nanocristallisé.

Le dépôt magnétique de Co nanocristallisé a été effectué au laboratoire Louis Néel par Luc Thomas. Il a utilisé une pulvérisation cathodique ("sputtering"). La température du substrat pendant le dépôt était celle de l'azote liquide. L'analyse par microscopie électronique a montré des traces de carbone et d'argon dans ces couches. L'étude par rayon X a mis en évidence une structure nanocristallisée (5 - 10 nm). Les couches magnétiques sont très douces. Le champ coercitif est d'environ 2 mT à 4 K (cf. V.2). Par conséquent, l'anisotropie des particules élaborées à partir de ces couches avec la technique de "lift-off" est essentiellement donnée par l'anisotropie de forme.

Paragraphe	Matériau	Morphologie	Elaboration	Laboratoire
III.3	Co	nanocristallisé	pulvérisation 70 K	L. Néel
A.5.1	Co	polycristallisé	pulvérisation 70 K	L. Néel
A.5.2	Co	nanocrist. poreux	agrégats	CNRS - Lyon
A.5.3	Ni	polycristallisé	effet Joule	L2M - Bagneux
A.5.4	Fe	nanocristallisé	effet Joule	LMPSM - Nancy
A.5.5	Fe	monocristallé	épitaxie	CENG - Grenoble
A.5.6	$\text{Co}_{81}\text{Zr}_9\text{Mo}_8\text{Ni}_2$	amorphe	pulvérisation 300 K	LMMM - Meudon
A.5.7	$\text{Co}_{94}\text{Zr}_5\text{Tb}_1$	amorphe	pulvérisation 300 K	LMMM - Meudon
A.5.8	TbFe_3	polycristallisé	pulvérisation 70 K	L. Néel

Tab. III.3.1 : Résumé des différents matériaux utilisés pour l'élaboration des particules fabriquées par lithographie électronique.

III.3.1 Particule de Co nanocristallisé avec un retournement de l'aimantation proche du modèle de Stoner-Wohlfarth [Wernsdorfer 1995/2]

Dans ce paragraphe sont présentées des mesures de retournement de l'aimantation de la particule (6.11 2,11) de Co nanocristallisé. Les dimensions de la particule sont d'environ $70 \times 50 \times 25 \text{ nm}^3$. La particule est protégée contre l'oxydation par une couche de Si d'épaisseur 10 nm et est passivée par une couche d'oxyde de Co sur ses bords.

a) Dépendance angulaire du champ de retournement

Pour vérifier le caractère mono-domaine de la particule, nous avons étudié la dépendance angulaire du champ de retournement. Le champ magnétique est appliqué dans le plan de la particule (i.e. dans le plan du SQUID) et fait un angle φ avec le grand axe de la particule. La figure III.3.1.1 montre trois cycles d'hystérésis pour différents angles φ . La courbure inhabituelle des cycles est due au couplage particule - SQUID (cf. figure I.1.3). Dans la figure III.3.1.2, nous avons tracé la variation du champ de retournement en fonction de l'angle φ . Les lignes correspondent à un ajustement du modèle de Stoner-Wohlfarth à nos données.

A cause de la symétrie dans le modèle de Stoner-Wohlfarth, il est seulement nécessaire de discuter l'intervalle de, par exemple, 0° à 90° . Ceci n'est pas possible pour cette particule de Co. Cependant, la figure III.3.1.2 montre qu'on peut se limiter, par exemple, à l'intervalle de -90° à 90° . Pour les angles $-90^\circ < \varphi < -22^\circ$ et $32^\circ < \varphi < 90^\circ$, l'ajustement au modèle de Stoner-Wohlfarth, avec un rapport des axes respectivement de $1 : 0.62$ et $1 : 0.53$, est presque parfait. Pour les angles compris entre ces deux intervalles, $-22^\circ < \varphi < 32^\circ$, on observe une transition entre ces deux rapports des axes. De plus, pour les angles $0^\circ < \varphi < 32^\circ$, un petit saut d'aimantation (croix dans la figure III.3.1.2) a lieu

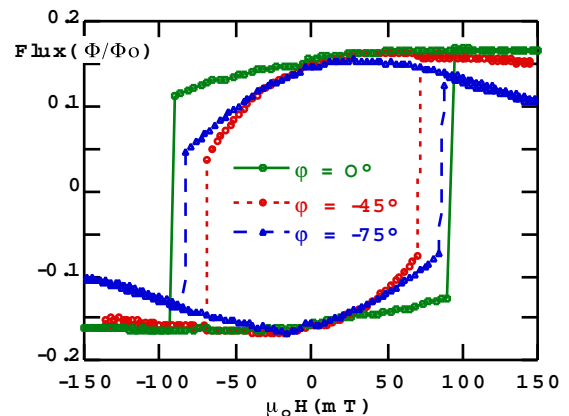


Fig. III.3.1.1 : Cycles d'hystérésis de la particule (6.11 2,11) de Co pour trois directions du champ appliqué, $\mu_0 dH/dt = 10 \text{ mT/s}$.

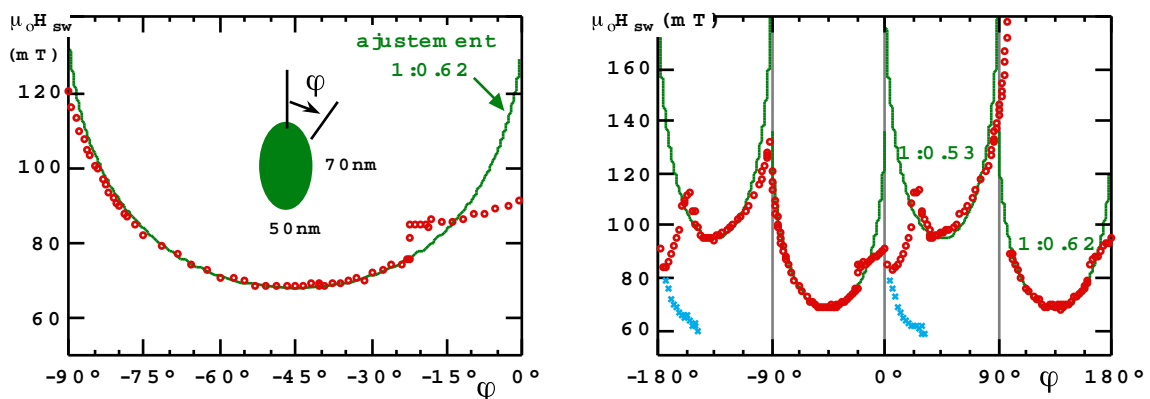


Fig. III.3.1.2 : Dépendance angulaire du champ de retournement de la particule (6.11 2,11) de Co. Les points indiquent le champ de retournement et les croix indiquent un petit saut d'aimantation avant le retournement de l'aimantation. Les lignes correspondent aux ajustements du modèle de Stoner-Wohlfarth aux données expérimentales.

avant le grand saut de retournement de l'aimantation (points dans la figure III.3.1.2).

A partir des rapports des axes trouvés par l'ajustement du modèle de rotation uniforme de Stoner-Wohlfarth aux champs de retournement, on peut calculer les cycles d'hystérésis théoriques (cf. I.1) et les comparer aux cycles d'hystérésis mesurés. La figure III.3.1.3 montre quelques-unes des comparaisons. Les lignes en pointillés sont calculées à partir du modèle. On remarque que les courbures expérimentales avant les sauts d'aimantation sont toujours plus prononcées que celles du modèle. En particulier, pour $\varphi = 0$, le modèle prédit un cycle carré, ce qui n'est pas le cas de nos mesures.

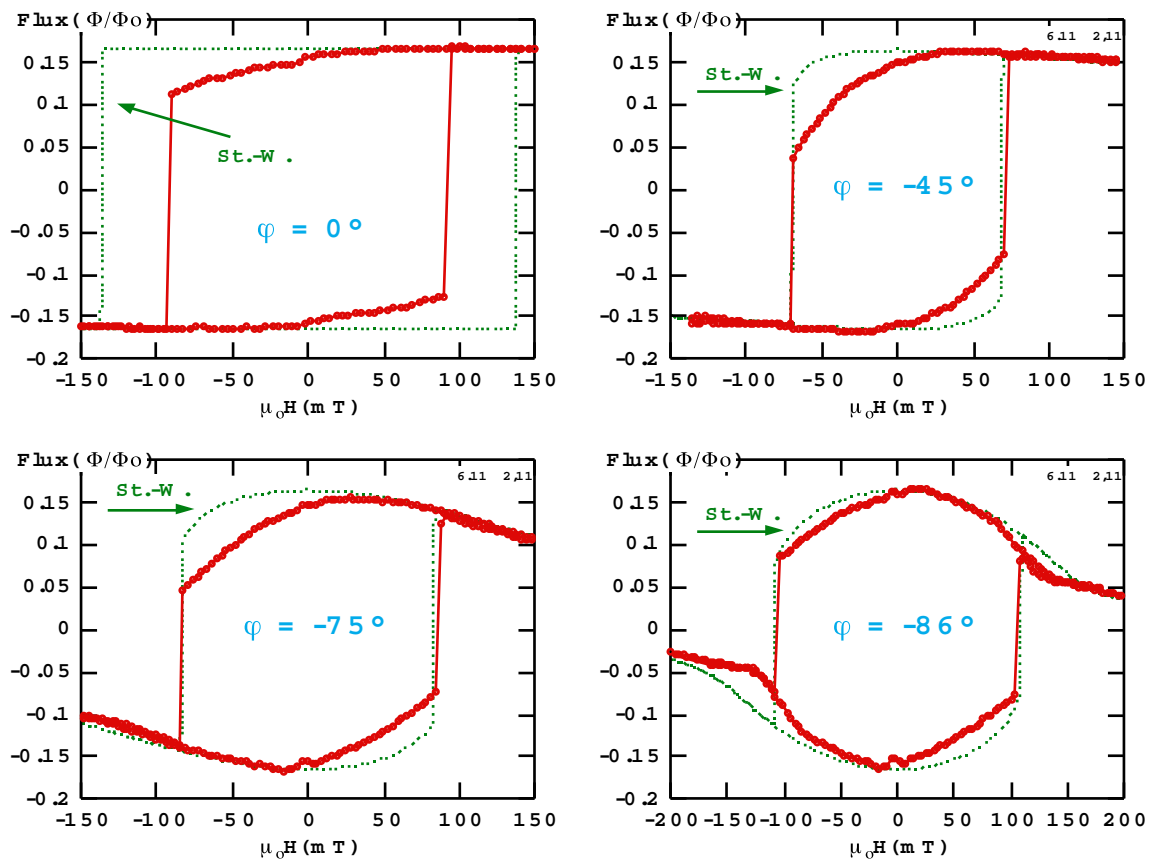


Fig. III.3.1.3 : Cycles d'hystérésis d'une particule de Co pour trois angles. Les cycles d'hystérésis calculés à partir du modèle de Stoner-Wohlfarth sont tracés en pointillés.

b) Discussion de l'ajustement du modèle de Stoner-Wohlfarth

Les mesures de la dépendance angulaire du champ de retournement d'une particule de Co ($70 \times 50 \times 25 \text{ nm}^3$) ont montré un comportement qui est très proche du modèle de rotation uniforme de Stoner-Wohlfarth. Cependant, il y a essentiellement quatre déviations à ce modèle :

(i) L'étude de la dépendance angulaire du champ de retournement a révélé deux rapports d'axes d'ellipses différents. Ceci pourrait être dû à un défaut de forme comme présenté dans la figure III.3.1.4. Dans ce cas, pour les deux sens de rotation de l'aimantation, on peut imaginer deux formes d'ellipses effectives tracées en lignes pointillées. Avec ce modèle, le petit saut d'aimantation est dû à un saut entre les deux formes d'ellipses effectives.

(ii) La déviation du champ de retournement pour les angles φ faibles peut être due à une formation de spins non colinéaires. En effet, la particule est encore relativement grande pour avoir une rotation uniforme des spins. De plus, si le défaut de forme existe, le champ total ne peut plus être uniforme dans la particule, entraînant aussi une formation de spins non colinéaires.

(iii) De la même façon que pour la déviation (ii), la formation de spins non colinéaires peut provoquer une courbure plus prononcée du cycle d'hystérésis que dans le cas d'une rotation uniforme des spins.

(iv) La hauteur de la barrière calculée à partir du modèle est $E_0 = \mu_0 VM_S^2 (N_b - N_a) / 2$ où V est le volume de la particule, M_S l'aimantation de saturation, N_b et N_a les facteurs de désaimantation. La hauteur de la barrière trouvée à partir des mesures de la dynamique de l'aimantation (cf. III.3.2b), est par contre deux ordres de grandeur plus faible que la hauteur calculée. La raison de cette déviation vient de ce que le retournement est probablement déclenché par un centre de nucléation de dimensions beaucoup plus petites que celles de la particule.

c) Dynamique du champ de retournement

Nous avons étudié la dynamique de retournement de l'aimantation en mesurant la distribution du champ de retournement en fonction de la température et de la vitesse de balayage. Les résultats sont présentés dans le paragraphe III.3.2 afin de les comparer avec d'autres particules. Un résultat important de ces mesures est que les fluctuations du champ de retournement sont trop grandes pour être seulement d'origine thermique (voir la figure III.3.2.5).

Nous n'avons pas mesuré la probabilité de retournement pour cette particule car les fluctuations du champ de retournement étaient trop importantes. Le temps d'acquisition des données aurait été trop long.

Par la suite, nous avons essayé de trouver une autre origine possible pour les fluctuations de H_{SW} .

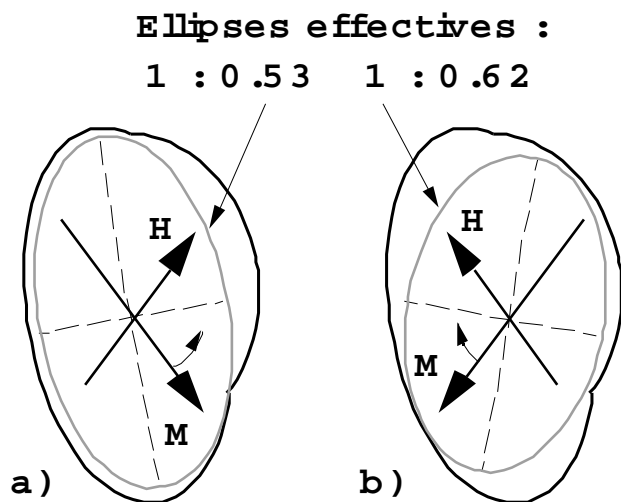


Fig. III.3.1.4 : Schéma du contour de la particule de Co (lignes pleines). Les flèches H et M indiquent respectivement la direction du champ appliqué et la direction de l'aimantation.

d) Largeur σ de la distribution de H_{sw}

Dans ce paragraphe, nous regardons plus en détail la nucléation du retournement de l'aimantation. La figure III.3.1.5a montre un cycle d'hystérésis pour un champ appliqué parallèle au grand axe de la particule ($\varphi \approx 0$). Les deux régions intéressantes sont marquées par un rond. Pour mieux comprendre les grandeurs mises en jeu, nous avons converti le flux en aimantation en utilisant un facteur approximatif de $3.6 * 10^{-7} \mu_B / \Phi_0$ déterminé expérimentalement.

La figure III.3.1.5b montre les deux distributions des champs de retournement enregistrées à l'aide de la méthode décrite dans le paragraphe II.2.4. Les valeurs du champ de retournement moyen \bar{H}_{sw} et les largeurs σ des distributions sont données dans la figure III.3.1.5b. Les valeurs de σ sont en fait trop grandes pour être seulement d'origine thermique (figure III.3.2.5). Plus loin, nous allons suggérer une explication possible de ce comportement.

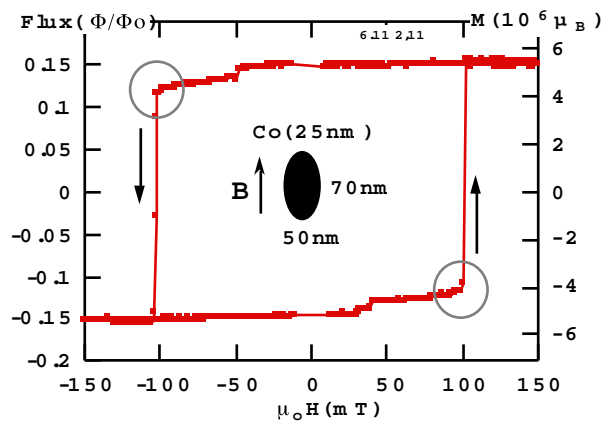


Fig. III.3.1.5a : Cycle d'hystérésis d'une particule de Co nanocristallisé, à $T = 0.2$ K, $\varphi \approx 0$.

Le signal de la variation du flux est converti en aimantation ($3.6 * 10^{-7} \mu_B / \Phi_0$).

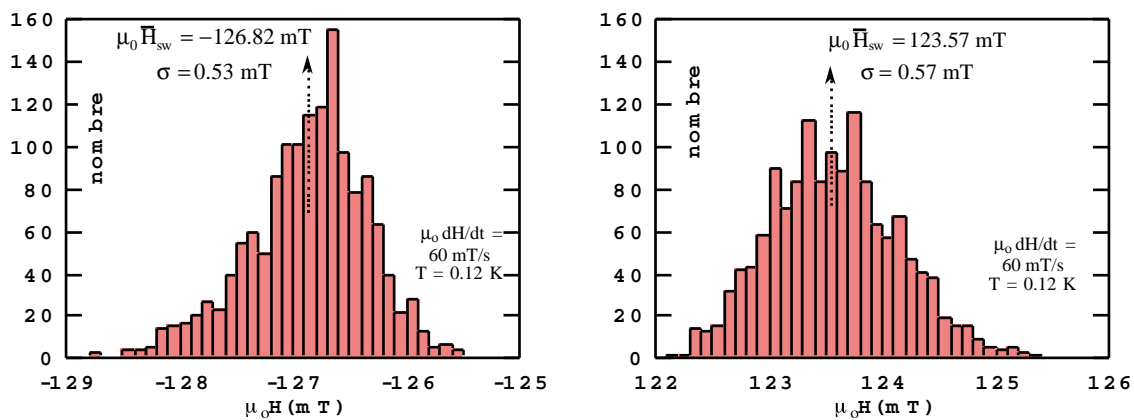


Fig. III.3.1.5b : Histogrammes de 1500 champs de retournement enregistrés à l'aide de la méthode décrite au paragraphe II.2.4.

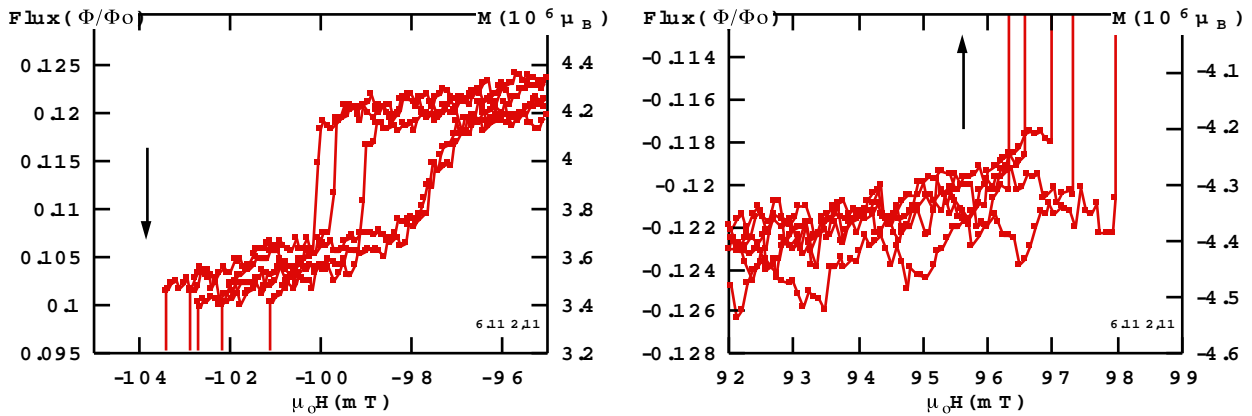


Fig. III.3.1.5c : Zoom sur la région de deux sauts de cinq cycles d'hystérésis enregistrés à l'aide de la méthode de compensation (paragraphe II.2.2), $\mu_0 dH/ dt = 0.5 \text{ mT} / \text{s}$. L'aimantation avant le saut n'est pas exactement la même pour les cinq cycles d'hystérésis.

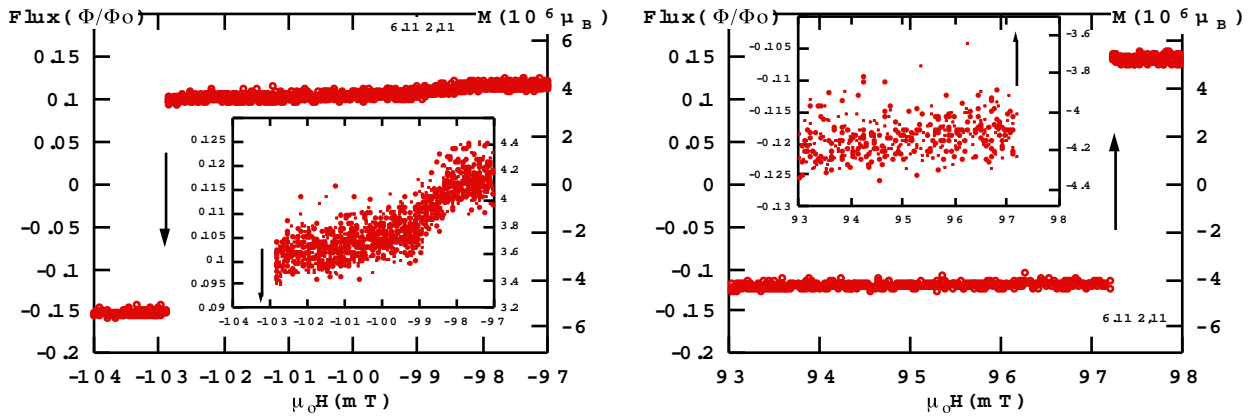


Fig. III.3.1.5d : Zoom sur la région de deux sauts d'un cycle d'hystérésis enregistrés à l'aide de la méthode de mesure du courant critique direct (paragraphe II.2.1). Pas une mesure de I_C ne tombe dans la région entre les états avant et après le saut, i.e. le temps de retournement est beaucoup plus court que le temps entre deux mesures de I_C .

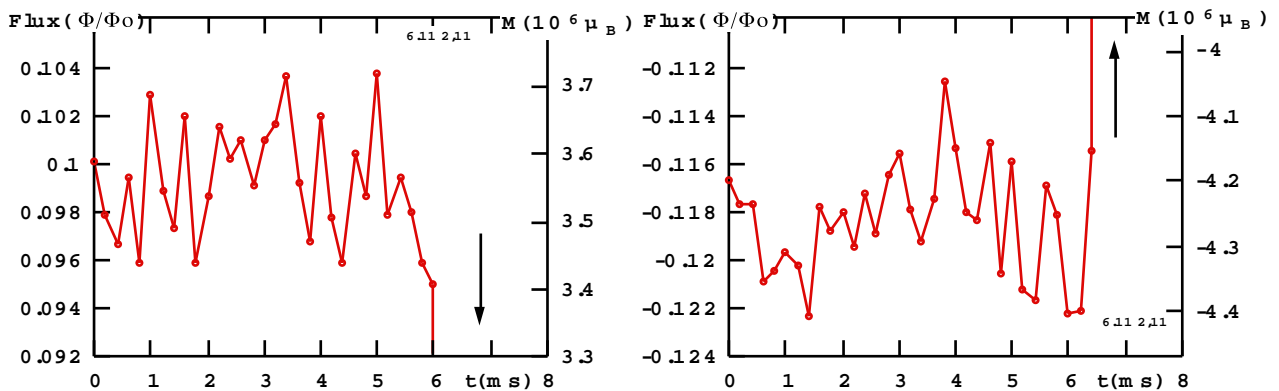


Fig. III.3.1.5e : Zoom sur la région de deux sauts d'un cycle d'hystérésis enregistrés à l'aide de la méthode de mesure du courant critique direct (paragraphe II.2.1). Les mesures de I_C sont tracées en fonction du temps.

Les figures III.3.1.5c montrent un agrandissement de la région avant le retournement de cinq cycles d'hystérésis enregistrés à l'aide de la méthode de compensation (cf. II.2.2). On remarque que l'aimantation avant les sauts n'est pas exactement la même pour les cinq cycles d'hystérésis. Les fluctuations d'aimantation sont de l'ordre de $10^5 \mu_B$ (ce qui est proche de la limite de sensibilité de ce SQUID) i.e. 1 à 2 % de l'aimantation totale de la particule. D'autre part, il y a un petit saut d'aimantation avant le retournement d'aimantation pour H_{SW} négatif. Ce petit saut se produit parfois de manière douce, mais aussi parfois par un saut rapide. Ces phénomènes suggèrent que la configuration des spins avant le retournement n'est pas toujours la même pour les différents cycles d'hystérésis. Ceci, ajouté à l'effet thermique, est sans doute responsable de la largeur de la distribution des champs de retournement. Nous donnons une discussion plus détaillée de ce phénomène dans le chapitre IV.

e) Vitesse de retournement de l'aimantation

Actuellement, la méthode possédant la meilleure résolution en temps consiste à mesurer directement le courant critique (paragraphe II.2.1). Dans les figures III.3.1.5d, nous présentons un agrandissement de la région de deux sauts d'un cycle d'hystérésis enregistrés à l'aide de cette méthode. Aucune mesure de I_c ne tombe dans la région entre les états avant et après le saut, i.e. le temps de retournement est beaucoup plus court que le temps entre deux mesures de I_c qui, lui, est supérieur à 100 μs . Aussi, les fluctuations de I_c sont trop grandes pour pouvoir répondre à la question de savoir si l'aimantation commence à se retourner avant le grand saut (voir la figure III.3.1.5e). Donc, avec la technique actuellement utilisée nous ne pouvons pas donner de réponses aux questions concernant la vitesse de retournement.

f) Conclusion

Avec cette première particule de Co nanocristallisé, nous avons mis en évidence un retournement de l'aimantation qui est proche du retournement de l'aimantation décrit par le modèle de Stoner-Wohlfarth (rotation uniforme). Le fait que la configuration des spins avant le retournement ne soit pas toujours la même pour les différents cycles d'hystérésis a une influence sur la largeur σ de la distribution de H_{SW} . Nous avons montré que ce retournement se fait en un temps inférieur à 100 μs .

Dans ce qui suit nous avons étudié une particule similaire mais un peu plus grande et qui a montré un retournement non uniforme de l'aimantation.

III.3.2 Particule de Co nanocristallisé avec un retournement de l'aimantation non uniforme [Wernsdorfer 1995/2]

Dans ce paragraphe, nous présentons des mesures de retournement de l'aimantation des particules (6.11 4,11) et (6.11 1,11) de Co nanocristallisé identique à la particule (6.11 2,11) du paragraphe III.3.1 sauf que les dimensions des particules sont respectivement d'environ $150 \times 80 \times 25 \text{ nm}^3$ et $150 \times 70 \times 25 \text{ nm}^3$, i.e. ces particules sont un peu plus grandes que la particule (6.11 2,11).

a) Dépendance angulaire du champ de retournement

Pour vérifier le caractère mono-domaine des particules, nous avons étudié la dépendance angulaire du champ de retournement. La figure III.3.2.1 montre quelques cycles d'hystérésis pour différents angles φ entre le grand axe de la particule et le champ appliqué. La courbure inhabituelle du cycle est due au couplage particule - SQUID. Dans la figure III.3.2.2, nous avons tracé la variation du champ de retournement en fonction de l'angle φ . Les cycles d'hystérésis ne présentent qu'un seul saut

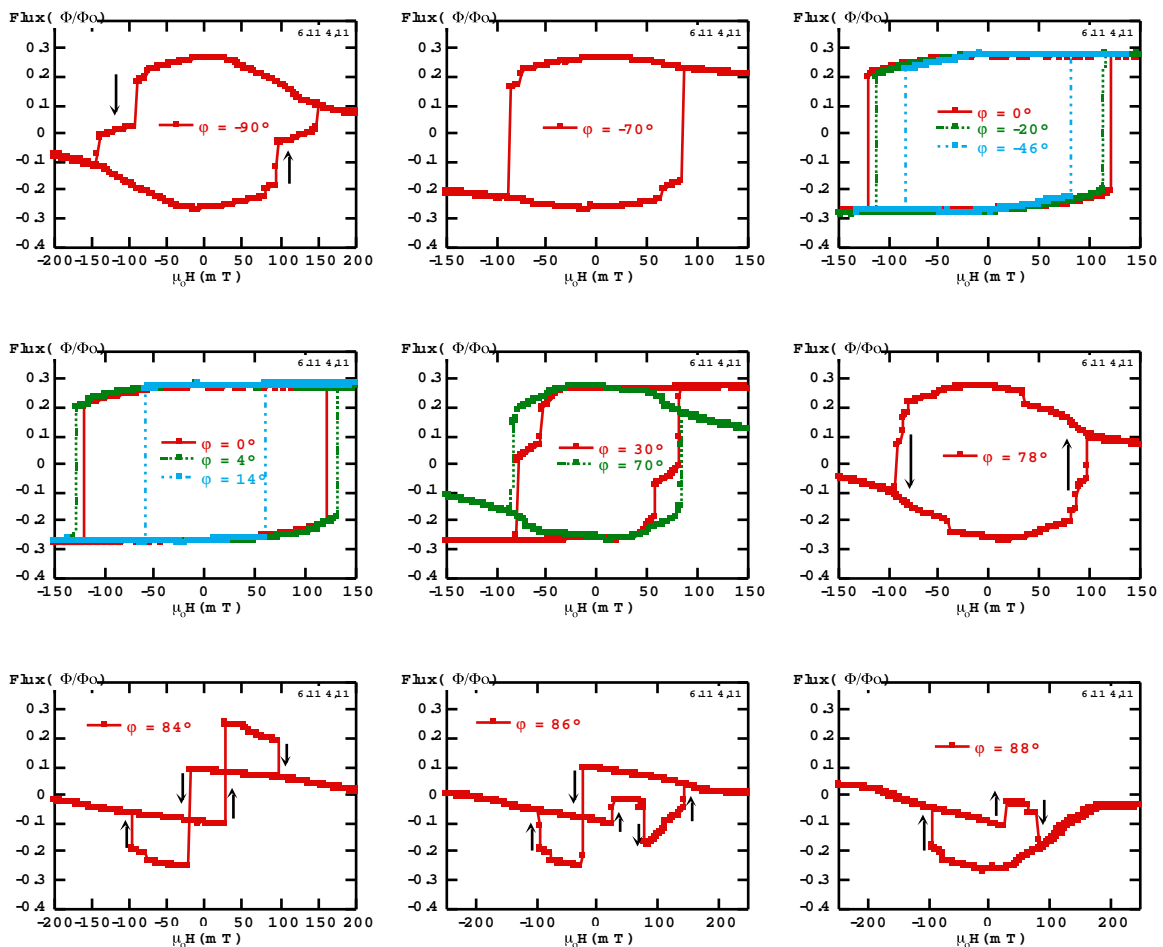


Fig. III.3.2.1 : Cycles d'hystérésis de la particule (6.11 4,11) de Co pour plusieurs directions du champ appliqué.

d'aimantation seulement dans l'intervalle entre -45° et 14° . Pour les autres angles, l'aimantation se retourne par deux ou trois sauts d'aimantation. Les formes de ces cycles d'hystérésis sont complexes (figure III.3.2.1). Il y a probablement une nucléation d'une ou plusieurs parois après le premier saut. Dans ce cas, les sauts successifs correspondent d'abord à un déplacement et ensuite à une annihilation de paroi. Ces particules ne sont donc pas mono-domaines pour tous les angles du champ appliqué. Les fluctuations des sauts d'aimantation sont faibles à part certains angles particuliers pour lesquels la dépendance angulaire n'est pas continue.

La dépendance angulaire du champ de retournement de la particule (6.11 1,11) n'a pas été mesurée mais devrait être similaire.

Par la suite, nous allons étudier le retournement de l'aimantation quand le champ est appliqué dans la direction du grand axe de la particules ($\varphi \approx 0^\circ$).

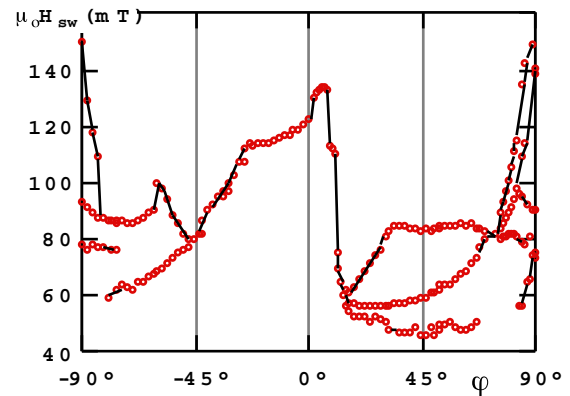


Fig. III.3.2.2 : Dépendance angulaire du champ de retournement de la particule (6.11 4,11) de Co. Les cycles d'hystérésis possédant un seul saut d'aimantation sont situés dans l'intervalle compris entre -45° et 14° .

b) Dynamique du retournement de l'aimantation.

Nous avons étudié la dynamique du retournement de l'aimantation en mesurant la distribution des champs de retournement en fonction de la température et de la vitesse de balayage du champ. A partir de ces distributions, nous avons calculé la moyenne \bar{H}_{sw} et la largeur σ . Les figures III.3.2.3 montrent la dépendance de \bar{H}_{sw} en fonction de la température et de la vitesse de balayage pour la particule (6.11 1,11) de Co. Le champ est appliqué parallèlement au grand axe de la particule. Les barres indiquent la largeur σ . La figure III.3.2.4 montre un exemple de distribution et la figure III.3.2.5 présente la dépendance thermique de σ .

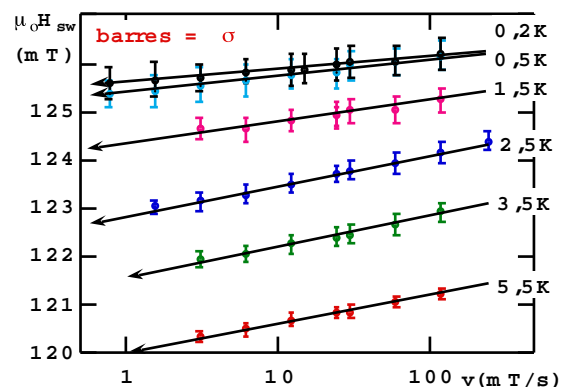
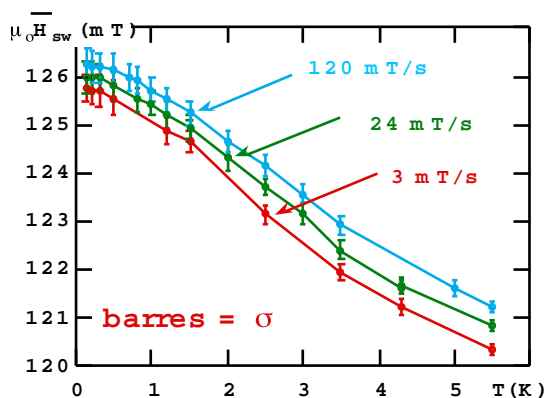


Fig. III.3.2.3 : Dépendance de la valeur moyenne du champ de retournement \bar{H}_{sw} en fonction de la température et de la vitesse de balayage du champ pour la particule (6.11 1,11) de Co. Les barres indiquent la largeur σ de la distribution.

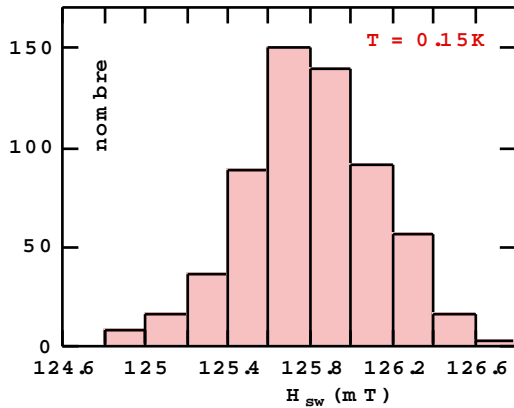


Fig. III.3.2.4 : Exemple d'un histogramme du champ de retournement.

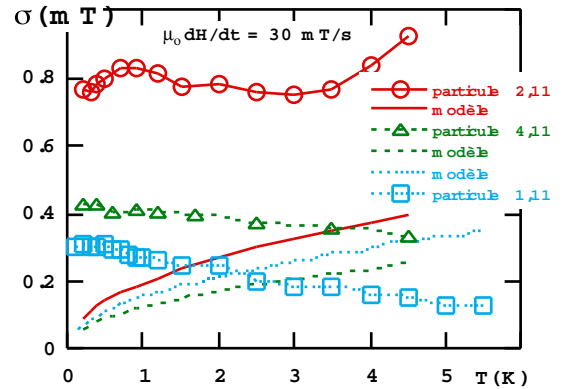


Fig. III.3.2.5 : Dépendance thermique de la largeur σ pour trois particules de Co.

Nous avons ajusté le modèle de Kurkijärvi [Kurkijärvi 1972] (cf. I.4 formule 5) à ces mesures. Le résultat est montré dans la figure III.3.2.6. Avec le choix de $c = 10^6$, toutes les mesures aux températures supérieures à 1 K sont sur une ligne dite "ligne majeure". Les mesures effectuées en dessous de 1 K donnent des droites parallèles à la ligne majeure. On peut décaler toutes ces droites sur la ligne majeure en remplaçant la température T par une température T^* (courbe insérée dans la figure III.3.2.6). A partir du graphe de T^* en fonction de T , on trouve une température de changement du régime thermique à un autre régime de $T_C \approx 0.85$ K.

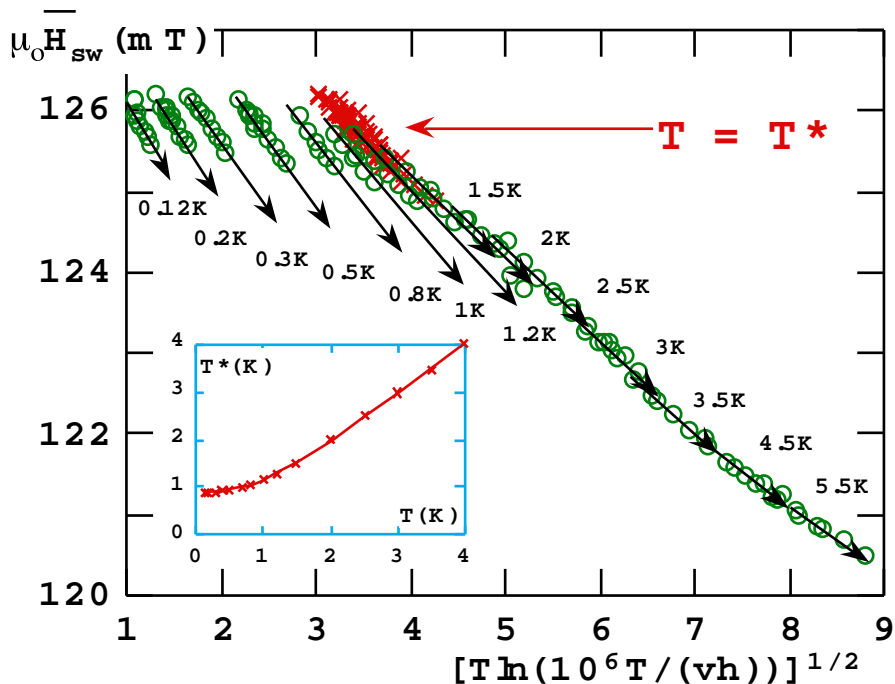


Fig. III.3.2.6 : $H_{sw}(T,v)$ pour la particule (6.11 1,11) de Co ($150 \times 70 \times 25 \text{ nm}^3$). Les points correspondent aux mesures de $H_{sw}(T,v)$ aux températures réelles T et les croix aux mesures ramenées aux températures T^* . La variation $T^*(T)$ est tracée dans la courbe insérée.

particule	a (nm)	b (nm)	angle	H_{sw}^0 (mT)	E_0/k (K)	τ_0 (s 10^{-8})	T_c (K)	$\sqrt[3]{V}$ (nm)
6.11 2,11	80	50	$\approx 0^\circ$	110	6800	8.1	0.85	8.5
6.11 1,11	150	70	$\approx 0^\circ$	129.7	14000	4.6	0.85	10.2
6.11 4,11	150	80	-8.7°	124.3	22000	5.6	0.8	12.0
6.11 4,11	150	80	-21°	122.7	8827	1300	0.8	8.9
6.11 4,11	150	80	-38°	93	4700	200	1.0	7.9
6.11 4,11	150	80	4.4°	140.2	6920	2000	0.7	7.9
6.11 4,11	150	80	14.7°	93	1140	47	1	4.9
6.11 4,11	150	80	-6.6°	127.5	27000	24	0.85	12.8
mesure P(t)								
6.11 4,11	150	80	-6.6°	129	26000	1000	0.85	12.6

Tab. III.3.2.1 : Quelques valeurs numériques des paramètres de l'équation 5 du paragraphe I.4 pour des particules de Co.

A partir de la figure III.3.2.6, on peut facilement calculer les constantes intervenant dans la formule 5 du paragraphe I.4. Les résultats pour cette particule et ainsi que ceux concernant d'autres particules sont donnés dans le tableau III.3.2.1. En utilisant ces valeurs et le modèle de Kurkijärvi (cf. I.4 formule 6), on peut calculer la largeur σ de la distribution de champ de retournement. Dans la figure III.3.2.5, nous comparons les valeurs de σ mesurées et calculées. σ mesuré diminue avec l'augmentation de la température, contrairement à σ calculé.

Enfin, à partir de E_0 , on peut calculer un ordre de grandeur du volume d'activation V dans lequel le retournement est initié.

$$V = \frac{E_0}{\mu_0 M_s H_{sw}^0} \quad (1)$$

On trouve des valeurs de V (cf. tableau III.3.2.1) qui sont deux ordres de grandeur plus petites que prédit par le modèle de Stoner Wohlfarth où le volume d'activation est le volume de la particule. Nous expliquons ce résultat expérimental par le fait que le déclenchement du renversement de l'aimantation se produit par un processus de nucléation (cf. chapitre IV).

c) Probabilité de retournement de l'aimantation

Nous avons mesuré la probabilité de retournement $P(t)$ pour la particule (6.11 4,11) en fonction du champ appliqué et de la température. Quelques exemples de $P(t)$ sont présentés dans les figures III.3.2.7. Pour comparer les mesures de $P(t)$ avec un modèle basé sur l'activation thermique du type Arrhenius (voir par exemple I.4 : modèle de Kurkijärvi), nous avons ajusté la loi suivante à nos mesures :

$$P(t) = e^{-(t/\tau)^\beta} \quad (2)$$

τ est la moyenne du temps d'attente et β donne la déviation du système par rapport au modèle avec une seule barrière d'énergie ($\beta = 1$). Ces ajustements sont représentés par des lignes continues dans les figures III.3.2.7. β est tracé dans la figure III.3.2.8 en fonction de la température, du champ magnétique et du temps d'attente moyen τ .

Nous avons ajusté la loi d'Arrhenius $\Gamma = \Gamma_0 e^{-E/kT}$ aux valeurs de τ trouvées ce qui est présenté dans la figure III.3.2.9 comparant les ajustements de \bar{H}_{sw} et τ . Les constantes trouvées sont données dans le tableau III.3.2.1.

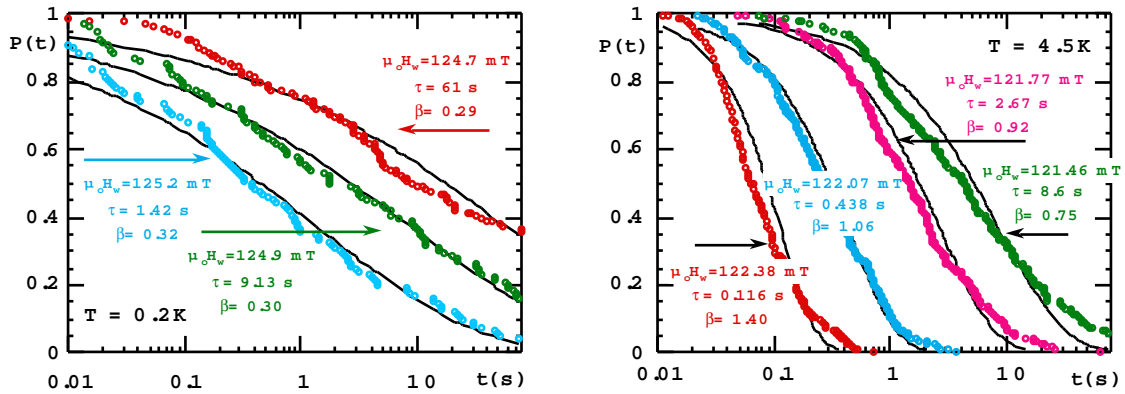


Fig. III.3.2.7 : Probabilité de non retournement de l'aimantation en fonction du temps pour différents champs appliqués à 0.2 et 4.5 K. Les lignes pleines sont ajustées aux données avec une exponentielle étendue donnée par $P(t) = \exp[-(t/\tau)^\beta]$. Les paramètres d'ajustement β et τ sont indiqués dans les graphes.

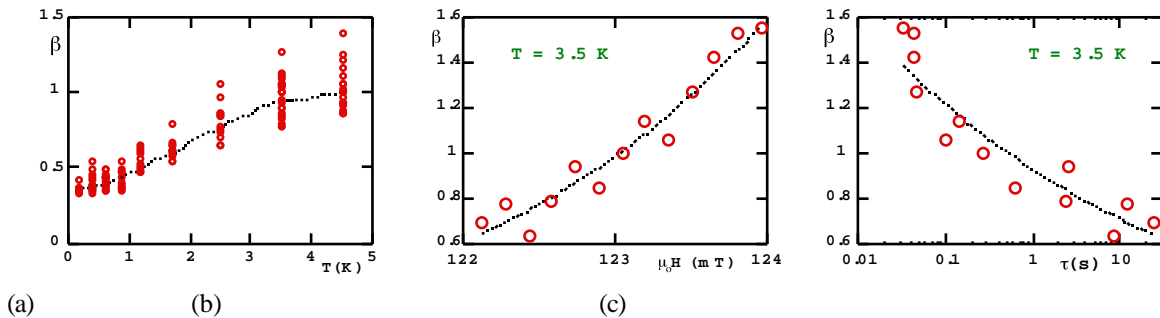


Fig. III.3.2.8 : Dépendance des exposants β (a) avec la température (pour différents champs), (b) avec le champ magnétique et (c) avec le temps d'attente moyen τ ($T = 3.5$ K).

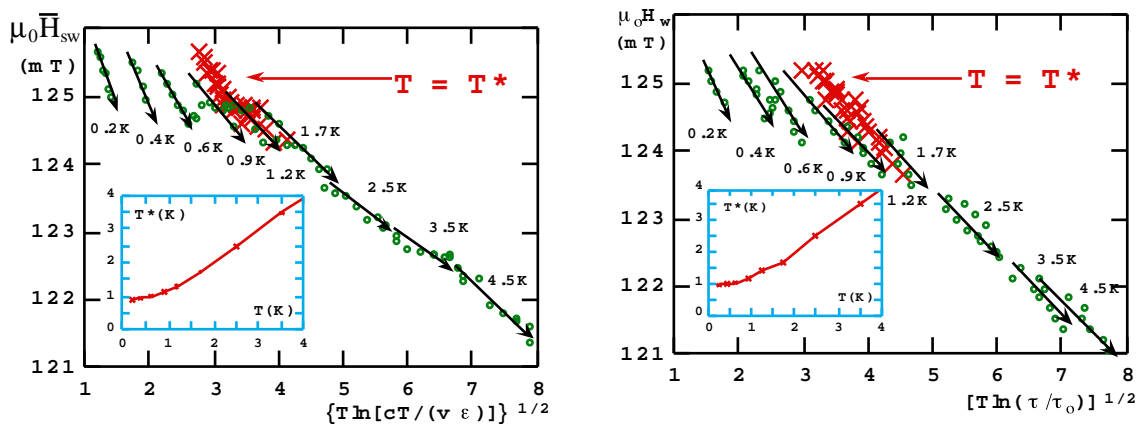


Fig. III.3.2.9 : $H_{sw}(T, v)$ et $H_w(T, \tau)$ pour la particule (6.11 4,11) de Co ($150 \times 80 \times 25 \text{ nm}^3$). Les points correspondent aux mesures de $H_{sw}(T, v)$ et τ aux températures réelles T et les croix aux mesures ramenées aux températures T^* . Les variations $T^*(T)$ sont tracées dans les courbes insérées.

d) Discussion

Historiquement, les exponentielles étendues [Kohlrausch 1847] ont été utilisées pour décrire les processus de relaxation dans les verres de spins et les systèmes similaires. Pour ces systèmes, l'exposant est toujours plus petit que 1 et indique qu'il existe un grand nombre de configurations métastables à basse température [Palmer 1984, Per Bak 1987, Castaing 1991]. Cependant le retournement de l'aimantation dans une particule ferromagnétique est très différent de la relaxation de l'aimantation dans un verre de spins. Ainsi, le coefficient β trouvé dépendant de la température et du champ signifie que le mécanisme de retournement dans une petite particule isolée est plus complexe que le modèle de rotation uniforme. Des calculs numériques [Schabes 1991] indiquent qu'aux bords de la particule les moments ne sont pas colinéaires avec l'aimantation au centre du matériau. Ils indiquent aussi que lorsqu'on diminue le champ le retournement de l'aimantation se fait via la formation d'éventails ("fanning") et/ou la formation de vortex pour les moments. En comparant les résultats expérimentaux avec la théorie, il est très important de se rappeler que les particules réelles possèdent des défauts en surface, défauts qui gouvernent localement l'aimantation. A cause de la relativement grande taille de nos particules, il est impossible d'observer la structure fine de l'aimantation (à l'échelle de 1 nm) aux bords des particules. Cette structure magnétique sur les bords peut avoir comme conséquence de créer de nombreuses vallées dans la surface d'énergie gouvernant le mécanisme de retournement et d'entraîner le fait qu'après le retournement l'état final ne soit pas toujours exactement le même. Cet effet deviendrait plus important à basse température et peut être à l'origine de l'accroissement de la largeur σ de la distribution des champs H_{SW} .

e) Conclusion

Ces mesures sur des particules de Co mono-domaines contenant environ $2 \cdot 10^7 \mu_B$ ont été faites avec une résolution de $10^4 \mu_B$. Pour la plus petite particule, la variation du champ de retournement en fonction de l'angle est en accord qualitatif avec le modèle de rotation uniforme de Stoner Wohlfarth. Cependant la barrière d'énergie trouvée à l'issue des mesures dynamiques est deux ordres de grandeur plus petite que celle prévue par le modèle. C'est pourquoi nous proposons de dire que le saut d'aimantation est déclenché par un processus de nucléation à la surface.

En plus de montrer le caractère mono-domaine des particules, nous avons pu mesurer la distribution du champ de retournement. La largeur de cette distribution augmente lorsque la température décroît et devient constante à très basse température. La moyenne du champ de retournement devient constante en dessous d'une température critique $T_C \approx 0.9$ K. Nous ne pouvons pas conclure quant à l'origine par effet quantique ou non des observations car la théorie ne prend pas en compte les modes réels de retournement de l'aimantation. Lorsque l'énergie thermique diminue, les multiples vallées de la surface d'énergie sont révélées et ce sont ces vallées qui gouvernent le retournement de l'aimantation à basse température.

III.3.3 Particules de Co nanocristallisé possédant une paroi - Particule isolée et réseau de particules [Wernsdorfer 1995/3]

Dans ce paragraphe, nous présentons d'abord les mesures effectuées sur la particule (16.5 2,5) elliptique de Co nanocristallisé. Les dimensions de la particule sont $300 \times 200 \times 30 \text{ nm}^3$ (figure III.3.3.1). Ensuite nous montrons des mesures d'aimantation effectuées sur un réseau de $18 \cdot 10^6$ particules.

a) Structure en domaine et dépendance angulaire des processus de nucléation et d'annihilation de la paroi

Pour comprendre la structure en domaine de la particule, nous avons étudié la dépendance angulaire du cycle d'hystérésis. La figure III.3.3.3 montre quelques exemples de cycles d'hystérésis pour différents angles du champ magnétique appliqué. L'angle φ est mesuré entre la direction du champ et le grand axe de la particule. Les cycles d'hystérésis sont essentiellement caractérisés par deux sauts d'aimantation. Commençons par l'état a)

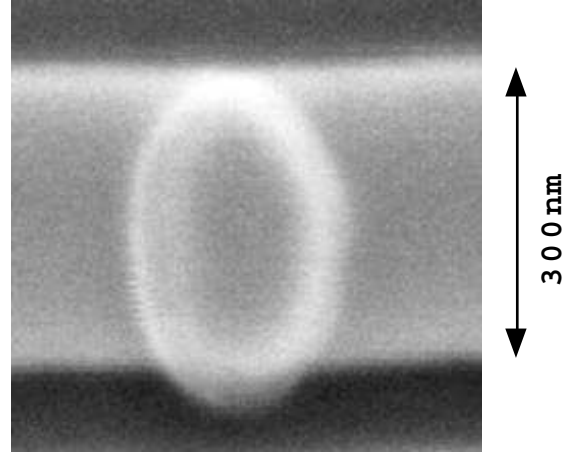


Fig. III.3.3.1 : Photo de la particule (16.5 2,5) sur le bras du SQUID enregistrée par un microscope électronique à balayage. Les dimensions sont $300 \text{ nm} \times 200 \text{ nm}$, épaisseur 30 nm

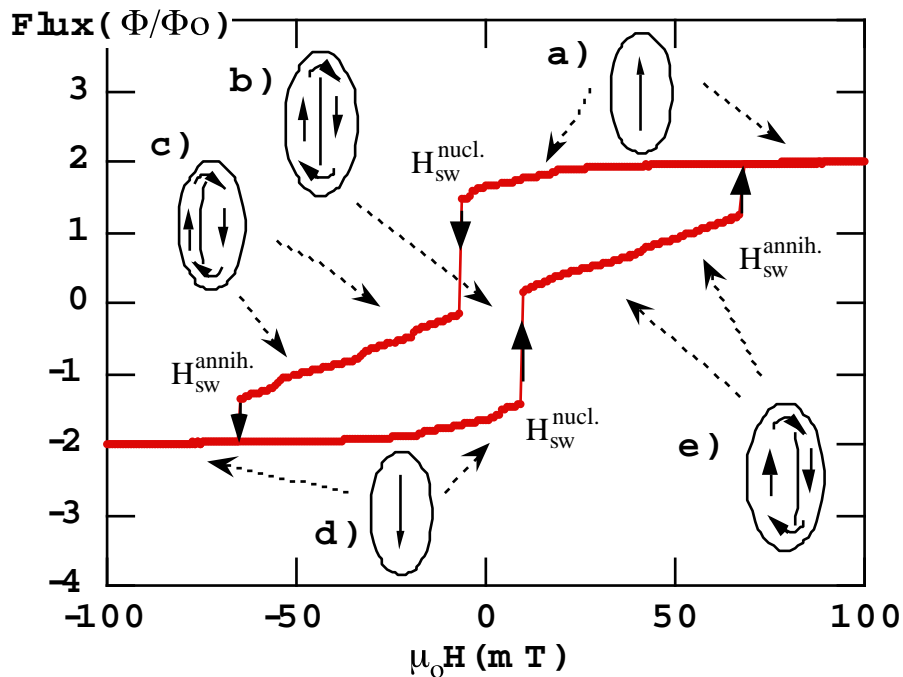


Fig. III.3.3.2 : Cycle d'hystérésis de la particule (16.5 2,5) de Co nanocristallisé. Le champ est appliqué parallèlement au grand axe de la particule. La structure en domaines (cf. I.2.2 - Van den Berg) est schématiquement représentée dans le graphe. Les flèches indiquent la direction des spins. L'aimantation de la particule est saturée dans les états a) et d). La particule possède une paroi dans les états b) ($B = 0$), c) et e).

ou d) d'une particule saturée (cf. figure III.3.3.2). Si l'on inverse le champ jusqu'à $H_{sw}^{nucl.}$, le premier saut d'aimantation génère une structure de paroi. La variation de l'aimantation est ensuite réversible jusqu'au moment où l'on dépasse le champ $H_{sw}^{annih.}$. Dans ce cas, la structure de paroi s'annihile.

La structure la plus simple qui donne un tel cycle d'hystérésis a été proposée par Van den Berg (cf. I.2.2). A champ nul, la particule est divisée en deux domaines séparés par une paroi à 180° (voir figure III.3.3.2). Si on applique un champ magnétique, le domaine se trouvant dans la direction du champ augmente i.e. la paroi s'approche des bords de la particule. Au moment où l'on dépasse un champ critique $H_{sw}^{annih.}$, la paroi s'annihile et l'aimantation de la particule se sature. Il y a principalement deux conditions pour ce modèle : (i) un matériau magnétique très doux et (ii) un système à deux dimensions. La première condition est vérifiée car le cobalt est nanocristallisé i.e. magnétiquement très doux. La deuxième condition est aussi vérifiée car le champ démagnétisant perpendiculaire est bien supérieur aux champs démagnétisants dans le plan. De plus, nous avons trouvé des résultats similaires pour des particules plus minces (épaisseurs de 10 et 20 nm) (cf. Annexe 5). Des structures en domaines plus compliquées (structures composites cf. I.2.2) sont peu probables car des particules de tailles inférieures à 200 nm x 100 nm sont mono-domaines (cf. III.3.1-2).

La figure III.3.3.4 montre la dépendance angulaire du champ de retournement correspondant à la nucléation et l'annihilation de la paroi. A cause de la symétrie du problème, il est seulement nécessaire de discuter l'intervalle de 0° à 90° par exemple. Le champ de nucléation de la paroi est négatif près de 0° et augmente pour les angles plus grands. Le champ d'annihilation de la paroi augmente aussi avec l'angle. Ceci pourrait être expliqué de la manière suivante. Pour les hauts champs, la particule est saturée. Si on réduit le champ, le champ démagnétisant veut nucléer une paroi pour réduire l'énergie magnétostatique. Pour la nucléation, il faut que la somme du champ démagnétisant et du champ appliqué soit plus grande que le champ de nucléation de la paroi. Une fois que la paroi est nucléée, elle prend une position dans laquelle la somme du champ démagnétisant et du champ appliqué est nulle. Si on augmente maintenant le champ, la paroi se déplace vers les bords de la

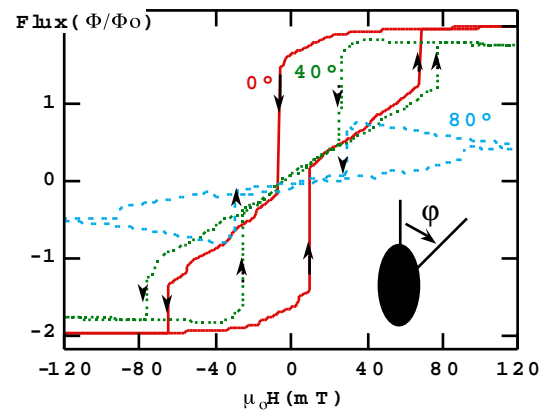


Fig. III.3.3.3 : Cycles d'hystérésis pour la particule (16.5, 2.5) pour trois angles différents mesurés entre le long axe de la particule et la direction du champ appliqué dans le plan. La variation du flux mesurée est seulement proportionnelle à l'aimantation pour les angles faibles. C'est pour cette raison que le cycle est déformé pour les grands angles.

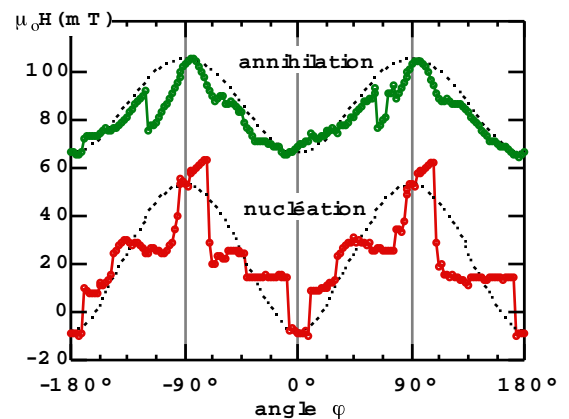


Fig. III.3.3.4 : Dépendance angulaire des champs de nucléation et d'annihilation. La ligne en pointillé est un ajustement du modèle simple décrit dans le texte à nos données.

particule (cf. I.2.3). Au moment où la distance entre la paroi et les bords est de l'ordre de l'épaisseur de la paroi, la paroi s'annihile. Comme l'énergie magnétostatique augmente avec l'angle du champ appliqué, la paroi se nucléée plus facilement pour les angles plus élevés. Pour la même raison, aux grands angles, il faut appliquer des champs plus élevés pour annihiler la paroi. Par exemple, l'énergie magnétostatique pour une particule mono-domaine augmente avec l'angle comme $E = -K \cos^2(\psi)$ où K est l'énergie d'anisotropie (par exemple, pour l'anisotropie de forme : $K = \mu_0 M_S^2 (N_Y - N_X)/2$ [St.-W. 1948, Néel 1947] où N_X et N_Y sont les facteurs démagnétisants) et ψ est l'angle entre la direction de l'aimantation de la particule et son long axe.

Dans la suite, nous présentons un modèle simple pour ajuster approximativement les données. Le champ de nucléation mesuré est donné par :

$$H_{N \text{ mesuré}} = H_D(\varphi) - H_N \quad (1)$$

où H_D est le champ démagnétisant dépendant de l'angle du champ appliqué et H_N est le champ de nucléation. Ici, on néglige la dépendance angulaire du champ de nucléation et on suppose que la direction de l'aimantation de la particule est parallèle à la direction du champ appliqué : $\psi \approx \varphi$. Avec l'expression $H_D^2 = M_S^2 (N_X^2 \cos^2 \varphi + N_Y^2 \sin^2 \varphi)$ [St.-W. 1948, Néel 1947] l'équation (1) devient :

$$H_{N \text{ mesuré}} = M_S \sqrt{N_Y^2 + (N_X^2 - N_Y^2) \cos^2 \varphi} - H_N \quad (2)$$

Le champ de nucléation à $\varphi = 0$ est $H_{N \text{ mesuré}}(0) = M_S N_X - H_N$ et à $\varphi = \pi / 2$ $H_{N \text{ mesuré}}(\pi / 2) = M_S N_Y - H_N$. La différence $H_{N \text{ mesuré}}(\pi / 2) - H_{N \text{ mesuré}}(0) = M_S (N_Y - N_X)$ est l'anisotropie de forme qui est reliée à l'énergie d'anisotropie $K = \mu_0 M_S^2 (N_Y - N_X)/2$.

Le calcul du champ d'annihilation est similaire mais avec un signe opposé dans l'équation (1) :

$$H_{A \text{ mesuré}} = H_D(\varphi) + H_A$$

La ligne en pointillé dans la figure III.3.3.4 est une application de ce modèle simple sur les données. Nous avons utilisé l'aimantation de saturation du matériau de Co ($M_S = 1.4 \cdot 10^6 \text{ A/m}$), l'épaisseur de la particule de 30 nm et une longueur de 300 nm. Nous avons trouvé un champ de nucléation de $\mu_0 H_N = (138 \pm 12) \text{ mT}$ et une largeur de la particule de $b = (230 \pm 6) \text{ nm}$. Pour l'annihilation de la paroi, nous avons trouvé $\mu_0 H_A = (68 \pm 7) \text{ mT}$ et $b = (252 \pm 4) \text{ nm}$. On peut comparer ce résultat à la largeur réelle de la particule de $b = (200 \pm 10) \text{ nm}$. Finalement, le champ d'anisotropie est $\mu_0 H_K = \mu_0 M_S (N_Y - N_X) = 92 \text{ mT}$ pour $b = 200 \text{ nm}$.

Par la suite, le champ est appliqué à peu près parallèlement au long axe de la particule, i.e. à 10° dans la figure III.3.3.4.

b) Mesure de la distribution des champs de nucléation et d'annihilation de la paroi

Nous nous limitons ici à l'étude de la nucléation et de l'annihilation de la paroi. Le cycle d'hystérésis mineur est montré dans la figure III.3.3.5. Pour chaque température, nous avons mesuré la distribution des champs de nucléation et d'annihilation pour des vitesses de balayage comprises entre 0.01 and 100 mT/s. Comme attendu pour des processus activés thermiquement, le champ moyen de nucléation $H_{sw}^{\text{nucl.}}$ augmente pour des températures plus élevées (0.1 à 6 K) (i.e. la nucléation est plus facile pour les températures plus élevées) et le champ moyen d'annihilation $H_{sw}^{\text{annih.}}$ diminue pour

des température plus élevées car la paroi franchit plus facilement la barrière à haute température (figure III.3.3.6). Cependant, pour les températures en dessous de 1.5 K, la variation thermique du champ d'annihilation se réduit et s'inverse pour les températures inférieures à 1 K.

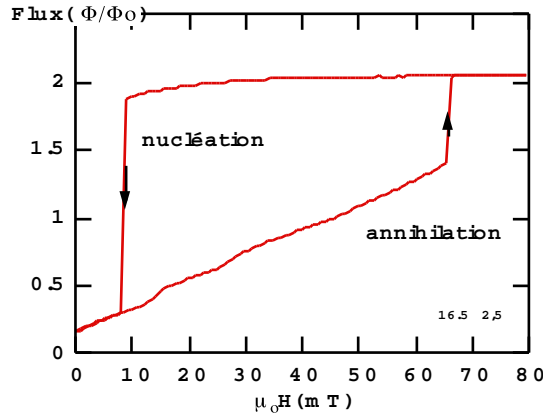


Fig. III.3.3.5 Cycle d'hystérésis mineur montrant la nucléation et l'annihilation de la paroi.

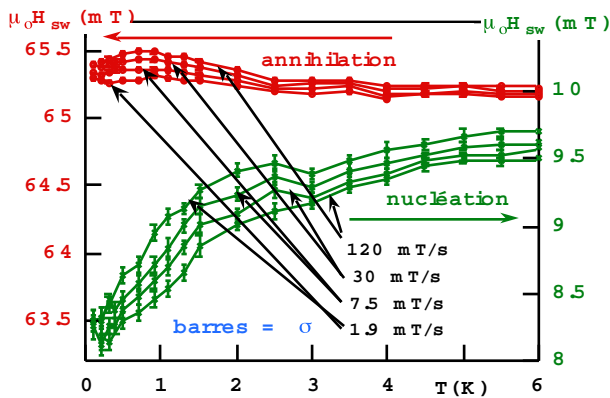


Fig. III.3.3.6 : Dépendance thermique des champs moyens de nucléation et d'annihilation pour différentes vitesses de balayage. Les barres indiquent les largeurs des distributions.

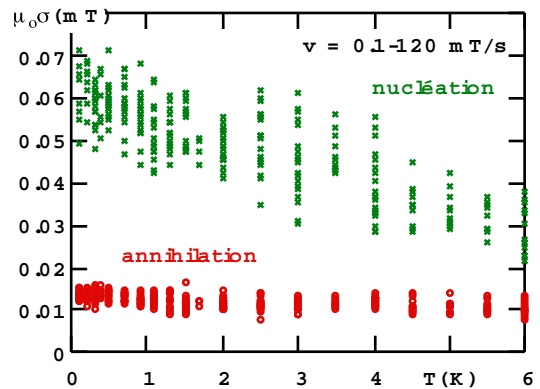


Fig. III.3.3.7 : Dépendance thermique des largeurs des distributions pour des vitesses de balayage du champ comprises entre 0.1 - 120 mT/s.

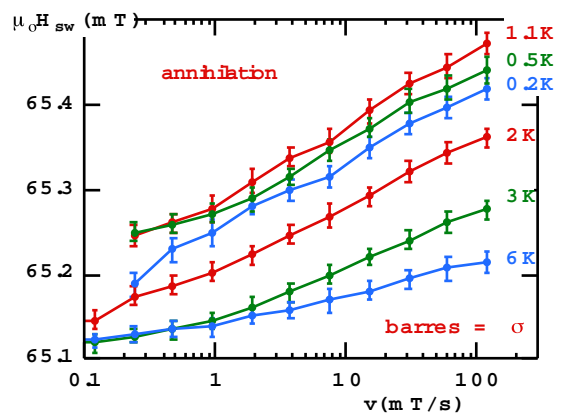
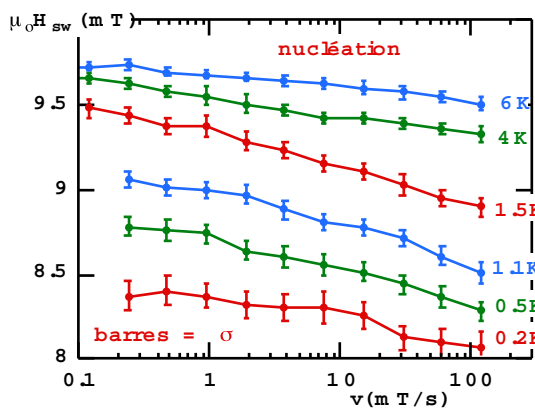


Fig. III.3.3.8 : Champs moyens de nucléation et d'annihilation en fonction de la vitesse de balayage. Les barres indiquent les largeurs des distributions.

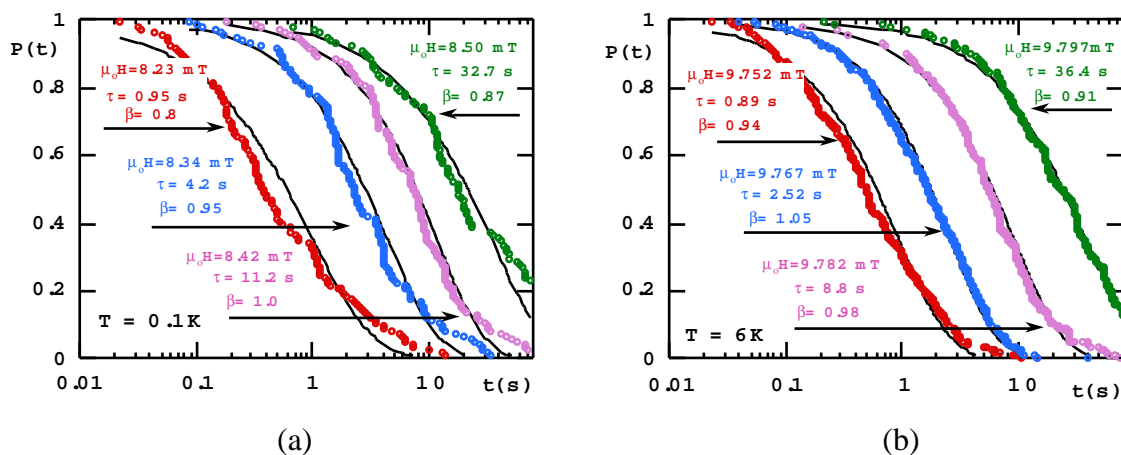
La figure III.3.3.7 montre la dépendance de $H_{sw}^{nucl.}$ et $H_{sw}^{annih.}$ en fonction de la vitesse de balayage. De nouveau, comme attendu pour des processus activés thermiquement, le champ de retournement décroît avec la vitesse de balayage dans le cas d'un processus par nucléation et par contre il croît dans le cas d'un processus d'annihilation. Un ajustement aux données expérimentales peut être obtenu par $H_{sw} = a + b \ln(v)$, où les constantes a et b dépendent de la température. De façon surprenante, la constante b décroît pour des températures décroissantes. De plus, la largeur σ de la distribution du champ de retournement (largeur donnée par les barres dans les figures III.3.3.6 et III.3.3.8 représentée dans la figure III.3.3.7) décroît lorsque la température augmente. Une explication de ce phénomène est donnée plus loin. Enfin σ décroît avec la vitesse de balayage mais la dépendance reste très faible.

c) Mesures des temps de retournement

Via les mesures des temps de retournement nous avons accès directement à la probabilité de retournement. Les figures III.3.3.9 (a-d) montrent les mesures des probabilités de retournement pour la nucléation ou l'annihilation de parois de domaines entre 0.1 K et 6 K. Pour comparer les mesures avec un modèle simple possédant une seule barrière d'énergie, nous avons ajusté les données avec une exponentielle étendue.

$$P(t) = e^{-(t/\tau)^\beta} \quad (3)$$

τ est la moyenne du temps d'attente et β donne la déviation du système par rapport au modèle avec une seule barrière d'énergie ($\beta = 1$). La figure III.3.3.10 montre la dépendance du champ selon τ pour les processus de nucléation et d'annihilation d'une paroi. Cette dépendance est bien ajustée par la loi empirique $\tau(T, H) = \tau_0 c(T) \exp(\pm H / H_0(T))$, où les constantes c et H_0 sont positives et dépendent de la température. Le signe plus correspond aux nucléations et le signe moins aux annihilations (voir la figure III.3.3.10). La dépendance thermique de H_0 pour la nucléation et l'annihilation est représentée dans la figure III.3.3.11a. H_0 croît lorsque la température décroît ce qui est différent d'une loi de type Arrhénius pour laquelle H_0 serait proportionnel à la température. La figure III.3.3.11b montre la dépendance en température de β (avec $\tau = 10$ s). Pour le processus de nucléation β est environ égal à 1, tandis que pour le processus d'annihilation d'une paroi, β est environ égal à 2. Dans les deux cas β décroît avec la température au dessous de 1 K.



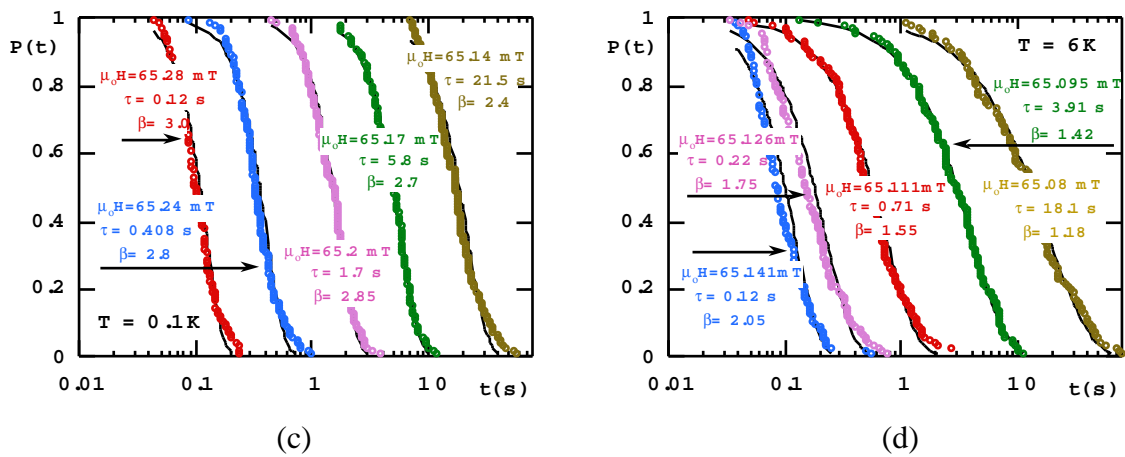


Fig. III.3.3.9 : Probabilité de non retournement de l'aimantation en fonction du temps pour différents champs appliqués pour des nucléations de parois à (a) 0.1 K et (b) 6 K et pour des annihilations de parois à (c) 0.1 K et (d) 6 K. Les lignes pleines sont ajustées aux données avec une exponentielle étendue donnée par la formule (3). Les paramètres d'ajustement β et τ sont indiqués dans les graphes. Les erreurs moyennes carrées χ^2 pour les ajustements des figures sont compris entre 0.0002 et 0.005.

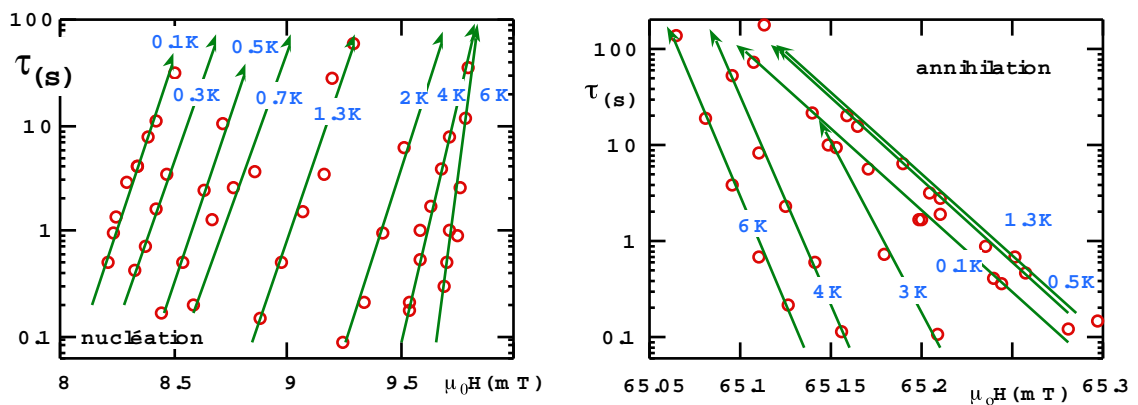


Fig. III.3.3.10 : Variations du champ avec la moyenne du temps de retournement, à différentes températures et pour la nucléation et l'annihilation de parois. La loi empirique $\tau(T, H) = \tau_0 c(T) \exp(\pm H/H_0(T))$ est ajustée aux données.

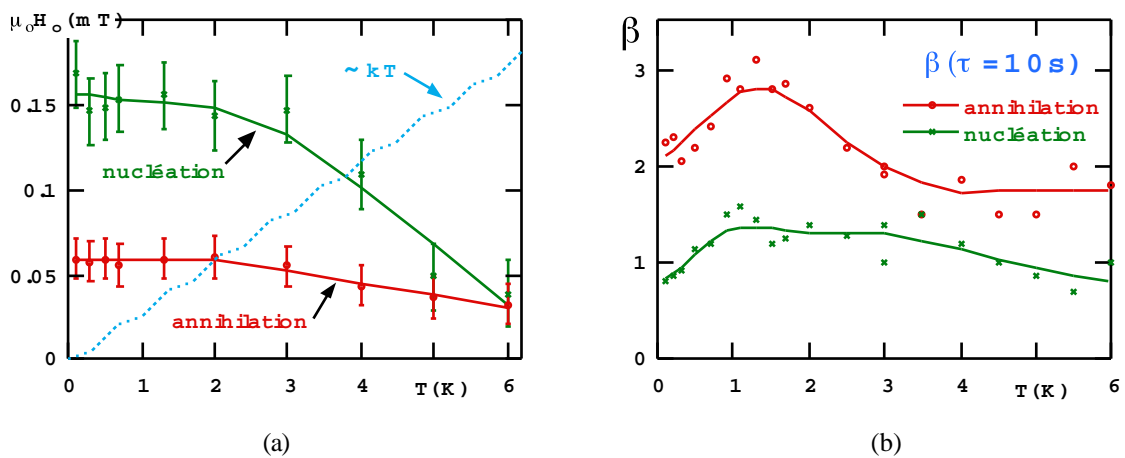


Fig. III.3.3.11 : (a) Dépendance en température de H_0 pour les processus de nucléation et d'annihilation. Pour une loi de type Arrhénius, H_0 serait proportionnel à la température (ligne en pointillé). (b) Dépendance en température des exposants β (pour $\tau = 10$ s) utilisés pour ajuster les probabilités de non retournement (équation (3)).

d) Ensemble de particules de Co

Après l'étude du retournement de l'aimantation pour des particules isolées, la question s'est posée de savoir comment les propriétés d'un échantillon macroscopique étaient reliées à celles d'une particule isolée. Pour y répondre nous avons fabriqué un échantillon composé de $1.8 \cdot 10^7$ particules elliptiques et identiques de Co avec à peu près les mêmes dimensions que la particule étudiée précédemment. Ces particules ont été placées sur un substrat de Si avec un écartement de $2 \mu\text{m}$. En raison du grand espacement les interactions dipolaires entre les particules sont négligeables. La figure III.3.3.12 montre le cycle d'hystérésis d'un ensemble de particules quand le champ est appliqué parallèlement au grand axe des particules. Ce cycle d'hystérésis montre les mêmes caractéristiques que celui d'une seule particule (fig. III.3.3.2), i.e. on observe des nucléations et annihilations des parois des domaines. Comme les distributions des champs de retournement sont principalement dues aux défauts de surface et à la faible distribution en tailles des particules, les nucléations et annihilations de parois ne sont plus discontinues mais se produisent plutôt selon une courbe continue possédant une largeur environ de 10 mT .

Les expériences de relaxation de l'aimantation de l'ensemble des particules ont été conduites avec un magnétomètre à SQUID commercial (Metronique Instruments, sensibilité d'environ 10^{-10} Am^2 (10^{-7} emu)) par A. Sulpice (CRTBT) et J.E. Wegrowe (L. Néel). Dans un premier temps, nous n'avons considéré que les processus de nucléation de parois. Nous avons tout d'abord appliqué un champ magnétique de 150 mT pour saturer l'échantillon (état magnétique initial). Après 15 minutes le champ est abaissé en 1 à 2 minutes jusqu'au champ de relaxation souhaité ($5 \text{ mT} < H < 25 \text{ mT}$). Ensuite la relaxation de l'aimantation est mesurée pendant trois heures. Nous avons trouvé une relaxation magnétique logarithmique dans l'intervalle de temps $10^2 \text{ s} < t < 10^4 \text{ s}$ comme observé dans la figure

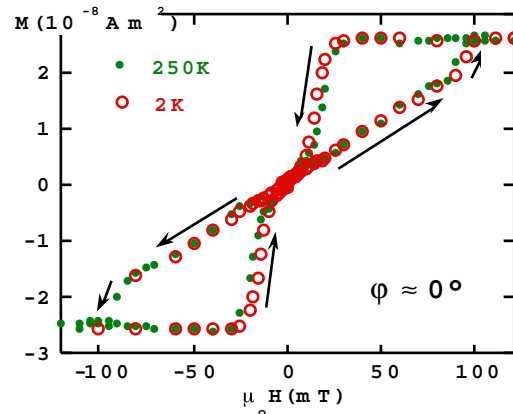


Fig. III.3.3.12 : Cycle d'hystérésis du moment magnétique pour une assemblée de $1.8 \cdot 10^7$ particules de Co ($300 \text{ nm} \times 200 \text{ nm} \times 30 \text{ nm}$) à 2 K et 250 K . Le champ dans le plan est appliqué le long du grand axe de l'ensemble des particules.

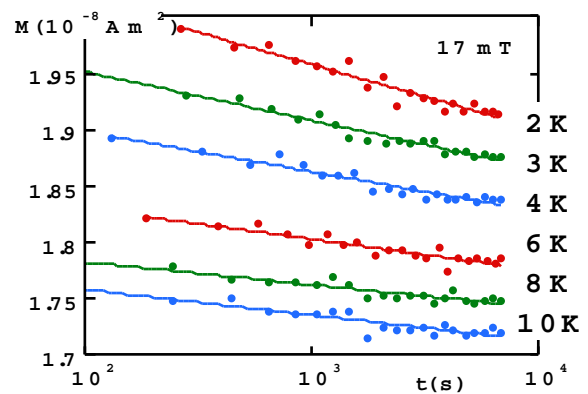


Fig. III.3.3.13 : Relaxation de la magnétisation pour une assemblée de particules de Co avec $H = 17 \text{ mT}$. La pente $S = dM/d(\ln(t))$ définit le viscosité magnétique.

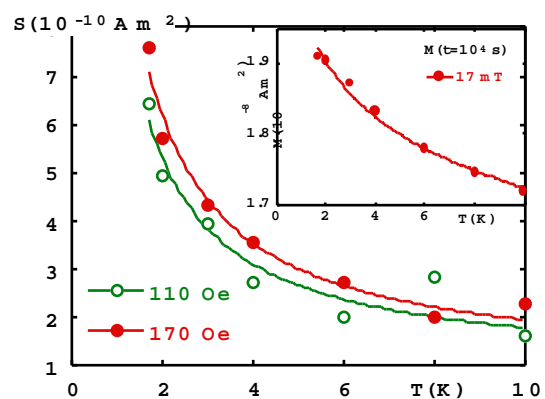


Fig. III.3.3.14 : Dépendance en température de la viscosité magnétique $S = dM/d(\ln(t))$ à 11 mT et 17 mT . Une loi en $1/T$ permet l'ajustement aux données. La figure insérée montre la magnétisation à $t = 10^4 \text{ s}$ en fonction de la température.

III.3.3.13. A partir de ces mesures, il est possible d'obtenir la viscosité magnétique définie par $S = dM(t)/d(\ln(t))$. La figure III.3.3.14 montre S en fonction de la température pour deux champs différents. La variation de S selon le champ de relaxation pour différentes températures est montré dans la figure III.3.3.15. Les données peuvent être bien ajustées par une courbe de Gauss, le champ coercitif pouvant être défini par le maximum de la courbe. La largeur de la Gaussienne est comprise entre 7.5 mT à 2 K et 5 mT à 10 K. La dépendance thermique du maximum est inférieure à 0.5 mT entre 2 et 10 K ce qui est similaire à la dépendance thermique de H_{SW} d'une particule individuelle (fig.

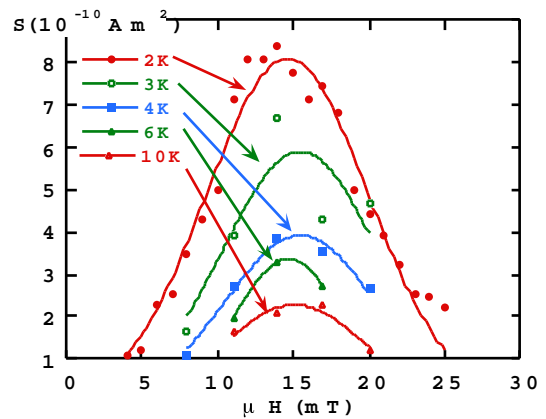


Fig. III.3.3.15 : Variation de la viscosité magnétique $S = dM/d(\ln(t))$ selon le champ, ceci pour différentes températures. Des fonctions de Gauss permettent l'ajustement aux données.

III.3.3.6). Les modèles classiques de relaxation magnétique montrent que, à basse température, la viscosité magnétique est à peu près proportionnelle à la température [Street 1949]. Dans notre cas nous avons trouvé une variation de S qui varie comme $1/T$, ce qui est inhabituel (figure III.3.3.14). Pour des températures supérieures à 10 K, la relaxation de l'aimantation est plus faible que la sensibilité du magnétomètre (10^{-10} Am^2).

e) Discussion

Pour expliquer le retournement de l'aimantation de ce type de particule, nous proposons deux mécanismes qui coexistent dans des particules de cette taille. Le premier est semblable à celui déjà mentionné à propos des particules de Co nanocristallisé (III.3.2d). Il met en jeu les défauts de l'échantillon (rugosité de surface, défauts cristallins, impuretés, etc.), défauts créant une surface d'énergie avec plusieurs vallées. Ces défauts sont moins importants aux plus hautes températures lorsque l'énergie thermique kT est très supérieure aux fluctuations de l'énergie dues à ces défauts. Aux basses températures, lorsque kT devient du même ordre de grandeur ou même plus petit que les énergies de fluctuations, le retournement de l'aimantation est influencé par ces fluctuations. En conséquence, le système peut passer la barrière d'énergie de différentes façons d'un cycle à l'autre. Pendant un cycle d'hystérésis, le système choisit au hasard un chemin à travers la surface d'énergie. Ce chemin se situe le long des vallées entraînant ainsi à une minimisation de l'énergie, mais ce chemin ne peut passer à une autre vallée car l'énergie thermique n'est pas suffisante pour franchir les cols. Lorsque l'énergie d'activation thermique diminue, cette contrainte devient de plus en plus importante et peut être à l'origine de l'accroissement de la largeur de la distribution du champ de retournement (figure III.3.3.7). Mieux, ce mécanisme peut être responsable de la décroissance de β avec la température ($\beta < 1$). Il est intéressant de noter que la largeur de la distribution du champ de retournement pour des phénomènes de nucléation de parois est plus grande que pour les phénomènes d'annihilation de parois. Ceci peut être dû au fait qu'il y a plus de défauts sur la surface (sites de nucléations), défauts influençant alors la nucléation de parois, que de défauts dans la particule ayant cette fois-ci une influence sur l'annihilation des parois.

Le second mécanisme responsable du retournement de l'aimantation de ces particules prend en compte le fait que ces particules sont relativement grandes par rapport à la longueur de corrélation

d'échange. Ainsi au bord de la particule, les moments ne sont pas colinéaires à l'aimantation du matériau et, en diminuant le champ, le renversement de l'aimantation se produit via la formation d'éventails ("fanning") et/ou la formation de vortex pour ces moments [Schabes 1988, Fredkin 1991, Nakatini 1991, Ferré 1995]. Ces formations peuvent ne pas être très stables près des champs de retournement et relaxer légèrement, ce qui peut être vu comme une relaxation de la barrière d'énergie. Ceci est activé thermiquement, i.e. la relaxation est de plus en plus bloqué lorsque la température décroît. La relaxation est particulièrement importante dans le cas de l'annihilation de parois car celles-ci impliquent de nombreux spins (la longueur de la paroi est de l'ordre de grandeur de la longueur de la particule).

Ce mécanisme de relaxation de la barrière peut être à l'origine de la valeur de $\beta > 1$, ainsi que de la décroissance de la pente $b(T)$ pour les températures croissantes ($H_{sw} = a + b \ln(v)$). En effet, la variation de H_{sw} avec la vitesse de balayage peut s'écrire : $v = v_0 \exp[(H_{sw} - a) / b(T)]$. Donc, $b(T)$ représente le bruit qui induit le retournement. Pour nos mesures, $b(T)$ est différent de l'énergie thermique kT , i.e. il existe un bruit non-thermique (évolution de la barrière, existence de plusieurs chemins).

Le mécanisme de relaxation de la barrière peut être aussi à l'origine de la décroissance de la constante $H_0(T)$ pour les températures croissantes (fig. III.3.3.11a). Il peut aussi avoir une influence sur la dépendance en température de la viscosité magnétique pour l'ensemble des particules. Pour les temps courts, la relaxation de l'aimantation est plus rapide aux plus hautes températures qu'aux basses températures. En conséquence, la relaxation aux temps plus grands est lente car il ne reste plus beaucoup de particules qui peuvent encore relaxer. Lorsque la température décroît, la relaxation au début se bloque de plus en plus. Ainsi la relaxation aux grands temps peut être plus rapide car il y a plus de particules. Autrement dit, la relaxation rapide de l'aimantation se produisant au début de l'expérience est de plus en plus retardée lorsque la température diminue. L'augmentation de la viscosité magnétique à basses températures est donc possible car il reste plus de particules qui peuvent avoir une nucléation de parois pendant le temps de l'expérience ($10^2 < t < 10^4$). Le fait qu'il y ait plus de particules non retournées à basses température peut être vu dans la partie insérée de la figure III.3.3.14 représentant l'aimantation à $t = 10^4$ s en fonction de la température.

f) Conclusion

Les résultats principaux de ce paragraphe peuvent être résumés ainsi : les cycles d'hystérésis de particules elliptiques de Co nanocristallisé ($300 \times 200 \times 30 \text{ nm}^3$) sont caractérisés par deux sauts d'aimantation résultant des processus de nucléation et d'annihilation de parois. Les mesures dynamiques montrent que le champ de retournement est activé thermiquement. Les probabilités des temps de retournement sont supérieures à une exponentielle. De plus, les mesures de relaxation d'un ensemble de particules donnent une dépendance inhabituelle en $1/T$ pour la viscosité magnétique.

Ces résultats peuvent être décrits par deux mécanismes. (i) Les défauts des particules réelles sont responsables de la formation de vallées et de cols dans la surface d'énergie, qui sont révélées lorsque l'activation thermique diminue. Ce mécanisme peut être à l'origine de l'accroissement de la largeur de la distribution des champs de retournement. (ii) Comme les particules sont relativement grandes, la barrière d'énergie relaxe légèrement lorsque le champ appliqué est proche du champ de retournement. Ce mécanisme peut être responsable de la variation, plus rapide qu'une exponentielle, de la probabilité de retournement ($\beta > 1$).

III.3.4 Séparation de la distribution des champs de retournement en deux états

Pour mieux comprendre la dépendance thermique de la largeur de la distribution des champs retournement, nous présentons ici un cas particulier. Il s'agit d'un cycle mineur d'une particule de Co montré dans la figure III.3.4.2. Le cycle mineur montre deux sauts d'aimantation correspondant à la nucléation et l'annihilation d'une paroi. La structure en domaine est analogue à la particule du paragraphe III.3.3. La figure III.3.4.3 montre les moyennes des deux sauts d'aimantation en fonction de la température. Les largeurs des distributions sont indiquées par les barres verticales. La dépendance thermique de σ pour les distributions des champs de nucléation et d'annihilation de la paroi est montrée dans la figure III.3.4.4.

Nous ne discutons ici que la distribution du champ d'annihilation de la paroi montrée dans les figures III.3.4.1. Pour les températures inférieures à 1.5 K, cette distribution se sépare en deux états avec des probabilités de 80 % et 20 % sur toutes les mesures de champ d'annihilation. Si l'on ne tient pas compte de la séparation en deux états, la largeur ($\sigma_{100\%}$) de la distribution de champ d'annihilation est comparable à celle de la nucléation (figure III.3.4.4). Par contre, si l'on tient compte de la séparation, la largeur σ de chaque distribution est plus faible que $\sigma_{100\%}$. Mais on observe aussi pour ces deux distributions que σ augmente aux températures les plus basses.

Cette étude confirme l'explication donnée dans le paragraphe III.3.3e : les défauts de la particule jouent un rôle moins important aux plus hautes températures lorsque l'énergie thermique kT est très supérieure aux fluctuations de l'énergie dues à ces défauts. Aux basses températures, lorsque kT devient du même ordre de grandeur ou même plus petit que les énergies de fluctuations, le retournement de l'aimantation est influencé par ces fluctuations. En conséquence, le système peut franchir la barrière d'énergie de différentes façons d'un cycle à l'autre. Pendant un cycle d'hystérésis, le système choisit au hasard un chemin à travers la surface d'énergie. En l'occurrence, il y a deux chemins principaux et plus la température est basse, plus ces chemins principaux se diversifient, ce qui est montré par l'augmentation de σ pour chaque chemin lorsque la température est inférieure à 1.5 K (figure III.3.4.4).

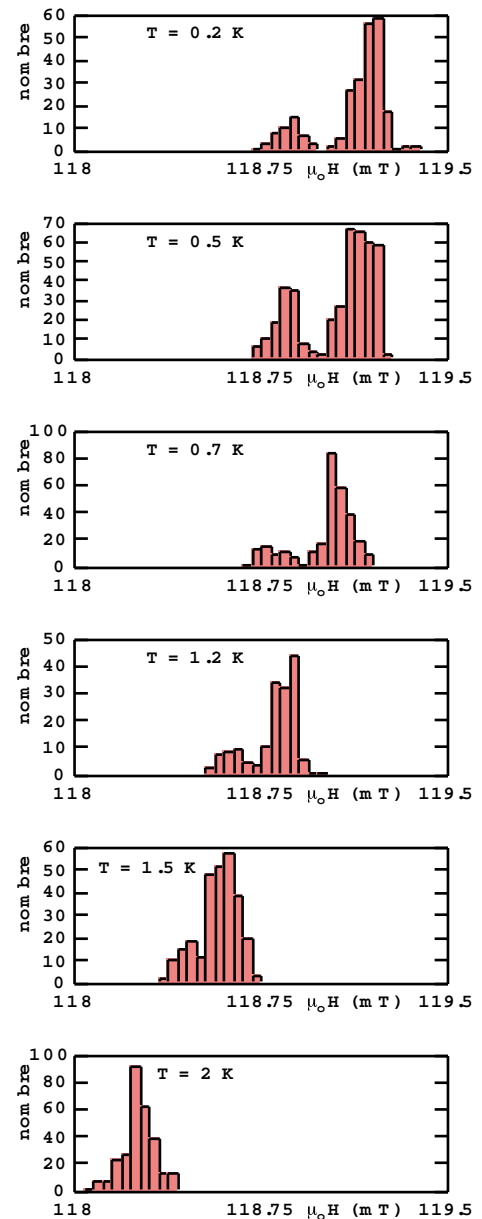


Fig. III.3.4.1 : Histogrammes d'environ 200 champs d'annihilation de la paroi.

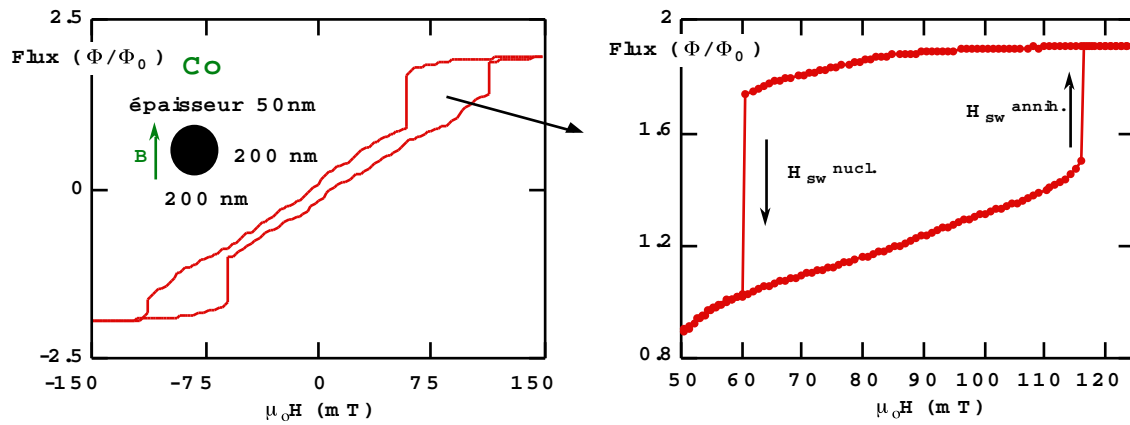


Fig. III.3.4.2 : Cycle d'hystérésis d'une particule de Co nanocristallisé. L'agrandissement montre un cycle mineur. Les deux sauts d'aimantation correspondent à la nucléation et l'annihilation d'une paroi.

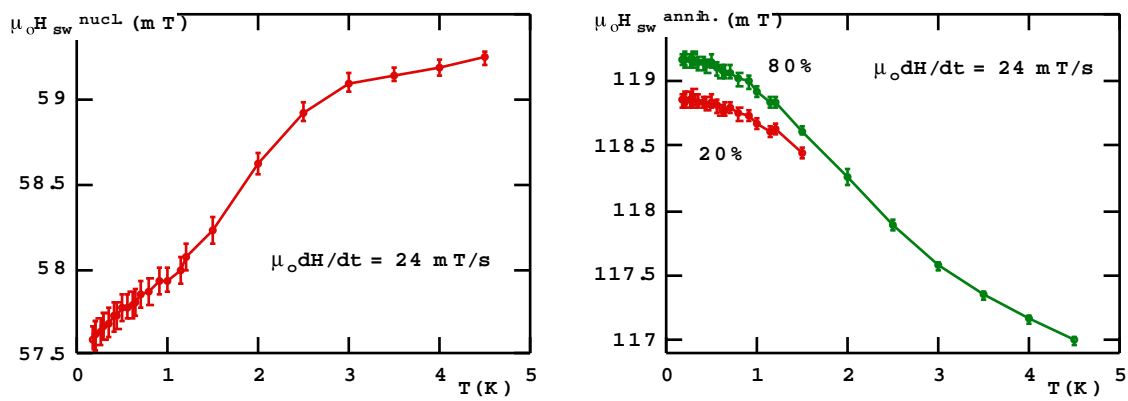


Fig. III.3.4.3 : Dépendance thermique de la valeur moyenne du champ de nucléation et d'annihilation de la paroi. Les barres indiquent les largeurs σ des distributions.

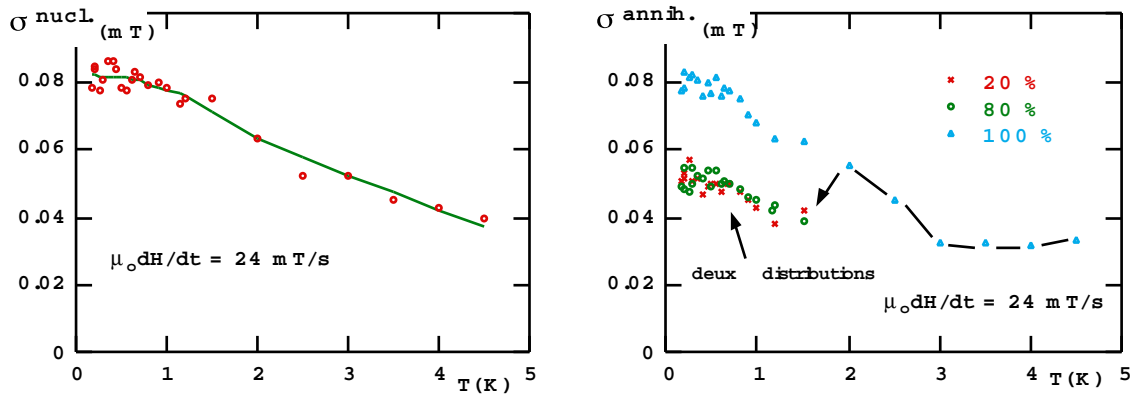


Fig. III.3.4.4 : Dépendance thermique des largeurs σ des distributions des champs de nucléation et d'annihilation de la paroi.

III.3.5 Conclusion sur les particules élaborées par lithographie électronique

Nous avons étudié de nombreuses particules composées de différents matériaux et de formes très variées.

Avec les petites particules nanocristallisées (i.e. pour lesquelles l'anisotropie cristalline est négligeable) nous avons observé un comportement assez simple qui peut être approximativement décrit par le modèle de Stoner-Wohlfarth. Avec des particules semblables mono-domaines mais plus grandes le retournement de l'aimantation est non uniforme. Lorsque la taille des particules croît encore on observe la nucléation et l'annihilation de parois.

Avec des particules possédant une anisotropie cristalline non négligeable (particules polycristallisées, voir l'annexe 5) mais disposée au hasard par rapport à l'anisotropie de forme, le comportement observé est relativement compliqué : il n'est pas possible d'ajuster les modèles existant de retournement de l'aimantation.

Si nous avons pu ajuster le modèle de Kurkijärvi à beaucoup de nos mesures et obtenir des informations sur le volume d'activation dans lequel le retournement de l'aimantation est initié, certaines particules n'ont pas pu être décrites ainsi et de plus ce modèle est mis en défaut pour les très basses températures (typiquement en dessous de 1 K). Des explications possibles sont présentées dans le chapitre IV.

On peut aussi noter que la largeur de la distribution des champs de retournement augmente lorsque la température décroît. Ceci est sans doute dû aux défauts des particules dont l'influence augmente à très basses températures.

Enfin pour certaines particules nous avons mesuré la probabilité de retournement de l'aimantation. L'ajustement avec une exponentielle étendue a été généralement possible et le coefficient β mesurant l'écart avec une exponentielle a été trouvé très petit lorsque les défauts de la particules étaient importants.

III.4 Fils de Ni [Wernsdorfer 1995/5]

Dans ce paragraphe, nous présentons les premières mesures de l'aimantation effectuées sur des fils (forme cylindrique) magnétiques, isolés, en Ni, à l'échelle nanométrique. Les diamètres sont compris entre 40 et 100 nm et les longueurs vont jusqu'à 5 μm . Les fils magnétiques sont intéressants car ce sont des particules possédant une anisotropie de forme maximale.

III.4.1 Elaboration et dépôt des fils

Les fils ont été élaborés par l'équipe de Anserment au IPE-EPFL à Lausanne. Ils utilisent des membranes commerciales de polycarbonate, poreuses à l'échelle du nanomètre, gravées de sillons et d'épaisseurs comprises entre 6 et 10 μm [Poretics]. Elles sont obtenues par irradiation de feuilles de polycarbonate en utilisant des ions lourds et en gravant plusieurs fois les sillons [Fleisher 1975]. La technique de l'électrodéposition sur ces membranes nanoporeuses permet d'obtenir des fils (cylindres) de, par exemple Ni et Co, possédant des diamètres de 30 nm à 200 nm et des longueurs pouvant aller jusqu'à 10 μm [Meier 1994]. Afin de placer un fil sur la boucle du SQUID, nous avons tout d'abord dissous la membrane dans du chloroforme. Ensuite, nous avons placé une goutte de ce liquide sur une plaquette comportant quelques centaines de SQUID. Lorsque le solvant est complètement évaporé, les fils collent à la plaquette grâce aux forces de van der Waals et grâce aussi à quelques résidus de la membrane. Après cette manipulation, 1 à 5 % de tous les SQUID ont un fil sur leur boucle. Après la mesure de l'aimantation, la position exacte et la forme des fils sont finalement déterminées par microscopie électronique.

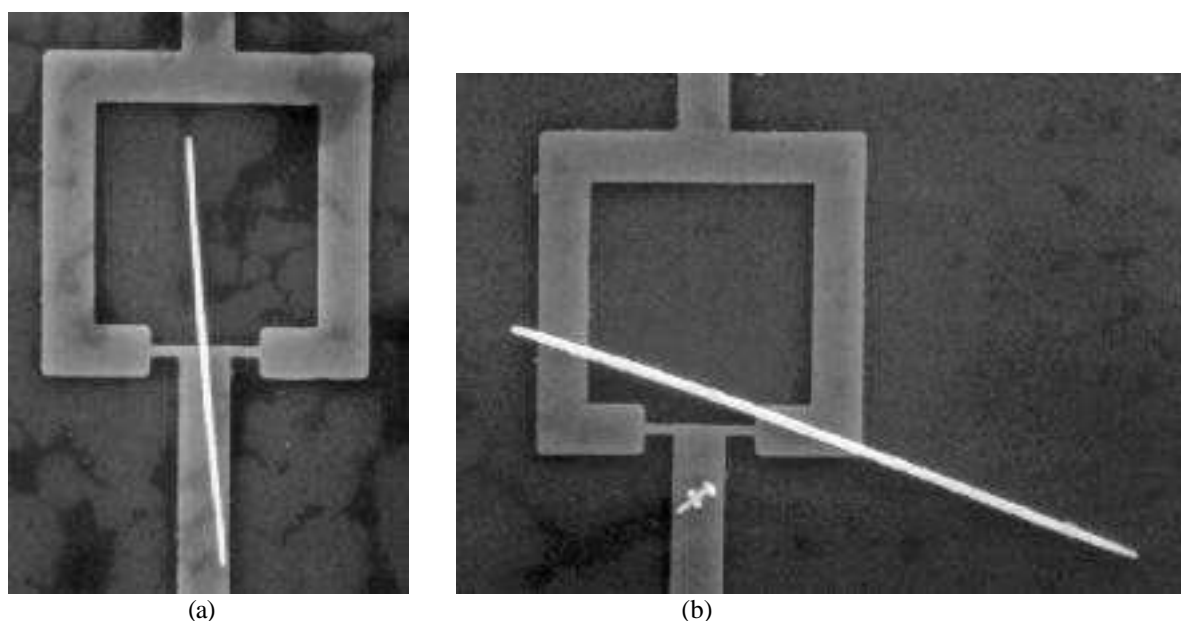


Fig. III.4.1 : Images obtenues par microscopie électronique (CIME à Lausanne) montrant des SQUID sur lesquels un fil de Ni est déposé. (a) Ni (21.2 15,1) diamètre de 65 ± 4 nm et longueur de 3.5 μm .
(b) Ni (21.1 8,3) diamètre de 90 ± 2 nm et longueur de 5 μm .

III.4.2 Dépendance angulaire du champ de retournement de l'aimantation

Afin d'étudier la structure en domaines et les modes de retournement de nos échantillons, nous avons mesuré la variation des cycles d'hystérésis en fonction de l'angle et pour différents diamètres des fils.

Le champ magnétique est appliqué dans le plan du fil et du SQUID, et l'angle θ est mesuré entre l'axe du fil et le champ appliqué. Si le fil a l'une de ses extrémités sur la boucle du SQUID (figure III.4.1a), le signal est à peu près proportionnel à la projection de l'aimantation sur l'axe du fil. La figure III.4.2a montre quatre cycles d'hystérésis mesurés pour un fil de Ni de diamètre 65 nm et de longueur 3.5 μm . Le cycle d'hystérésis est réversible jusqu'au champ de retournement H_{sw} , valeur du champ externe pour laquelle le flux change brusquement. Dans tous les cas, ce retournement est plus rapide que notre résolution en temps, i.e. plus rapide que 100 μs .

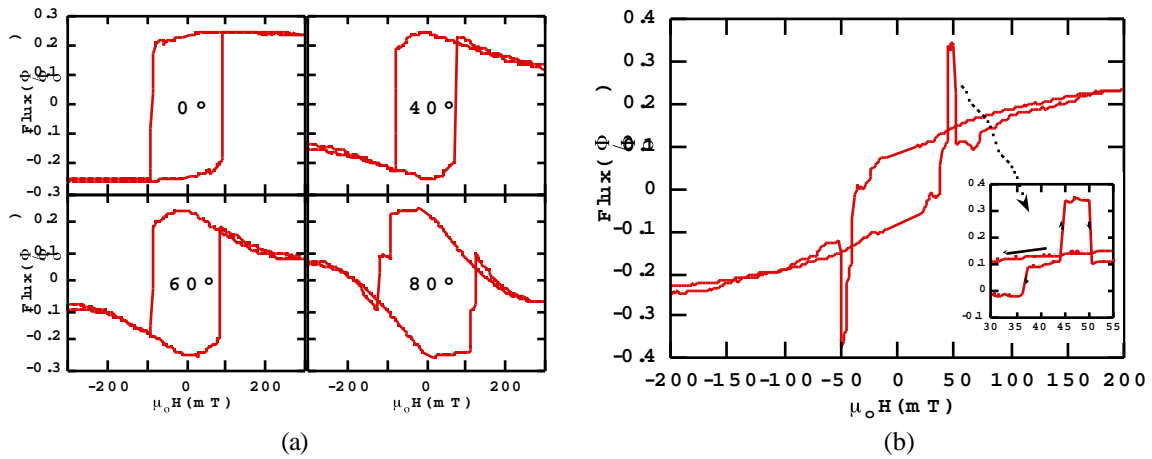


Fig. III.4.2. (a) Cycles d'hystérésis pour quatre angles θ du champ appliqué (fil de la figure III.4.1a). (b) Cycle d'hystérésis pour $\theta = 0^\circ$ du fil de la figure III.4.1b. La courbe insérée montre un agrandissement du cycle d'hystérésis : le retournement de l'aimantation se fait par deux sauts.

Nous avons trouvé que, pour des fils de diamètres supérieurs à 80 nm, la dépendance angulaire du champ de retournement peut être bien décrite par le modèle de retournement de l'aimantation dans un cylindre infini selon le mode curling (figure III.4.3). La variation du champ de retournement selon l'angle est donnée par (cf. I.1.2) [Frei 1957]:

$$H_{\text{sw}} = \frac{M_S}{2} \frac{h_n(1+h_n)}{\sqrt{h_n^2 + (1+2h_n)\cos^2\theta}} \quad (1)$$

Pour un cylindre infini, $h_n = -1.08 (d_0/d)^2$, $d_0 = 2\sqrt{A}/M_s$ où A est la constante d'échange. Le diamètre critique d_0 correspondant au passage de la transition par rotation uniforme ($d < d_0$) au mode curling ($d > d_0$). En ajustant la formule (1) aux mesures obtenues avec plusieurs fils de diamètres compris entre 80 et 100 nm, nous avons trouvé $d_0(\text{Ni}) = (34 \pm 4)$ nm. Ce résultat peut être comparé avec la valeur classiquement citée : $d_0(\text{Ni}) = 42$ nm [Schabes 1991]. Ceci montre que le modèle curling, bien que prévu pour un cylindre infini, peut décrire quantitativement les résultats que nous avons obtenus avec des fils de grands diamètres (> 80 nm).

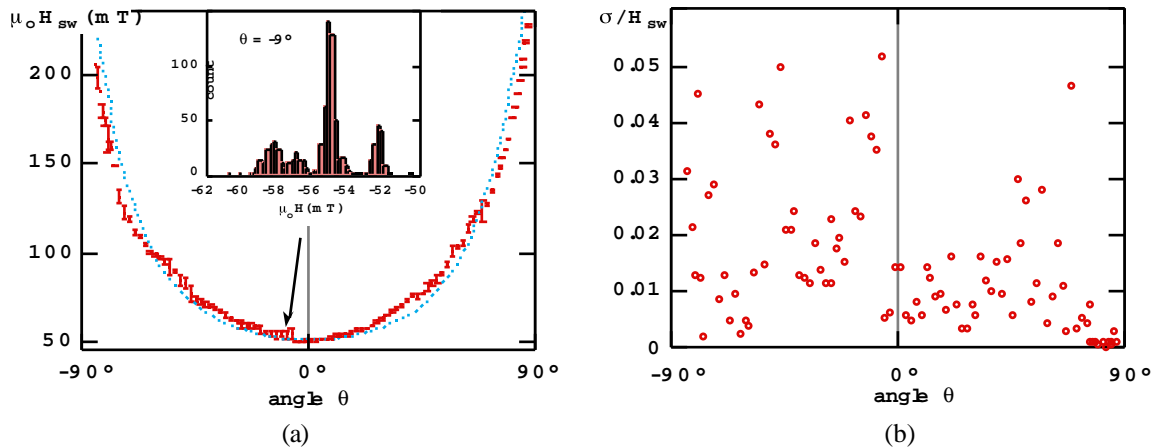


Fig. III.4.3 : (a) Dépendance angulaire du champ de retournement pour un cylindre de Ni (21.3 3,12) de diamètre 92 nm et de longueur 5 μm . Figure insérée : histogramme du champ de retournement. Barres : largeur des histogrammes. Courbe en pointillé : prévision selon le modèle de curling avec $d_0 = 34$ nm. (b) Dépendance angulaire de la largeur σ de la distribution du champ de retournement.

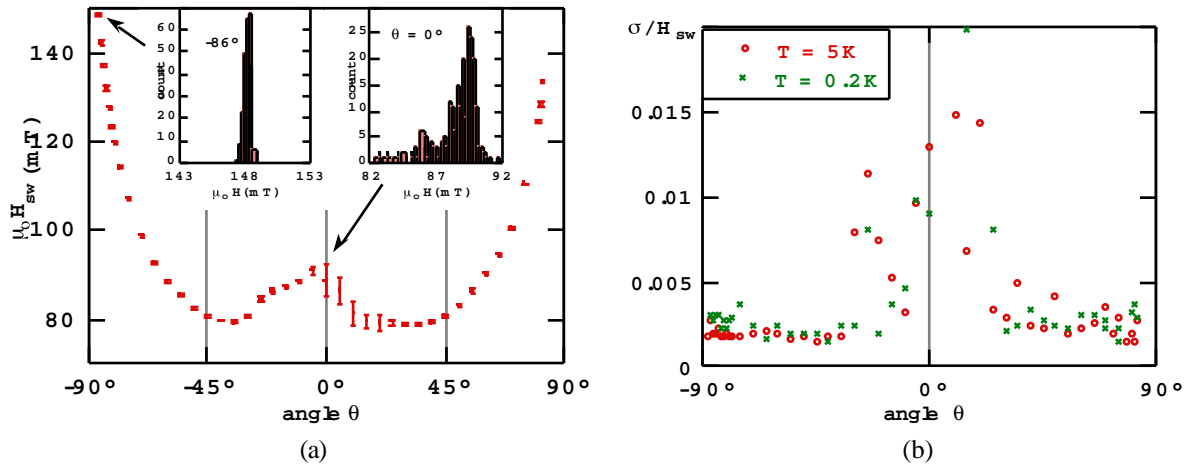


Fig. III.4.4 : (a) Dépendance angulaire du champ de retournement pour un cylindre de Ni (21.2 15,1) de diamètre 65 nm et de longueur 3.5 μm (montré dans la figure III.4.1a). Figure insérée : deux histogrammes du champ de retournement. Barres : largeur des histogrammes. (b) Dépendance angulaire de la largeur σ de la distribution du champ de retournement pour 0.2 et 5 K.

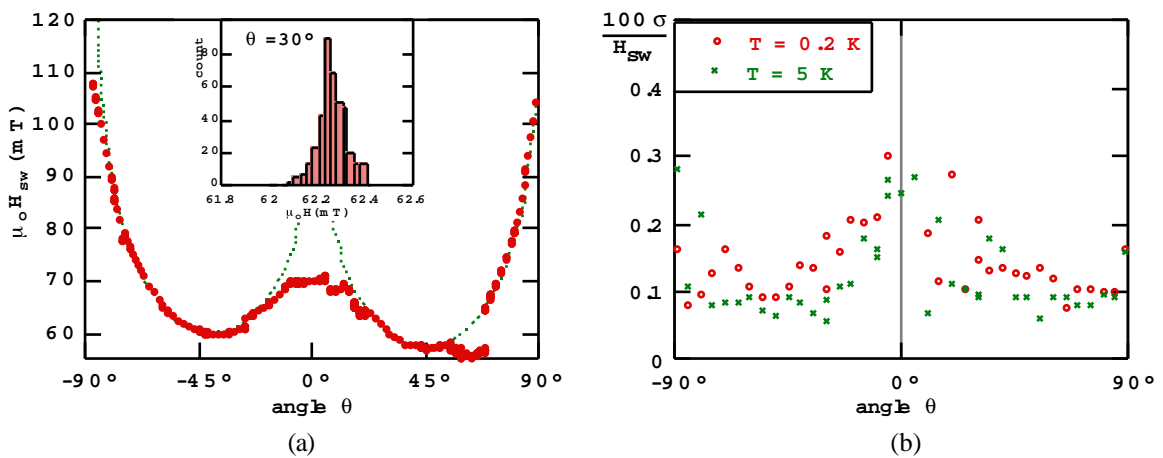


Fig. III.4.5 : (a) Dépendance angulaire du champ de retournement pour un cylindre de Ni (21.8 7,4) de diamètre 45 nm et de longueur 3 μm . Courbe pointillée : prévision selon le modèle de rotation uniforme. Figure insérée : histogramme du champ de retournement. (b) Dépendance angulaire de la largeur σ de la distribution du champ de retournement pour 0.2 et 5 K.

Le modèle de curling devient de plus en plus difficile à ajuster à la variation angulaire du champ de retournement quand le diamètre du cylindre devient inférieur à 80 nm. Avec la diminution du diamètre, nous avons observé l'augmentation de la valeur du champ de retournement, mais cette croissance est plus lente que celle prévue par le modèle de curling. Pour des diamètres inférieurs à 70 nm, nous avons observé l'apparition d'une valeur maximale pour le champ de retournement autour de 0°, ce qui est une réminiscence du mode de rotation uniforme de Stoner-Wohlfahrt (figure III.4.4 et 5).

Avant de donner une explication possible pour la diminution des champs de retournement, voici d'abord l'aspect dynamique du retournement de l'aimantation.

III.4.3 Nucléation du retournement de l'aimantation

Nous avons étudié la nucléation de retournement de l'aimantation en mesurant la distribution des champs de retournement en fonction de la température et de la vitesse de balayage du champ. A partir de ces distributions, nous avons calculé la moyenne H_{sw} et la largeur σ . La figure III.4.6 montre la variation de H_{sw} en fonction de la température et de la vitesse de balayage pour un fil de Ni. Les barres indiquent la largeur σ . La figure III.4.7a présente la dépendance thermique de σ pour quatre fils de Ni.

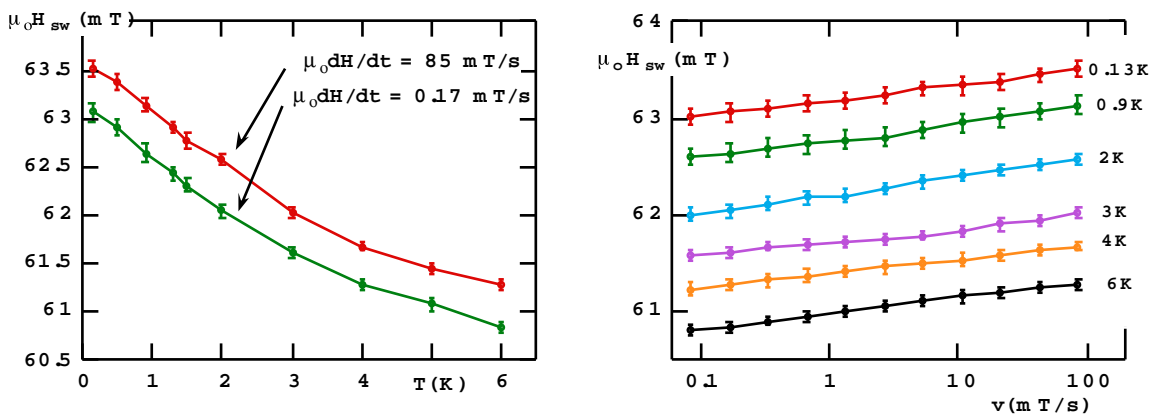


Fig. III.4.6 : Variation de la valeur moyenne du champ de retournement H_{sw} avec la température et la vitesse de balayage du champ pour un fil de Ni (21.8 7,4). Les barres indiquent la largeur σ de la distribution.

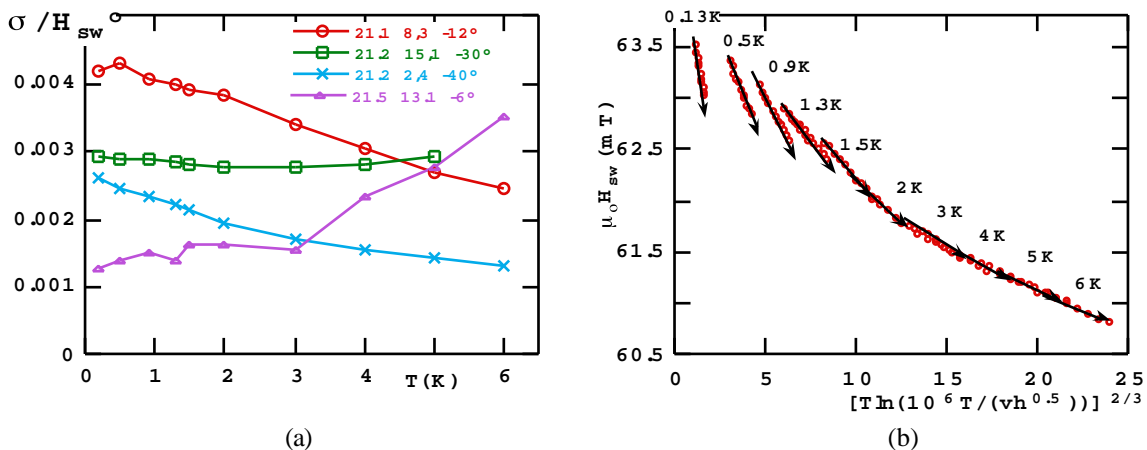


Fig. III.4.7 : (a) Dépendance thermique de la largeur σ pour quatre fils de Ni. (b) Ajustement du modèle de Kurkijärvi [Kurkijärvi 1972] (cf. I.4 formule 5) aux mesures des $H_{sw}(T,v)$ pour le fil (21.8 7,4) de Ni .

Nous avons ajusté le modèle de Kurkijärvi [Kurkijärvi 1972] (cf. I.4 formule 5) aux mesures de $H_{SW}(T,v)$. Le résultat est montré dans la figure III.4.7b. Avec le choix de $c = 10^6$, toutes les mesures aux températures supérieures à 1 K tombent sur une même ligne dite "ligne majeure". Les mesures effectuées en dessous de 1 K donnent des droites parallèles à la ligne majeure. A partir de la figure III.4.6, on peut facilement calculer les constantes intervenant dans la formule 5 du paragraphe I.4. Les résultats pour ce fil ainsi que pour d'autres fils sont donnés dans le tableau III.4.1.

fil de Ni	d (nm)	L (μm)	angle	H_c^0 (mT)	E_0/k (K)	$V^{1/3}$ (nm)	T_c (K)
21.1 8,3	90 ± 2	5	-12°	51.5	25 000	24	0.9
21.1 16,7	80	≈ 2	-40°	86	8 400	14	1.5
21.2 2,4	54 ± 2	4.4	20°	77	19 000	19	1
21.5 13,1	≈ 50	3.4	-6°	80	16 000	18	0.9
21.5 20,2	≈ 45	3.6	60°	82.5	33 000	23	0.8
21.8 7,4	≈ 45	≈ 4	33°	64.5	14 000	18	0.9
21.8 7,4	≈ 45	≈ 4	-27°	64	20 000	21	0.9
21.9 10,8	≈ 45	≈ 4	60°	84	45 000	25	0.85

Tab. III.4.1 : Quelques valeurs numériques des paramètres de l'équation 5 du paragraphe I.4, $\alpha = 1.5$.

III.4.4 Largeur σ de la distribution du champ de retournement

Nous avons étudié la variation de la largeur de la distribution du champ de retournement en fonction de l'angle, de la température et de la vitesse de balayage. Les plus grandes valeurs de la largeur σ , jusqu'à 5 % de H_{SW} , ont été trouvées pour des fils de diamètres compris entre 80 et 100 nm (voir par exemple la figure III.4.3b), et étaient dues à plusieurs sauts d'aimantation comme montré sur la figure III.4.8. En général, nous avons trouvé que σ est pratiquement indépendant de la température pour les échantillons où σ est supérieur à 0.5 % de H_{SW} .

Les plus petites valeurs de la largeur σ , comprises entre 0.05 et 0.4 % de H_{SW} , ont été mesurées pour les fils de diamètres inférieurs à 70 nm. Dans ce cas, σ décroît ou croît avec la température selon l'échantillon et l'angle du champ appliqué (figure III.4.7a).

De plus, nous avons souvent observé de grandes valeurs de σ pour des petits angles θ du champ appliqué (figures III.4.4 - 5b). Enfin, σ décroît avec la vitesse de balayage mais la dépendance est très faible.

Comme nos mesures ne vérifiaient pas la prévision selon laquelle la largeur diminue lorsque l'énergie d'activation thermique diminue, nous avons conclu que les fluctuations thermiques n'étaient pas les seuls paramètres à avoir une influence sur la largeur de la distribution du champ de

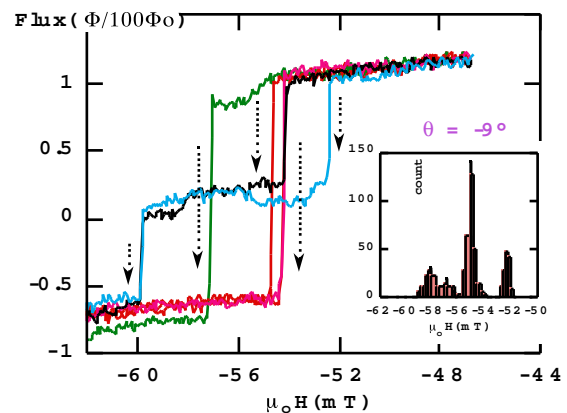


Fig. III.4.8 : Zoom sur cinq retournements de l'aimantation pour le fil (21.3 3,12) de Ni de la figure III.4.3b. L'aimantation se retourne par un, deux et parfois trois sauts. La figure insérée montre un histogramme d'environ 600 champs de retournement.

retournement. L'interprétation de ces résultats est donnée dans le paragraphe III.4.6 et dans le chapitre IV.

III.4.5 Probabilité de retournement de l'aimantation

Nous avons mesuré la probabilité de retournement $P(t)$ pour quelques fils en fonction du champ appliqué et de la température. Quelques exemples de $P(t)$ sont présentés dans la figure III.4.9. Pour comparer les mesures de $P(t)$ avec un modèle basé sur l'activation thermique de type Arrhenius (voir par exemple I.4 : modèle de Kurkijärvi), nous avons ajusté la loi suivante aux mesures par :

$$P(t) = e^{-(t/\tau)^\beta}$$

Nous avons trouvé que β dépend du diamètre de fil. Pour des fils de diamètres supérieurs à 70 nm, les valeurs de β sont généralement comprises entre 0.1 et 0.3, et pour des fils de diamètres inférieurs à 70 nm, β augmente jusqu'à des valeurs proches de l'unité.

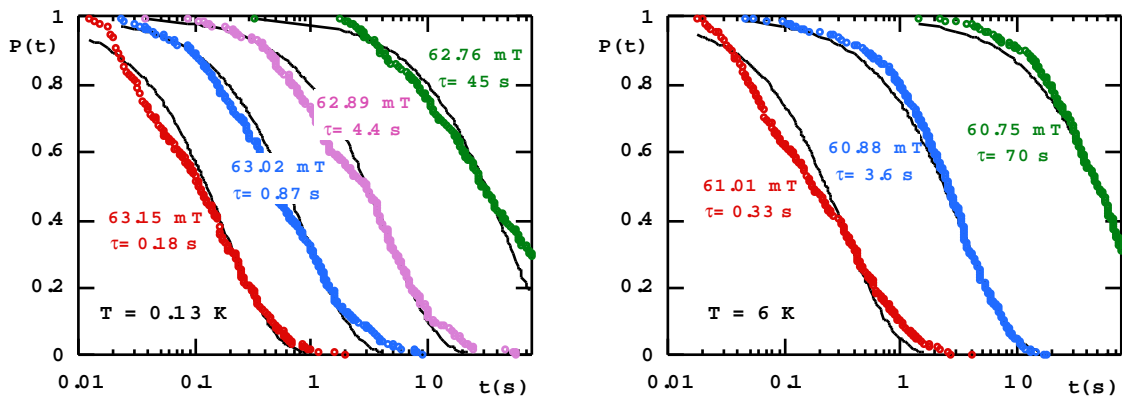


Fig. III.4.9 : Probabilité de non retournement de l'aimantation en fonction du temps pour différents champs appliqués à 0.13 et 6 K, pour un cylindre de Ni (21.8 7,4) de diamètre 45 nm, et à $\theta = 0^\circ$. Les lignes pleines sont ajustées aux données avec une exponentielle ($\beta = 1$). Le paramètre d'ajustement τ est indiqué dans les graphes.

L'ajustement d'une loi Arrhenius $\tau(T,H) = \tau_0 \exp(E(H) / kT)$ aux données de $\tau(H_w,T)$ était possible pour les températures supérieures à d'environ 1 K (voir la figure III.4.10).

On retrouve les mêmes paramètres d'ajustement que pour les mesures du champ de retournement (figure II.4.7b).

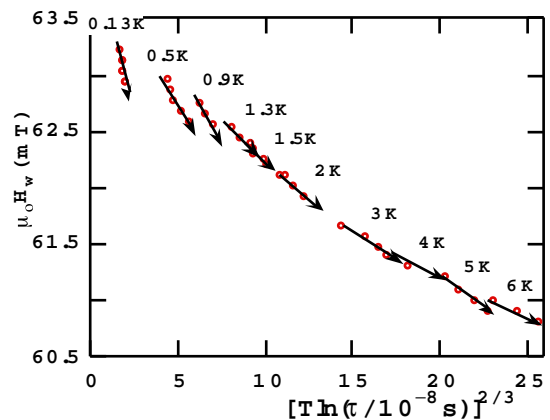


Fig. III.4.10 : Ajustement d'une loi Arrhenius aux mesures des $\tau(T,v)$ pour le fil (21.8 7,4) de Ni .

III.4.6 Dépiégeage d'une paroi (vortex)

Dans certains cas, nous avons observé que l'aimantation se retourne avec plus d'un saut. Des calculs géométriques nous permettent d'estimer approximativement la partie retournée du fil après le premier saut. Le premier saut correspond probablement à la nucléation d'une paroi (vortex) qui se propage le long du fil et se piège sur un défaut. Le deuxième saut correspond ensuite au dépiégeage de la paroi. Dans ce paragraphe nous montrons que la dynamique du dépiégeage peut être très différente de celle de la nucléation.

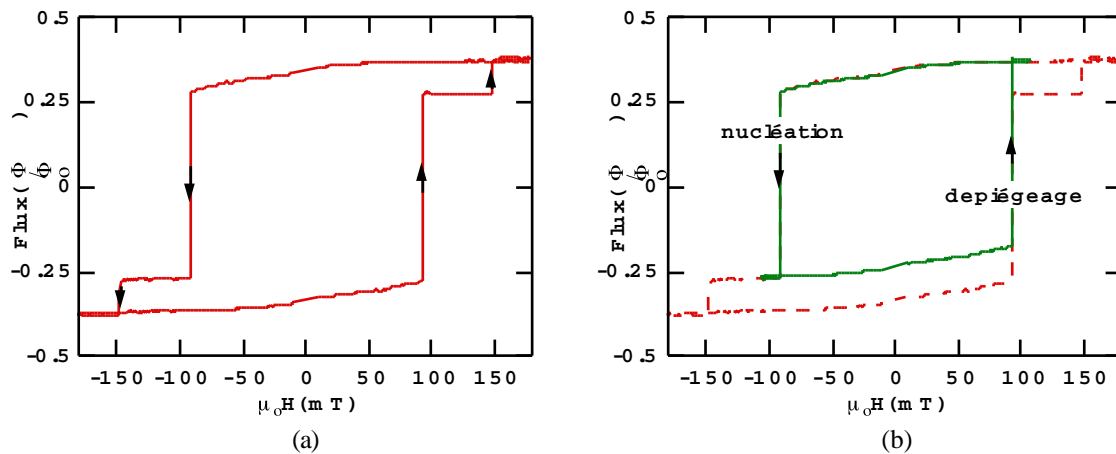


Fig. III.4.11. (a) Cycle d'hystérésis majeur pour un fil de Ni avec un diamètre de 45 nm, $\theta = 30^\circ$, (21.9 15,1).
 (b) Ligne continue : cycle d'hystérésis mineur après une saturation à champ positif.
 Ligne en pointillé : cycle d'hystérésis majeur comme dans la figure III.4.11a.

A titre d'exemple, nous avons choisi un fil de Ni avec un diamètre d'environ 45 nm. Le retournement de l'aimantation se fait par deux sauts d'aimantation (voir la figure III.4.11a). Nous avons étudié le dépiégeage à l'aide des cycles mineurs. Tout d'abord l'échantillon était saturé à champ positif. Ensuite, on retourne le champ jusqu'au premier saut correspondant à la nucléation et au piégeage de la paroi. Puis, on retourne le champ pour dépiéger la paroi à champ positif. Ce cycle mineur est montré dans la figure III.4.11b. Les mesures dynamiques sont montrées dans la figure III.4.12. Les différences essentielles par rapport à la nucléation sont :

(i) la variation de H_{SW} (dépiégeage) en fonction de la température et de la vitesse de balayage du champ est plus faible que pour H_{SW} (nucléation). Ceci est probablement dû au fait que le volume d'activation est plus grand pour une paroi piégée que pour un centre de nucléation.

(ii) la variation de H_{SW} (dépiégeage) en fonction de la température et de la vitesse de balayage du champ augmente fortement pour $T < 2$ K.

(iii) la largeur de la distribution du champ de retournement est très faible (≈ 0.03 % de H_{SW}).

(iv) l'ajustement du modèle de Kurkijärvi n'est pas possible.

(v) le coefficient β de la probabilité de retournement est compris entre 1.6 (0.13 K) et 2 (6 K).

Ces résultats sont similaires à ceux de l'annihilation de la paroi d'une particule de Co (cf. III.3.3).

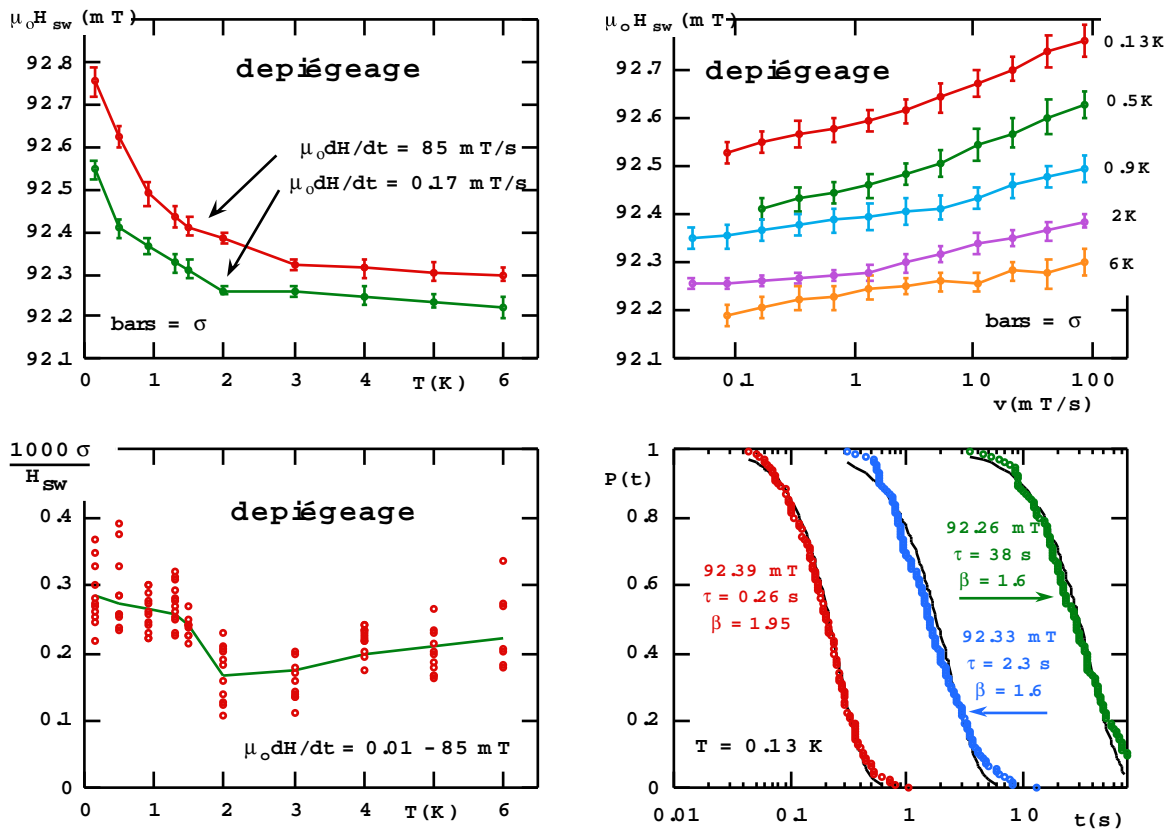


Fig. III.4.12 : Quelques résultats des mesures dynamiques de dépilage d'une paroi pour un fil de Ni avec un diamètre d'environ 45 nm (21.9 15,1).

III.4.7 Retournement non uniforme de l'aimantation et influence des défauts des échantillons

Nous avons trouvé plusieurs indices du retournement non uniforme de l'aimantation et nous avons noté que celui-ci était influencé par les défauts des échantillons.

(i) Dans le cas idéal du retournement de l'aimantation du type curling ou rotation uniforme (cf. I.1), les spins tournent tous ensemble et l'aimantation se retourne d'un seul saut. Ceci n'a pas été confirmé par nos mesures. Nous avons observé que, dans certains cas, l'aimantation se retourne avec plus d'un saut (voir III.4.6). Par exemple, la figure III.4.8 montre que l'aimantation du fil (21.3 3,12) se retourne par un, deux et parfois trois sauts. Dans ce cas, c'est environ la moitié du fil qui est retournée après le premier saut. Des calculs géométriques nous permettent d'estimer approximativement la partie retournée du fil après le premier saut. Le retournement par un ou plusieurs sauts d'aimantation dépend fortement de la direction du champ appliqué, de la température et de la vitesse de balayage du champ. Mais, même avec des conditions expérimentales fixées, des fluctuations stochastiques ont été observées entre les retournements par un ou plusieurs sauts d'aimantation. La figure insérée dans la figure III.4.8 montre un histogramme d'environ 600 cycles d'hystérésis qui présente quatre maxima. Il y a donc au moins quatre façons différentes pour que le retournement de l'aimantation se fasse.

(ii) Des calculs micromagnétiques récents concernant les processus d'aimantation non uniforme montrent qu'à l'extrémité de la particule les moments magnétiques ne sont pas colinéaires avec l'aimantation dans le matériau et que, lorsqu'on augmente le champ, l'aimantation se retourne via la formation d'éventails (fanning) et / ou la formation de vortex pour les moments [Schabes 1991, Ferré 1995]. Il est de plus possible que la rugosité en surface et les défauts cristallins bloquent la propagation du vortex. En fait, la microscopie à transmission électronique révèle des rugosités de surface de près de 5 nm et une structure polycristalline des fils. En général, une aimantation non uniforme réduit les champs de retournement et change la variation angulaire de ces champs de retournement. Par exemple, Richter a calculé la variation du champ de retournement en fonction de l'angle pour le modèle d'un matériau infini avec une région dans laquelle l'anisotropie magnétocristalline est nulle [Richter 1989]. Il trouve que l'influence des défauts réduit le champ de retournement H_{SW} spécialement pour les petits angles. Nos résultats confirment ces résultats théoriques pour les fils de diamètres inférieurs à 70 nm (figures III.4.4 et 5). Ceci est repris plus en détail dans le chapitre IV.

(iii) Nous avons trouvé d'autres preuves d'un retournement non uniforme de l'aimantation. Bien que l'aimantation se retourne en un temps plus petit que notre temps de résolution (environ 100 μ s), notre technique de détection de saut de flux (cf. II.2.5) nous permet d'estimer la borne inférieure de la variation du flux pendant le retournement de l'aimantation. Nous avons trouvé, pour toutes nos mesures, que la variation du flux pendant le retournement de l'aimantation est plus grande que celle induite par un retournement via le mode classique de curling. La grande variation de flux mesurée peut être expliquée par la propagation d'un vortex.

(iv) Cette interprétation est confirmée par les mesures dynamiques de l'aimantation montrant que le volume d'activation, dans lequel le retournement de l'aimantation est initié, est beaucoup plus petit que le volume du fil. La barrière d'énergie E_0 que l'on trouve par les mesures dynamiques des sauts d'aimantation (tableau III.4.1) correspond à un volume d'activation de l'ordre de $V \approx E_0 / (\mu_0 M_S H_{SW})$ (les applications numériques sont aussi données dans le tableau). C'est pourquoi nous pensons que les sauts d'aimantation sont déclenchés par un processus de nucléation.

(v) La comparaison des propriétés de retournement dynamique avant et après l'observation par microscopie électronique (MEB) a montré une augmentation de la largeur de la distribution des champs de retournement. Dans certains cas, c'était aussi la variation de H_{SW} en fonction de l'angle qui était changée du fait de l'observation par MEB. Par exemple, la figure III.4.13 montre que les variations de H_{SW} en fonction de l'angle pour le fil (21.2 15,1) sont très différentes avant et après que la photo de la figure III.4.1a ait été prise. L'examen minutieux du cycle d'hystérésis avant et après l'observation MEB montre qu'il y a toujours eu un saut précurseur avant le saut principal (figure

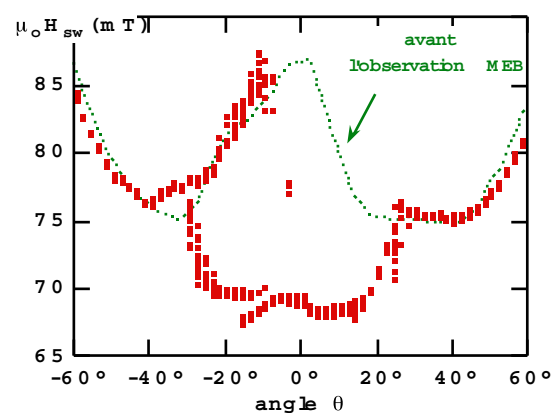


Fig. III.4.13 : Comparaison de la dépendance angulaire du champ de retournement avant (ligne en pointillés) et après l'observation par microscopie électronique (MEB) (figure III.4.1b).

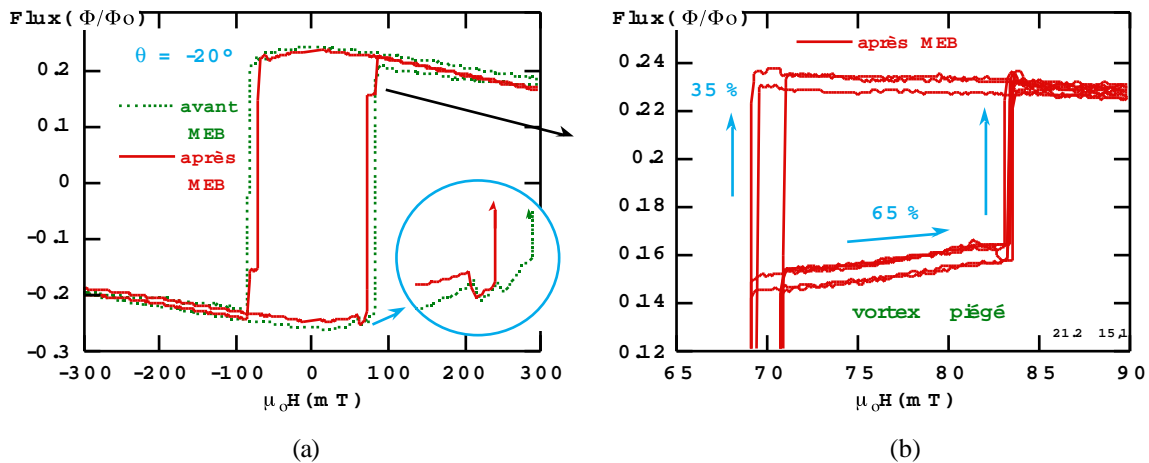


Fig. III.4.14 : (a) Cycle d'hystérésis avant et après l'observation MEB. (b) Agrandissement de sept cycles d'hystérésis. Après le saut principal, on observe le piégeage du vortex pour environ 65 % des mesures.

III.4.14a). Après le saut principal, on observe le piégeage du vortex pour 65 % des mesures (figure III.4.14b).

(vi) Le fait que dans nos mesures la largeur de la distribution du champ de retournement (figure III.4.7a) ne vérifie pas la loi thermique prévue (I.4, équation 6) est sans doute dû aux défauts des échantillons (rugosité de surface, défauts cristallins, impuretés, etc.). L'explication est en fait la même que celles données pour les particules de Co (cf. III.3.2d et III.3.3e). Les défauts créent une surface multivallée qui a une influence de plus en plus grande sur le retournement de l'aimantation lorsque la température diminue. Ce retournement peut alors se produire de multiples manières ce qui entraîne l'augmentation de la largeur de la distribution (figure III.4.7a) et la diminution de la valeur de β pour la probabilité de retournement.

III.4.8 Conclusion sur les mesures des fils

Les principaux résultats sont les suivants. Le retournement de l'aimantation pour des fils de Ni avec des diamètres réduits $S > 2$ (cf. I.1.2) peut approximativement être décrit par les concepts micromagnétiques classiques (mode de curling). Pour les diamètres plus petits, le retournement de l'aimantation est de plus en plus influencé par les défauts des échantillons, ce qui réduit le champ de retournement. Les cycles d'hystérésis montrent parfois plus d'un saut d'aimantation, ce qui met en évidence une propagation et un piégeage des vortex. Les mesures dynamiques ont montré une activation thermique des champs de retournement avec un volume d'activation, dans lequel le retournement de l'aimantation débute, beaucoup plus petit que le volume de la particule. La manière correcte de décrire le retournement de l'aimantation est de le faire en terme de processus d'aimantation non uniforme comme la formation d'un vortex au bord de la particule, qui se propage ensuite tout le long de la particule.

III.5 Agrégats de Ni, Co et Fe [Wernsdorfer 1995/4]

Le système le plus petit que nous ayons décidé d'étudier est constitué d'agrégats. Ces agrégats sont cristallisés et leur taille est comprise entre 2 et 6 nm. La figure III.5.1 montre la photo d'un agrégat de nickel de 3 nm. Dans un premier temps, nous n'avons étudié que des petits ensembles composés de quelques 100 à 1000 agrégats. Par la suite, nous allons essayer d'isoler des agrégats afin d'étudier les propriétés magnétique d'un seul agrégat. Nous espérons ainsi avoir un système pratiquement sans défauts (car bien cristallisé) et possédant peu d'impuretés.

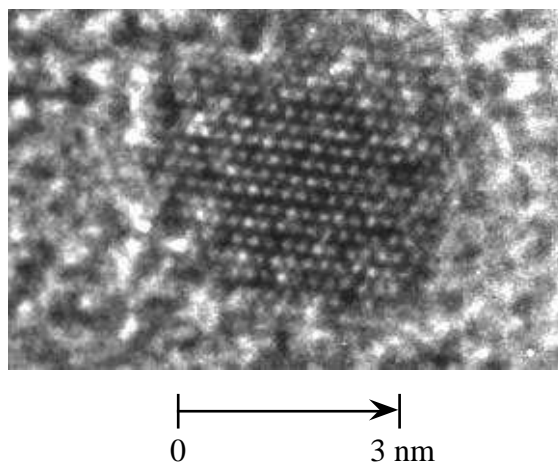


Fig. III.5.1 : Photographie faite sur un microscope électronique à transmission d'un agrégat de Ni de 3 nm [CNRS-Lyon].

III.5.1 Fabrication des agrégats

Les agrégats sont fabriqués par l'équipe du Département de Physique des Matériaux de Lyon. Cette équipe peut produire des agrégats de presque tous les types de matériaux et d'alliages. Elle utilise une source à vaporisation laser [Paillard 1993, Perez 1994].

Un faisceau laser (Nd : Yag doublé en fréquence, 532 nm, 90 mJ/impulsion) est focalisé sur un barreau ou un disque de l'élément à étudier. Dans notre cas, nous avons utilisé des barreaux de nickel, cobalt et fer. Le barreau est animé d'un mouvement de rotation et de translation pour éviter une usure localisée. L'impact laser génère un plasma très chaud composé d'atomes neutres et ionisés qui est trempé par une bouffée d'un gaz inerte sous forte pression (de 2 à 8 bars), généralement de l'hélium. L'injection du gaz est synchronisée avec l'impulsion du laser (la fréquence maximale est de 30 Hz).

La croissance des agrégats, dans la chambre de nucléation, obéit à un mécanisme d'agrégation d'atomes, l'énergie en excès étant dissipée lors de chocs avec les atomes d'hélium. La détente supersonique qui suit refroidit et stabilise les agrégats formés. On obtient alors un jet d'agrégats dont la taille moyenne est de cent à quelques centaines d'atomes. La taille moyenne peut être modifiée en intervenant sur les conditions de fonctionnement. Le faisceau d'agrégats passe au travers d'un diaphragme ce qui élimine la majeure partie de l'hélium. Celui-ci est absorbé par l'énorme capacité de pompage de la chambre (12000 l/s). Ensuite, le jet d'agrégats est analysé par spectrométrie de masse à temps de vol.

III.5.2 Dépôt des agrégats

Comme les agrégats ont peu d'énergie, on peut simplement les déposer sur un substrat (dépôt balistique) (Low Energy Cluster Beam Deposition). Les agrégats ayant une distribution autour de 100 à 200 atomes en vol se combinent et recristallisent sur le substrat pour former des agrégats plus grands (nickel, cobalt et fer : 2 à 6 nm).

Tout d'abord, nous avons élaboré des plaquettes avec une centaine de SQUID recouverts d'une couche de PMMA (figure III.5.2). Ensuite, utilisant la lithographie électronique, nous avons percé des trous dans le PMMA au niveau du fil de la boucle du SQUID. Nous appelons ces trous les "fenêtres de détection" des agrégats. Finalement, nous avons déposé une couche d'agrégats sur toute la plaquette et une couche de carbone pour protéger les agrégats contre l'oxydation. Pour les dépôts faibles (inférieurs à quelques nm), seuls les agrégats qui sont tombés dans la fenêtre de détection sont bien couplés avec le SQUID, i.e. le signal venant des agrégats sur la couche de PMMA est bien inférieur au signal des agrégats dans la fenêtre (voir plus bas). Pour les dépôts supérieurs à quelques nm, nous avons enlevé les agrégats sur le PMMA en dissolvant le PMMA dans du trichloréthylène (technique de "lift-off" (cf. II.5)).

A l'aide de cette technique, nous avons déposé de petits ensembles composés de quelques 50 à 1000 agrégats sur les SQUID. Les épaisseurs équivalentes (à une couche de métal pur) des dépôts s'échelonnaient entre 0,1 nm à 20 nm.

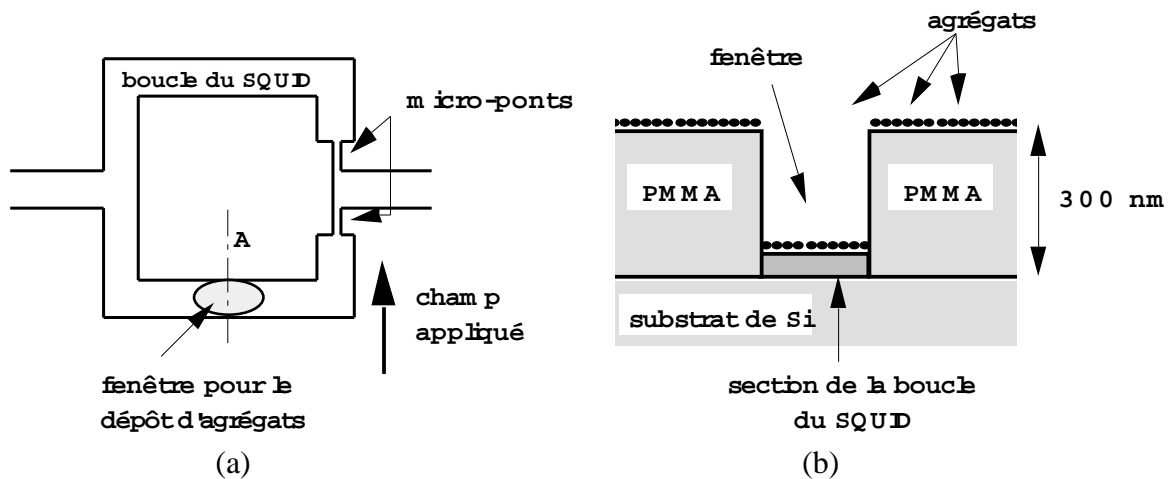


Fig. III.5.2 : (a) Schéma d'un SQUID avec la position de la fenêtre de détection pour les agrégats. (b) Coupe suivant la ligne A.

III.5.3 Estimation du signal venant des agrégats sur la couche de PMMA

On suppose que la couche de PMMA est parfaitement plane et parallèle au plan du SQUID. S'il n'y a pas de fenêtre de détection et si le retournement des agrégats se produit de manière homogène (pas d'avalanche de retournement), le flux traversant la boucle de SQUID est nul. Dans le cas d'une fenêtre de détection, on peut considérer le problème complémentaire, i.e. on remplace la couche d'agrégats avec un trou (dû à la fenêtre de détection) par une "couche d'agrégats complémentaires" avec les dimensions de la fenêtre de détection et à la même hauteur que les agrégats sur la couche de PMMA (cf. figure III.5.3). Le signal de ces agrégats complémentaires est simplement opposé au signal des agrégats réels. Dans le paragraphe II.3, nous avons trouvé que le couplage entre le SQUID et la particule décroît rapidement avec $1/r$ (r : distance entre le SQUID et la particule). Donc, le rapport entre le signal des agrégats dans la fenêtre de détection et le signal des agrégats complémentaires est d'environ :

$$\frac{1}{r_{\text{réel}}} : \frac{1}{r_{\text{compl.}}} = \frac{1}{15\text{nm}} : \frac{1}{300\text{nm}} = 20$$

i.e. la contribution des agrégats sur la couche de PMMA est faible. Néanmoins, nous avons remarqué que le signal des dépôts supérieurs à quelques nm devient gênant, spécialement pendant le retournement de l'aimantation. Ceci vient du fait que le retournement des agrégats s'effectue de manière non-homogène, i.e. par petites avalanches de retournement. De plus, le dépôt d'agrégats n'est jamais homogène.

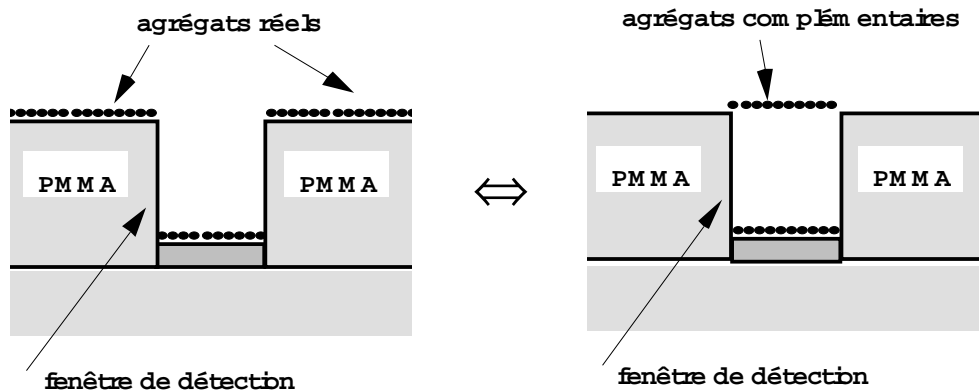


Fig. III.5.3 : Schéma en coupe d'un SQUID avec la fenêtre de détection. On remplace la couche d'agrégats avec un trou par une "couche d'agrégats complémentaires" possédant les dimensions de la fenêtre de détection.

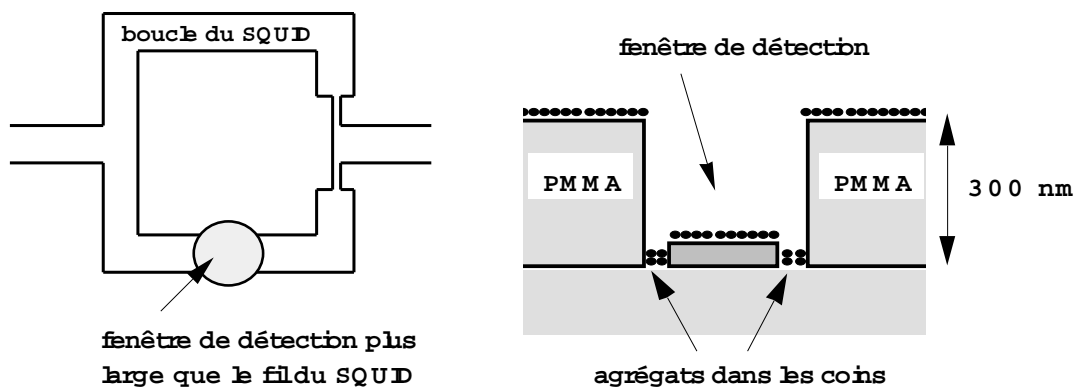


Fig. III.5.4 : Schéma d'un SQUID, la position de la fenêtre de détection étant plus large que le fil du SQUID.

III.5.4 Formation des agrégats dans les coins du substrat

Il est bien connu que la formation des agrégats se passe préférentiellement dans des coins ou rayures du substrat [Paillard 1993]. Un défaut courant de nos plaquettes, favorisant la formation des agrégats dans les coins, était une fenêtre de détection légèrement plus large que le fil de la boucle du SQUID (cf. figure : III.5.4). Dans ce cas, un nombre non négligeable d'agrégats se forme dans le coin fil - substrat - PMMA. Le couplage de ces agrégats avec le SQUID est opposé et du même ordre de grandeur que le couplage des agrégats sur le fil. De plus, ces agrégats sont bien couplés entre eux, i.e. le retournement se fait par des avalanches. Les sauts d'aimantation, dus aux avalanches, peuvent être confondus avec les sauts dus aux agrégats isolés sur le fil de la boucle du SQUID. Un exemple d'une

telle mesure est montré dans la figure III.5.10. On peut partiellement résoudre ce problème en gravant le substrat plus profondément, comme on peut le voir dans la figure III.5.5. Dans ce cas, le signal des agrégats dans les coins est négligeable. Mais il reste le problème de savoir combien d'agrégats se logent dans les coins.

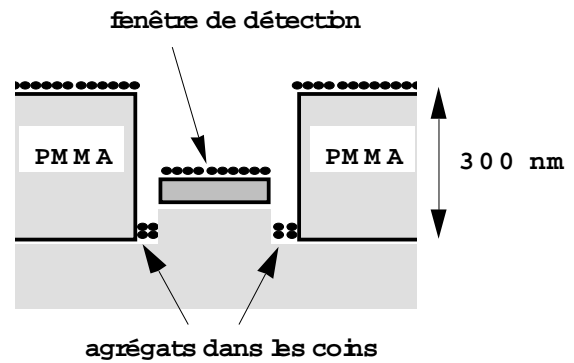


Fig. III.5.5 : Schéma en coupe d'un SQUID avec la fenêtre de détection. Pour diminuer le couplage des agrégats dans les coins, on grave le substrat plus profondément.

III.5.5 Mesures des cycles d'hystérésis

Nous avons fait des mesures avec des agrégats en nickel, cobalt et fer. Je présente ici essentiellement les résultats obtenus avec des agrégats de cobalt car les mesures effectuées jusqu'à maintenant sur les agrégats en nickel et fer sont qualitativement les mêmes. Ceci est lié au fait que nous avons surtout mesuré des ensembles d'agrégats formant une couche relativement épaisse (0.5 à 20 nm).

Dans certaines figures, nous avons transformé approximativement les variations de flux mesurées par le SQUID en variations du moment magnétique. Pour ceci, nous avons utilisé la sensibilité de $4 \cdot 10^7 \mu_B / \Phi_0$, valeur obtenue pour les particules élaborées par lithographie électronique (cf. III.3). Donc, le signal d'un agrégat de Co avec un diamètre de 5 nm ($10^4 \mu_B$) serait de $2.5 \cdot 10^{-4} \Phi_0$. Cette valeur est du même ordre que les valeurs calculées au paragraphe II.3.4e.

a) Variation du cycle d'hystérésis avec l'épaisseur et de la forme du dépôt

Dans la figure III.5.6 sont représentés les cycles d'hystérésis d'un dépôt de cobalt avec des épaisseurs équivalentes à 0.6, 1.2 et 5 nm. Les signaux mesurés sont divisés par l'épaisseur du dépôt afin de pouvoir mieux les comparer. Le contour du dépôt est de forme rectangulaire ($1,6 \mu\text{m} \times 0,4 \mu\text{m}$) et le champ est appliqué perpendiculairement à l'axe de facile aimantation du dépôt. On peut remarquer différents points.

- Le champ coercitif et le champ de saturation diminuent si l'épaisseur équivalente de la couche d'agrégats augmente. Ceci est lié au fait que, pour les plus faibles épaisseurs, les agrégats sont très dispersés et par conséquent très peu couplés (la taille des agrégats (≈ 5 nm) est indépendante de l'épaisseur effective du dépôt). Lorsque les particules se rapprochent, elles commencent à interagir davantage par couplage dipolaire et / ou d'échange. Plus l'épaisseur est grande, plus le couplage entre les agrégats est important et plus l'anisotropie de forme du dépôt détermine le renversement de l'aimantation. On peut aussi comparer ces cycles avec le cycle d'un dépôt de cobalt en couche mince (8 nm d'épaisseur). Ce dernier cycle est fermé, i.e. il est complètement gouverné par l'anisotropie de forme.

- Le signal normalisé par l'épaisseur du dépôt diminue si l'épaisseur diminue. Ceci est probablement lié à une oxydation plus importante pour des faibles épaisseurs du dépôt.

D'autres exemples de la dépendance du cycle d'hystérésis en fonction de l'épaisseur et de la forme du dépôt sont montrés dans les figures III.5.7.

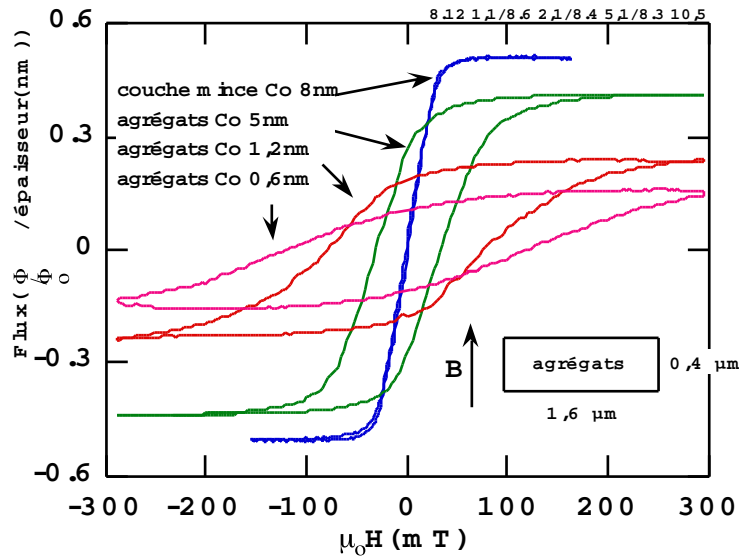


Fig. III.5.6 : Variation du cycle d'hystérésis avec l'épaisseur équivalente du dépôt.

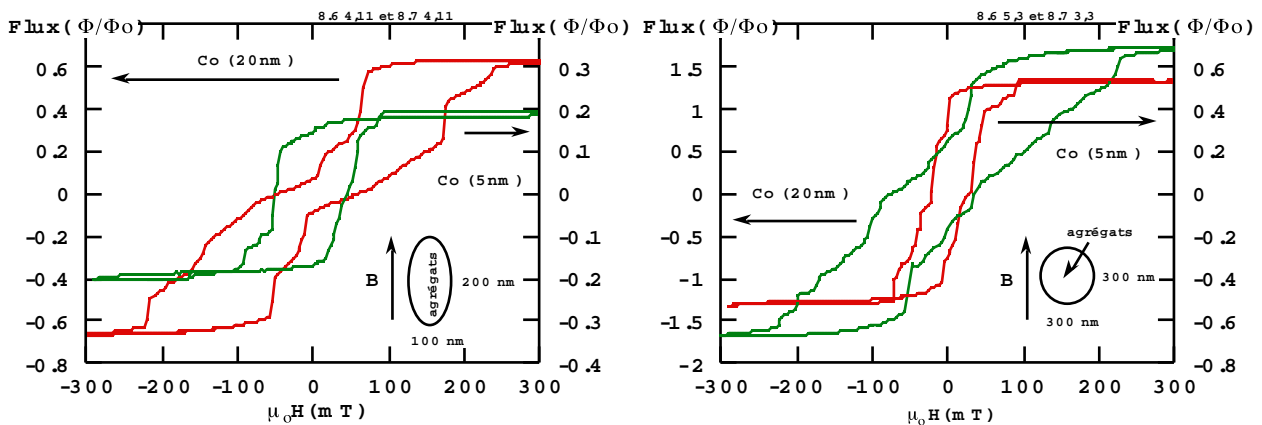


Fig. III.5.7 : Variation du cycle d'hystérésis avec l'épaisseur équivalente et de la forme du dépôt.

b) Variation des sauts d'aimantation en fonction de l'épaisseur du dépôt

Tous les cycles mesurés sur de petits ensembles d'agrégats ont montré des sauts d'aimantation plus ou moins importants. Dans les figures III.5.8 et III.5.9 sont comparés les cycles d'hystérésis de dépôts entre 0.2 et 15 nm d'épaisseur équivalente. On voit que le dépôt de 15 nm montre un cycle d'hystérésis similaire aux cycles de type C mesuré sur des particules de Co en couche mince (cf. III.3). Par contre, le dépôt de 5 nm montre un cycle d'hystérésis similaire aux cycles de type B. En général, on peut dire que les couplages entre les agrégats sont plus faibles que ceux qui existent entre les grains d'un dépôt de cobalt en couche mince polycristallisée, mais ce couplage est encore assez fort pour conduire à la formation de domaines magnétiques.

Sur les figures présentées, un saut d'aimantation correspond au renversement d'un domaine ou à la propagation d'une paroi. L'épaisseur d'une paroi doit être ici plus faible que dans la couche mince continue. En effet, il faut moins d'énergie pour désaligner l'aimantation de deux agrégats juxtaposés que deux grains dans la couche mince car le couplage entre les agrégats est plus faible. De plus, la propagation d'une paroi dans des ensembles d'agrégats est plus souvent piégée par des défauts. Ceci est très bien montré dans les figures III.5.7-8. Par exemple, le retournement de l'aimantation d'une ellipse de cobalt en couche mince, de 200 nm sur 100 nm et d'épaisseur inférieure à 30 nm, s'effectue un seul saut (cf. III.3.1-2), par contre une même ellipse composée d'agrégats de cobalt montre plusieurs sauts d'aimantation.

La figure III.5.9 montre deux cycles d'hystérésis typiques pour des dépôts d'agrégats avec une épaisseur inférieure à l'épaisseur de percolation électrique des agrégats (≈ 2 nm). On remarque un couplage ferromagnétique non négligeable car les sauts observés sont plus grands que ceux d'un agrégat individuel. Les sauts d'aimantation viennent probablement d'agrégats qui se sont "collés" ensemble.

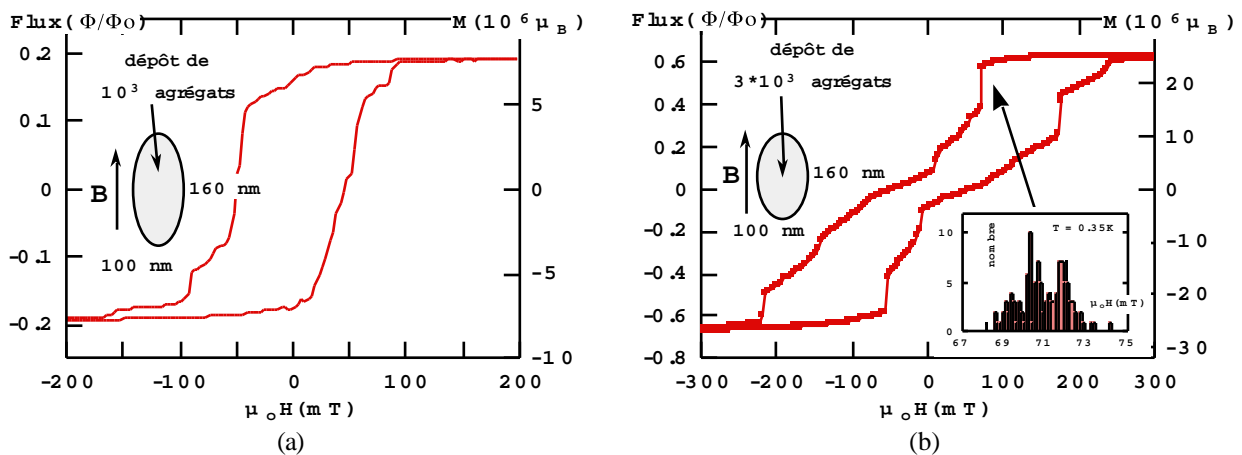


Fig. III.5.8 : Cycles d'hystérésis de deux particules elliptiques composées d'une couche d'agrégats avec des épaisseurs équivalentes de (a) 5 nm et (b) 15 nm. Un histogramme du premier saut d'aimantation est inséré dans la partie (b) (130 cycles d'hystérésis avec $dH/dt = 20$ mT/s).

c) Problème de l'oxydation des agrégats

Le problème majeur de cette étude est l'oxydation des agrégats. Les agrégats ont de grandes surfaces par rapport à leurs volumes et sont très réactifs. Même après l'encapsulation par une couche de carbone d'épaisseur 5 nm et une couche de résine, le signal mesuré sur des agrégats de faible épaisseur est plus petit que prévu, i.e. l'effet de l'oxydation est particulièrement important pour les plus petites épaisseurs. Nous n'avons pas mesuré de signal pour une épaisseur inférieure à 0,2 nm. L'oxygène oxydant vient probablement, non seulement de l'air, mais aussi des impuretés de la plaquette (couche d'eau, résine, SiO_2 , NbO , ...).

Trois exemples de vieillissement sont montrés dans la figure III.5.10. Notons que les agrégats situés dans les coins s'oxydent plus rapidement que ceux situés sur la boucle du SQUID. Ceci vient probablement du fait que l'encapsulation s'arrête vers les bords de la fenêtre de détection.

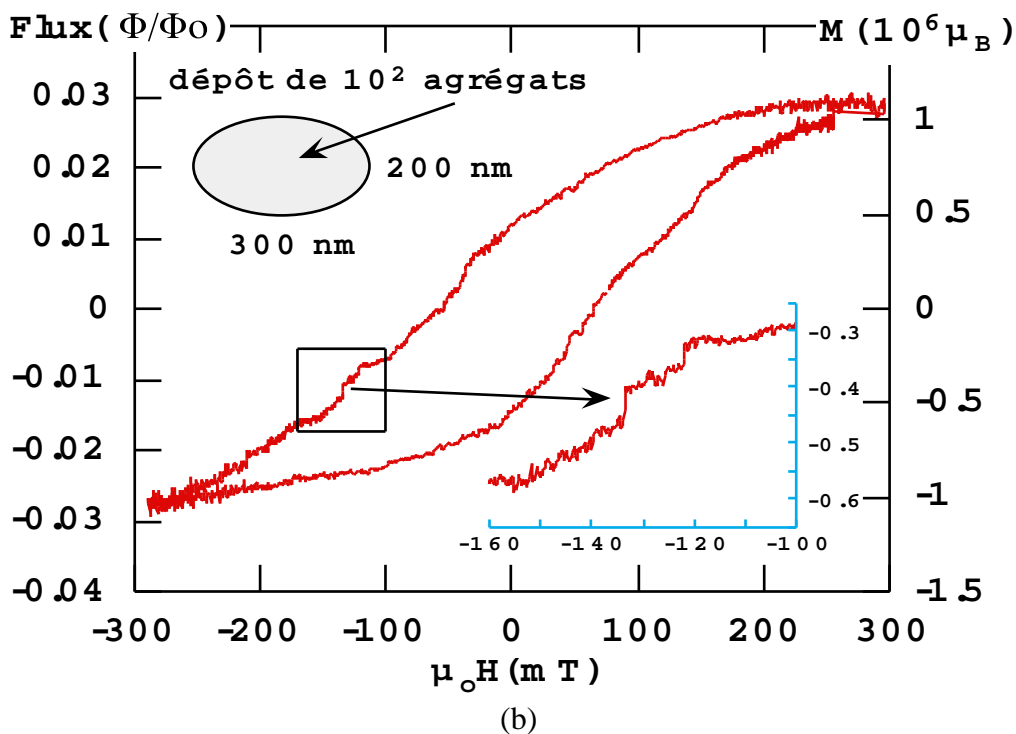
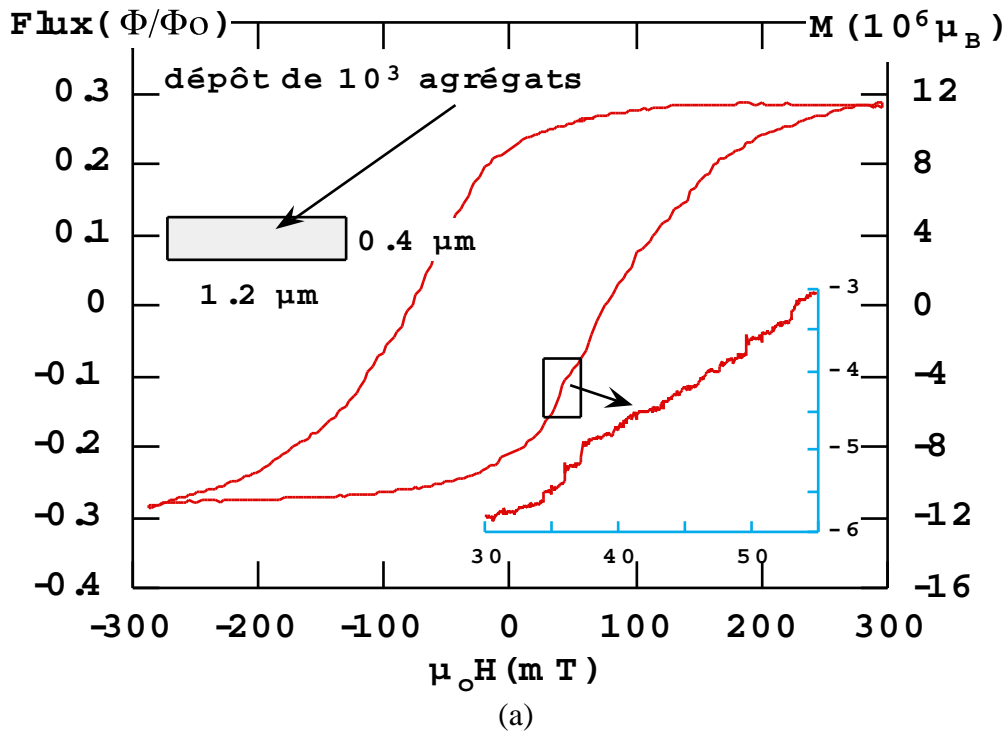


Fig. III.5.9 : Cycle d'hystérésis d'environ (a) 10^3 et (b) 10^2 agrégats de Co. L'épaisseur équivalente est d'environ 0.2 nm. Un zoom sur les cycles d'hysteresis est inséré dans les figures, montrant des sauts d'aimantation dus aux retournements de l'aimantation des agrégats. Un agrégat de 5 nm a $10^4 \mu_B$. $T = 0.2$ K.

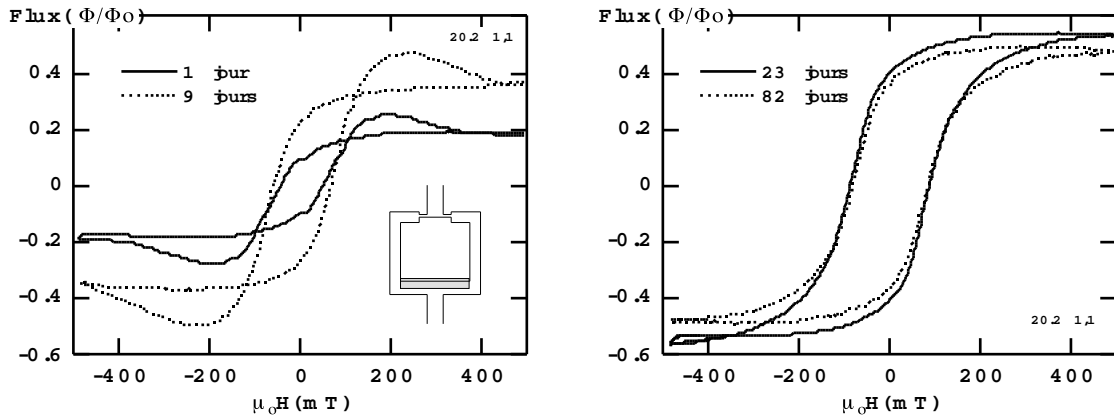


Fig. III.5.10a : Vieillessement d'un dépôt d'agrégats avec une épaisseur équivalente d'environ 1 nm. Les dimensions de la fenêtre de détection sont $2 \mu\text{m} \times 0.4 \mu\text{m}$. Elle est légèrement mal placée sur le fil de la boucle du SQUID. La contribution au signal magnétique des agrégats situés dans les coins est opposée à celle des agrégats situés sur le fil, et diminue avec le temps.

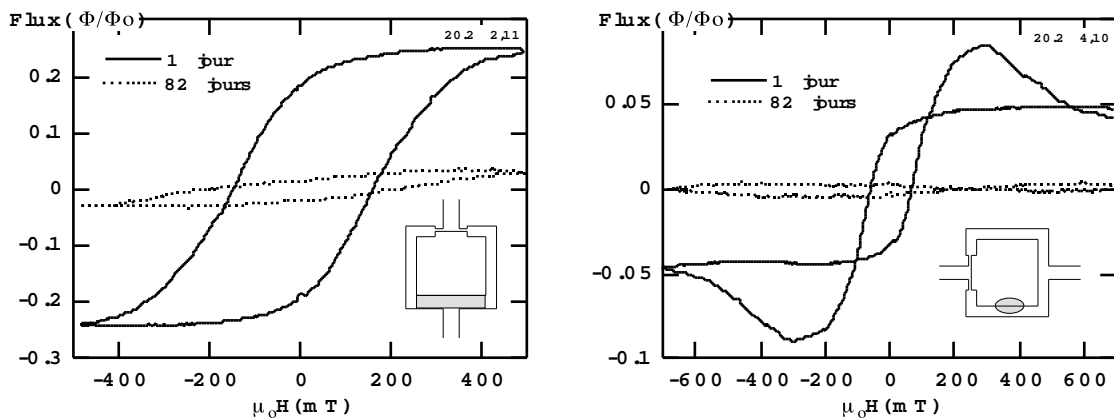


Fig. III.5.10b : Vieillessement d'un dépôt d'agrégats avec une épaisseur équivalente d'environ 1 nm. Les dimensions de la fenêtre de détection sont à droite $1.1 \mu\text{m} \times 0.1 \mu\text{m}$ et à gauche $0.2 \mu\text{m} \times 0.1 \mu\text{m}$. La fenêtre de détection à droite est légèrement mal placée sur le fil de la boucle du SQUID.

III.5.6 Conclusion sur les mesures des agrégats

Nous avons présenté ici les premières mesures effectuées sur de petits ensembles de 100 à 10000 agrégats. Les mesures ont été faites en utilisant une technique de mesure avec une sensibilité de $10^4 \mu_B$ (10^{-16} emu), qui est proche du signal magnétique d'un agrégat de Co de 5 nm. Par la suite, nous allons essayer d'isoler certains agrégats afin d'étudier les propriétés magnétiques d'un seul agrégat. Il est important d'améliorer la sensibilité de notre technique de mesure par un ou deux ordres de grandeur. Pour cela, nous voulons utiliser des SQUID shuntés (cf. II.4.5). Afin de résoudre le problème de l'oxydation, nous projetons de faire des mesures *in situ*.

Chapitre IV : Discussion des résultats expérimentaux

Dans cette partie nous commençons par discuter, à partir des différents cycles d'hystérésis observés, les variations de configurations des spins pendant le retournement de l'aimantation .

Nous regardons ensuite l'influence des défauts de la particule sur la dépendance angulaire du champ de retournement.

Nous nous sommes aussi intéressés à la dynamique du retournement de l'aimantation et notamment aux variations du champ de retournement H_{SW} en fonction de la température et de la vitesse de balayage du champ. Nous avons pu ajuster le modèle de Kurkijärvi à nos mesures. Néanmoins en dessous de 1 K, ce modèle ne permettant plus de décrire nos résultats, nous donnons différentes origines à ce phénomène.

A partir du modèle de Kurkijärvi nous avons pu déterminer un ordre de grandeur du volume d'activation dans lequel le retournement est initié. En ce qui concerne la barrière d'énergie, nous discutons le choix de l'exposant α . Au cours de nos études, nous nous sommes rendus compte de l'importance des défauts et comment ceux-ci se répercutent sur la largeur des champs de retournement.

Toujours en ce qui concerne la dynamique de retournement, nous discutons l'origine de la déviation de la probabilité de retournement de l'aimantation par rapport à une loi exponentielle, hypothèse utilisée pour le modèle de Kurkijärvi.

Enfin, nous mentionnons deux approches pour expliquer nos résultats élaborées par R. Mélin et J.-E. Wegrowe. La première consiste à modéliser la particule par un système de spins d'Ising et la deuxième, basée sur le théorème de fluctuation - dissipation et sur la formule de Kubo de la réponse linéaire, propose une interprétation statistique du problème du traînage magnétique des nanostructures.

Pour conclure cette partie, nous comparons nos résultats avec trois images résumant les idées principales de la discussion précédente. Ce sont les images d'une énergie potentielle multi-chemins, d'une particule idéale entourée par de petites particules et d'un volume d'activation dépendant de la température.

IV.1 Discussion du retournement de l'aimantation

IV.1.1 Configuration des spins d'une particule en lien avec les différents cycles d'hystérésis observés

Pour décrire le retournement de l'aimantation, il faut s'intéresser aux changements de configurations relatives des spins au sein d'une particule. Dans cette partie nous regardons seulement l'influence de la taille des particules en oubliant l'influence des différents matériaux, et en appliquant un champ parallèlement à l'axe de facile aimantation de la particule. Les différents cycles d'hystérésis que nous décrivons reprennent l'idée de classer les cycles observés selon leurs caractéristiques (cf. III.2), mais ici le classement est affiné et directement relié aux configurations des spins.

Pour les particules suffisamment petites, les spins restent toujours parallèles entre eux au cours du retournement de l'aimantation : c'est le modèle de Stoner-Wohlfarth. Ceci se traduit par un cycle d'hystérésis carré (figure IV.1.1a) (cf. I.1.1). Un autre cas conduisant aussi à un cycle carré est celui d'un retournement de l'aimantation selon le mode de curling (cf. I.1.2b). Les spins sont parallèles entre eux avant et après le retournement de l'aimantation. Par contre au moment du retournement on observe un enroulement des spins (cf. la figure I.1.7).

Ces concepts que nous venons de rappeler sont en fait trop simplistes. Il faut s'intéresser aux théories plus récentes du micromagnétisme [Brown 1962/63, Schabes 1988/91, Ferré 1995]. Ces théories discutent du retournement de l'aimantation dans des particules de plus en plus grandes pour lesquelles les spins ne restent plus colinéaires pendant le cycle d'hystérésis. Lorsque les particules sont très grandes, on observe même que les spins ne sont déjà plus parallèles à champ nul.

En prenant des particules un peu plus grandes que celles présentant une rotation uniforme des spins, on observe une déformation de la configuration des spins en pétale de fleur (figure IV.1.2a) juste avant le retournement. Au niveau du cycle d'hystérésis, cette configuration en fleur donne une courbure du cycle (figure IV.1.1b) pour des champs proches du champ de retournement de l'aimantation H_{SW} , accompagnée d'une diminution de H_{SW} .

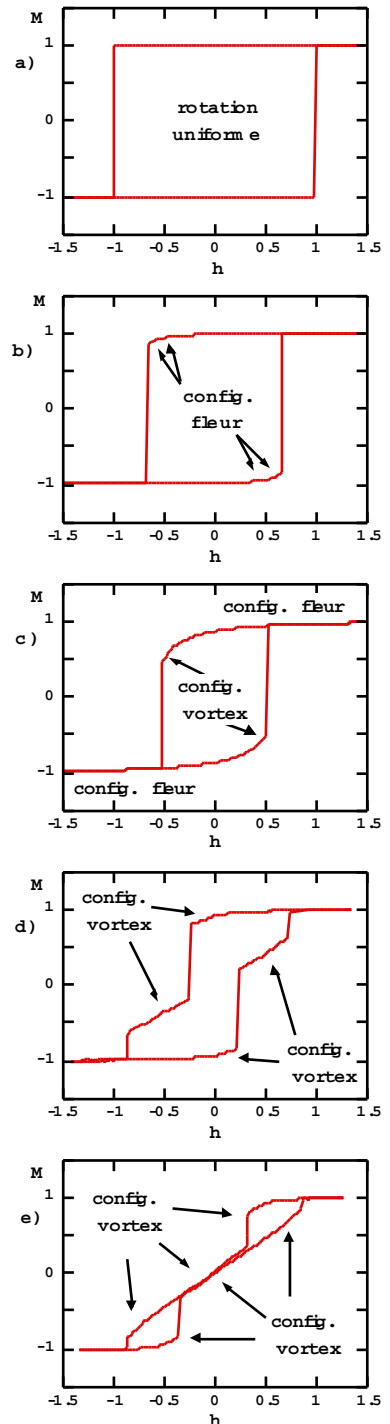


Fig. IV.1.1 : Différents types de cycles d'hystérésis en lien avec les configurations des spins.

L'augmentation de la taille de la particule entraîne l'augmentation du domaine d'existence de la configuration en fleur et l'apparition d'un vortex (figure IV.1.2b) juste avant le retournement global des spins (figure IV.1.1c).

Enfin pour les plus grandes particules, le champ de nucléation du vortex est assez faible et insuffisant pour qu'au moment du premier saut d'aimantation le vortex disparaisse. Il faut appliquer un champ plus fort pour trouver la configuration retournée et parallèle des spins (figure IV.1.1d-e). Dans le cas particulier du cycle (e), le champ de nucléation du vortex est positif, contrairement au cycle (d) où il est négatif. Cet effet résulte de la diminution du champ de nucléation dans le cas (e). La nucléation se fait à champ positif car le champ démagnétisant, qui s'ajoute alors au champ appliqué, suffit à nucléer le vortex.

Revenant à nos mesures, on peut dire que nous n'avons jamais observé un cycle exactement du type (a) correspondant à un retournement strictement uniforme de l'aimantation (modèle de Stoner-Wohlfarth). Nos plus petites particules ont donné des cycles d'hystérésis de type (b) (cf. III.3.1). Nous avons aussi mesuré des cycles de type (c) avec l'apparition d'un vortex (cf. III.3.2). Selon la direction du champ appliqué, les cycles pouvaient en fait être des types (c) ou (d). Parmi nos plus grandes particules, nous avons mesuré des cycles d'hystérésis de type (e) (cf. III.3.3-4).

Dans le cas particulier d'une particule très allongée (fils de Ni, cf. III.4) et d'un cycle d'hystérésis de type (c), le vortex est créé au bord de la particule et balaye toute sa longueur avant le retournement global des spins (figure IV.1.3).



Fig. IV.1.2 : (a) Configuration des spins en pétale de fleur, (b) configuration avec un vortex vu de haut et de côté [Ferré 1995].

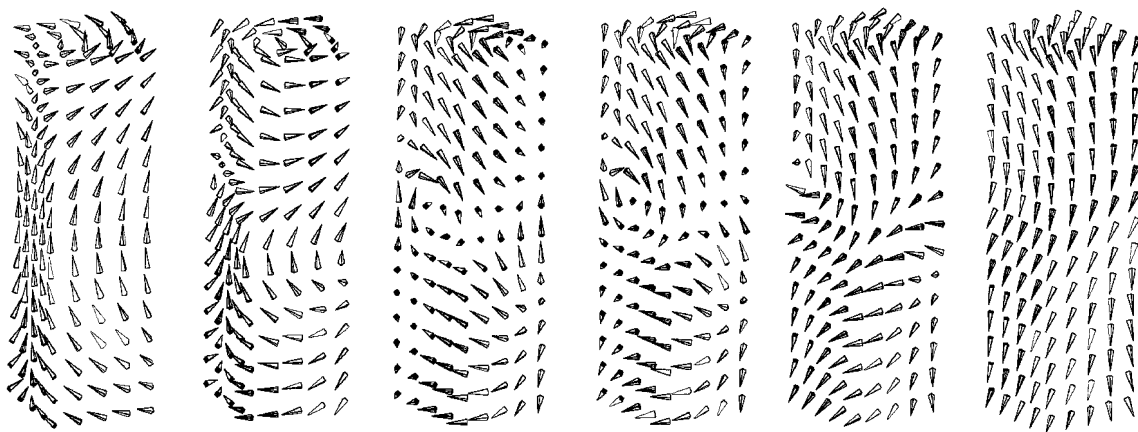


Fig. IV.1.3 : Création et déplacement d'un vortex dans une particule allongée [Ferré 1995].

IV.1.2 Influence des défauts de la particule sur la dépendance angulaire de H_{SW}

Comme nous venons de le voir avec les différents types de cycles d'hystérésis (figure IV.1.1a-e), un retournement non uniforme de l'aimantation entraîne une diminution du champ de retournement H_{SW} . Un défaut de la particule réduit aussi le champ H_{SW} . Dans l'exemple qui suit nous montrons que les défauts ont une influence particulièrement grande lorsque la direction du champ appliqué est peu différente de la direction de facile aimantation de la particule.

Richter a pris le modèle d'une particule ferromagnétique de longueur infinie possédant un défaut [Richter 1989]. La figure VI.1.4 montre la particule et le défaut qui correspond à une zone de longueur $2d$ dans laquelle l'anisotropie magnéto-cristalline est nulle. On note T la longueur réduite du défaut et α le paramètre exprimant la différence entre les matériaux des zones de la particule :

$$T = \sqrt{\frac{K_1 d^2}{A}} \quad \text{et} \quad \alpha = \frac{M_{Sd} A}{M_S A_d}$$

Le calcul de Richter néglige le champ démagnétisant. Le résultat du calcul de la dépendance angulaire du champ de retournement en fonction de T et α est donné dans la figure IV.1.5. On voit que le défaut a une influence très importante sur le champ de retournement lorsque les angles sont faibles. Plusieurs de nos résultats confirment qualitativement ce modèle théorique pour :

- les petites particules de Co nanocristallisé (cf. III.3) ;
- les particules de Fe monocristallin (cf. A.5.5) ;
- les fils de Ni polycristallisé (cf. III.4).

Cette approche n'est en fait pas la seule possible. D'autres auteurs proposent des calculs numériques sur des fils et des particules de différentes tailles (par exemple [Yan 1989, Uesaka 1991, Gadbois 1995]) et arrivent à la conclusion que les défauts réduisent la valeur du champ de retournement.

La discussion de ce paragraphe IV.1 est en fait très simplifiée. Actuellement une comparaison quantitative de nos mesures avec les théories récentes du micromagnétisme n'est pas possible. Mais

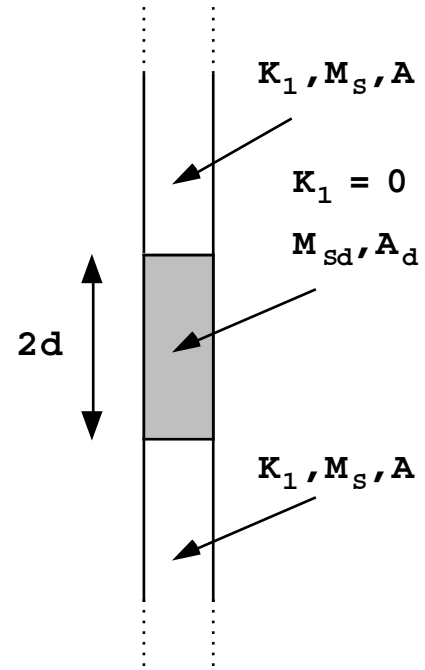


Fig. IV.1.4 : Schéma d'une particule ferromagnétique de longueur infinie possédant un défaut qui correspond à une zone de longueur $2d$ dans laquelle l'anisotropie cristalline est nulle.

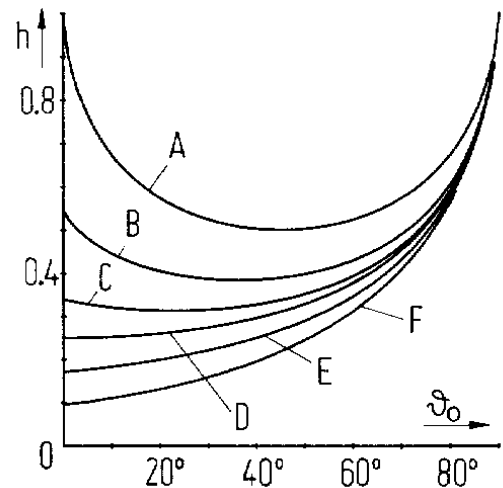


Fig. IV.1.5: Dépendance angulaire du champ de retournement calculé par Richter. A : modèle de Stoner-Wohlfarth. B : $T = 1$, $\alpha = 1$; C : $T = 2$, $\alpha = 1$; D : $T = 10$, $\alpha = 1$; E : $T = 10$, $\alpha = 2$; F : $T = 10$, $\alpha = 5$.

cela constitue un projet pour la suite de cette thèse. Dans le paragraphe suivant nous discutons l'aspect dynamique du retournement de l'aimantation.

IV.2 Discussion de la dynamique du retournement de l'aimantation

Dans ce qui suit, nous discutons l'influence de la structure et du matériau sur le retournement de l'aimantation. Pour cette discussion, nous avons choisi plusieurs systèmes : des particules de Co nanocristallisé (cf. III.3), polycristallisé (cf. A.5.1), nanocristallisé poreux (cf. A.5.2), monocristallisé (cf. A.6), des particules de Ni polycristallisé (cf. A.5.3) et des fils de Ni polycristallisé (cf. III.4).

Pour chaque système, nous avons étudié la dynamique du retournement de l'aimantation en mesurant la distribution de champ de retournement en fonction de la température et de la vitesse de balayage du champ. A partir de ces distributions, nous avons calculé le champ de retournement moyen H_{SW} et la largeur σ de la distribution.

IV.2.1 Dépendance thermique de H_{SW}

Toutes les mesures ont montré que H_{SW} augmente aux basses températures. Ce résultat est attendu pour des processus thermiquement activés. Comparant la dépendance thermique de H_{SW} des différents systèmes présentés dans le chapitre III et dans les annexes 5 et 6, on remarque plusieurs choses :

- (i) dH_{SW}/dT est généralement plus élevé à 1 K qu'à 6 K ;
 - (ii) dH_{SW}/dT est plus faible pour Ni que pour Co ;
 - (iii) dH_{SW}/dT est plus faible pour un matériau nanocristallisé par rapport au même matériau polycristallisé.
- ad (i) Dans le paragraphe I.3, nous avons trouvé que l'exposant α caractérisant la barrière est en général compris entre 1.5 et 2. Donc, le fait que dH/dT soit généralement plus élevé à 1 K qu'à 6 K est en accord avec ce modèle (voir la figure I.4.4).
- ad (ii) Ceci pourrait simplement résulter du fait que les barrières sont plus élevées avec le Ni, ce qui tend à diminuer la dépendance thermique de H_{SW} .
- ad (iii) L'origine pour ce comportement pourrait être due au fait que la structure magnétique est plus uniforme dans un matériau nanocristallisé (quasi-amorphe) que dans un matériau polycristallisé, car bien que les cristaux soient très petits dans un matériau nanocristallisé, la corrélation magnétique est très bonne. La nucléation de petits domaines ou de vortex est donc plus facile dans un système polycristallisé (où la taille de certains grains est justement de l'ordre de grandeur de celle des noyaux de nucléation) que dans le cas d'un matériau amorphe.

IV.2.2 Variation de H_{SW} en fonction de la vitesse de balayage du champ

De nouveau, comme attendu pour des processus activés thermiquement, H_{SW} augmente avec la vitesse de balayage du champ. Un ajustement aux données expérimentales peut être obtenu par $H_{SW} = a + b \ln(v)$, où les constantes a et b dépendent de la température. Comparant la constante b des différents systèmes présentés dans le chapitre III, on remarque plusieurs choses :

- (i) b est généralement plus petit à 1 K qu'à 6 K ;
- (ii) b est plus faible pour Ni que pour Co ;
- (iii) b est plus faible pour un matériau nanocristallisé (à part Co nanocristallisé poreux) que pour un matériau polycristallisé.

Les phénomènes observés sont similaires à la dépendance thermique de H_{SW} et sont donc explicables de la même manière.

IV.2.3 Ajustement du modèle de Kurkijärvi aux mesures de H_{SW}

Nous avons ajusté le modèle de Kurkijärvi [Kurkijärvi 1972] (cf. I.4) à de nombreuses mesures de H_{SW} concernant des particules de matériaux et formes différents. Il y a principalement deux déviations par rapport au modèle :

- (i) l'ajustement n'est possible qu'au dessus d'une certaine température (cf. IV.2.5) ;
- (ii) il existe une courbure résiduelle de la courbe majeure de l'ajustement (cf. IV.2.6).

Quelques ajustements typiques sont présentés dans la figure IV.2.1.

L'ajustement du modèle de Kurkijärvi ($\alpha = 1.5$) à nos mesures nous donne la hauteur de la barrière E_0 à champ nul, le champ de retournement de l'aimantation H_{sw}^0 à $T = 0$ et le préfacteur τ_0 de la loi Arrhenius. A cause de la courbure résiduelle de la courbe majeure, nous avons calculé des valeurs de E_0 à $T = 6$ K et à $T = T_C$ (≈ 1 K). A partir de E_0 , on peut calculer un ordre de grandeur du volume d'activation V , dans lequel le retournement débute, en utilisant la formule :

$$V = \frac{E_0}{\mu_0 M_s H_{sw}^0}$$

Dans le tableau IV.2.1 sont donnés les volumes d'activation des quatre différents systèmes présentés dans la figure IV.2.1. Comme attendu, V est plus grand pour un matériau nanocristallisé ou monocristallisé que pour le même matériau polycristallisé. Ceci vient du fait que l'épaisseur de paroi est plus grande dans un matériau nanocristallisé, amorphe ou monocristallisé que pour un matériau polycristallisé. De même, V est plus grand pour Ni que pour Co.

Il est intéressant de comparer ces résultats avec les paramètres de matériaux cités dans la littérature (voir tableau IV.2.2). On remarque que $\sqrt[3]{V}$ est proche de la longueur d'échange \sqrt{A}/M_S .

Le Ni est caractérisé par une grande longueur d'échange \sqrt{A}/M_S par rapport au Co, c'est à dire que plus de spins interviennent dans le volume d'activation V , i.e. la barrière de Ni est plus élevée que celle de Co.

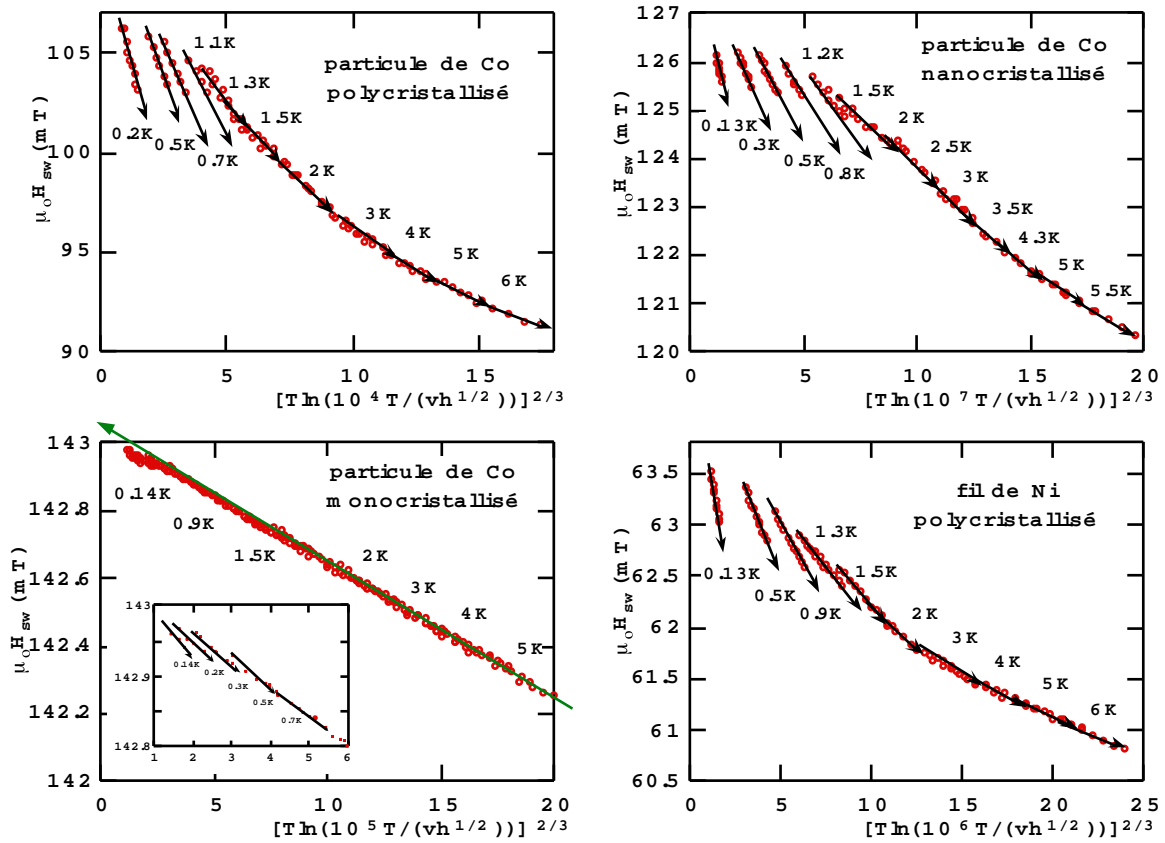


Fig. IV.2.1 : Ajustement du modèle de Kurkijärvi [Kurkijärvi 1972] (cf. I.4 formule 5) aux mesures des $H_{sw}(T,v)$ pour quatre différents systèmes magnétiques : particule de Co polycrist. (21.17 4,11), particule de Co nanocrist. (6.11 1,11), particule de Co monocrist. (20.10 4,10) et fil de Ni polycrist. (21.8 7,4).

système magnétique	$E_0(6K) \rightarrow E_0(T_C)$	$\sqrt[3]{V} (6K) \rightarrow \sqrt[3]{V} (T_C)$	T_C
part. Co polycrist.	2 200 \rightarrow 600 K	6 \rightarrow 4 nm	0.95 K
part. Co nanocrist.	9 000 \rightarrow 3 800 K	9 \rightarrow 7 nm	1.1 K
part. Co monocrist.	200 000 K	24.5 nm	0.25 K
fil Ni polycrist.	20 000 \rightarrow 5 000 K	21 \rightarrow 13 nm	0.75 K

Tab. IV. 2.1 : Quelques valeurs obtenues à l'aide des ajustements du modèle de Kurkijärvi aux données pour les différents systèmes présentés dans la figure IV.2.1.

matériau	M_S (A/m 10^6)	\sqrt{A}/M_S (nm)	$\sqrt{A/K}$ (nm)
Co	1.43	7.0	4.8
Ni	0.483	20.7	47
Fe	1.71	5.8	15

Tab. IV.2.2 : Aimantation de saturation M_S , longueur d'échange \sqrt{A}/M_S et épaisseur de paroi $\sqrt{A/K}$ pour les matériaux de Co, Ni et Fe [Schabes 1991].

IV.2.4 Choix de l'exposant α de la barrière d'énergie

Dans le paragraphe I.3, nous avons étudié l'exposant α de la variation de la hauteur de la barrière en fonction de champ. Nous avons trouvé que α est pratiquement toujours égal à 1.5 sauf dans certains cas de haute symétrie, par exemple le modèle de Stoner-Wohlfarth pour $\varphi = 0$ ou π . Dans ces cas, une solution analytique donne $\alpha = 2$.

Nos mesures ont cependant montré que l'ajustement du modèle de Kurkijärvi à nos données expérimentales est meilleur pour $\alpha = 2$. Pour illustrer ceci, nous montrons deux ajustements de nos données au modèle de Kurkijärvi dans la figure IV.2.2 en utilisant $\alpha = 1.5$ et 2. On voit que l'ajustement est relativement peu sensible aux petites variations de α . Pour diminuer encore la courbure résiduelle de la courbe majeure on pourrait imaginer prendre une valeur plus grande de α , par exemple $\alpha = 5$. Cependant ceci a peu de sens physique au vu notamment de la discussion du paragraphe I.3.

Le tableau IV.2.3 des paramètres d'ajustement montre que les constantes E_0 et τ_0 augmentent d'un facteur trois en passant de $\alpha = 1.5$ à $\alpha = 2$, ce qui dans le cadre de notre discussion n'est pas significatif. Dans ce travail de thèse, nous considérons donc le choix du paramètre α peu important et pour simplifier le dépouillement des résultats, nous avons décidé de fixer sa valeur à 1.5.

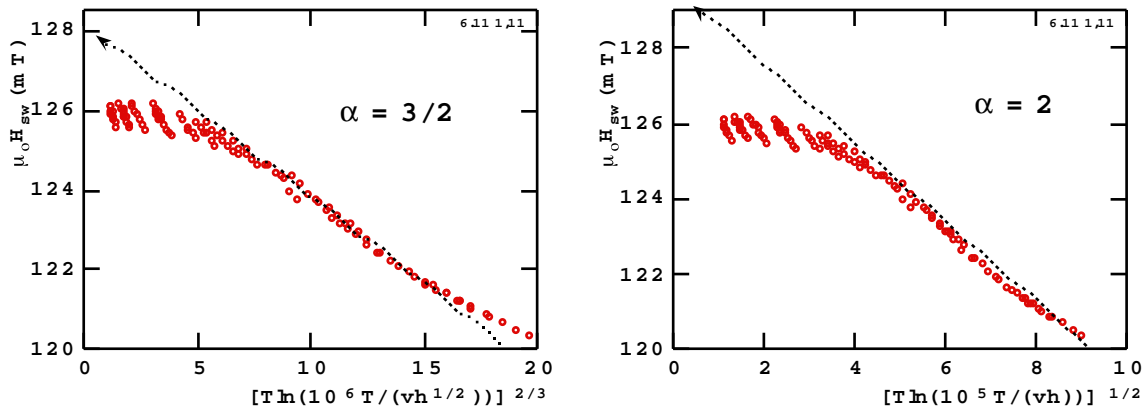


Fig. IV.2.2 : Ajustement du modèle de Kurkijärvi aux $H_{sw}(T,v)$ pour une particule elliptique de Co nanocristallisé avec $\alpha = 1.5$ ou 2.

α	H_c^0 (mT)	E_0/k (K)	τ_0 (s 10^{-8})	$\sqrt[3]{V}$ (nm)	T_c (K)
1.5	128.2	5100	1.7	7.1	1.1
2	129.5	14900	4.3	10.2	0.85

Tab. IV.2.3 : Quelques valeurs du modèle de Kurkijärvi calculées à partir de l'ajustement de la figure IV.2.2 pour $\alpha = 1.5$ et 2.

Après avoir discuté de l'ajustement du modèle de Kurkijärvi, nous nous intéressons maintenant aux deux déviations observées, tout d'abord à très basse température puis en ce qui concerne la courbure résiduelle.

IV.2.5 Origines possibles de la déviation du modèle de Kurkijärvi en dessous de 1 K pour H_{SW}

L'ajustement de $H_{SW}(T,v)$ montre une déviation de la théorie valable dans un régime classique pour les températures en dessous d'une certaine température appelée T_c . Les mesures effectuées en dessous de T_c donnent des droites parallèles à la ligne majeure (cf. la figure IV.2.1). On peut décaler toutes ces droites sur la ligne majeure en remplaçant la température mesurée T par une température T^* (cf. la figure IV.2.3 et la courbe insérée). A partir du graphe de T^* en fonction de T , on trouve la température T_c de changement du régime thermique à un autre régime où la relaxation mesurée dépend peu de la température. Le tableau IV.2.1 donne différents T_c pour les échantillons présentés dans les figures IV.2.1-3. T_c est compris entre 0.25 et 1.1 K.

Le fait que le système soit indépendant de la température peut avoir plusieurs origines discutées dans la suite.

a) Effet quantique de l'aimantation

Dans le paragraphe I.5, nous avons brièvement exposé la théorie de l'effet quantique de l'aimantation. Le comportement observé par nos mesures de dynamique de H_{SW} pourrait être expliqué par cette théorie. Il y a cependant plusieurs remarques à faire.

(i) Nos mesures de la dynamique de H_{SW} montrent que le volume d'activation est beaucoup plus petit que celui de la particule. Donc, un éventuel effet quantique s'étendrait ainsi seulement sur le

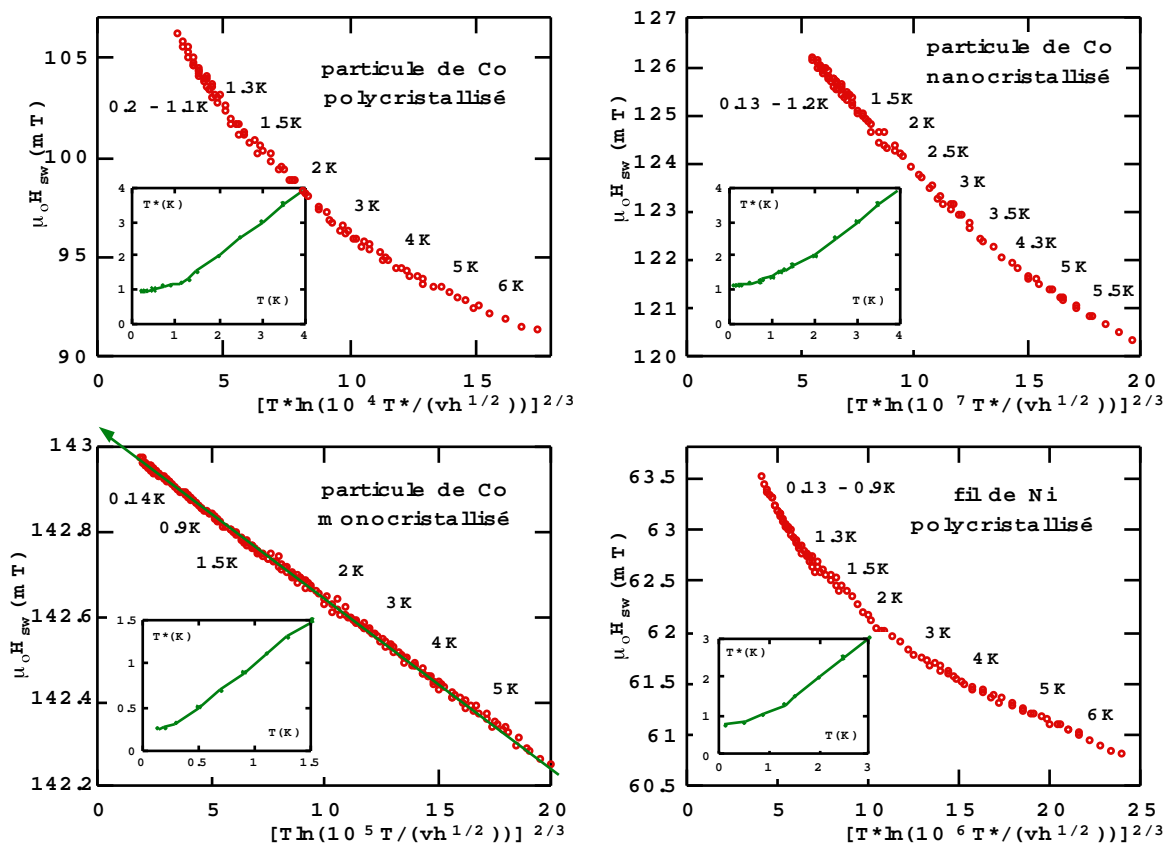


Fig. IV.2.3 : $H_{SW}(T,v)$ avec $T = T^*$ pour les systèmes de la figure IV.2.1. La variation $T^*(T)$ est tracée dans la courbe insérée.

volume d'activation.

(ii) La théorie (cf. I.5.) prédit une température T_c de changement du régime thermique au régime quantique qui est de un à deux ordres de grandeur plus faible que la température T_c obtenue par les mesures.

(iii) L'évolution de la largeur σ de la distribution de H_{SW} en fonction de la température ne suit par la prédiction quantique, en effet σ devrait diminuer avec la température dans le régime thermique et être constante dans le régime quantique.

Dans l'état actuel des choses, on ne peut pas conclure quant à l'existence d'un effet quantique. On peut cependant chercher une autre explication possible de la déviation par rapport au modèle au niveau des défauts des particules.

b) Défauts de la particule

Nous avons déjà mentionné à plusieurs reprises que les défauts des échantillons (rugosité de surface, défauts cristallins, impuretés, etc.) puissent créer des surfaces d'énergie possédant plusieurs vallées. A plus basse température, lorsque kT devient du même ordre de grandeur ou même plus petit que l'énergie des fluctuations, le système peut prendre des chemins, légèrement différents d'un cycle à l'autre, pour franchir la barrière d'énergie. Si on suppose que le système choisit un chemin au hasard au travers de la surface d'énergie, la moyenne H_{SW} ne devrait pas être affectée par l'effet "multi-chemin". Par contre, si on suppose que la probabilité de choisir un chemin de basse énergie est plus grande que celle de choisir un chemin d'énergie plus élevée, on pourrait imaginer une saturation de H_{SW} vers les basses températures comme montré schématiquement dans la figure IV.2.4.

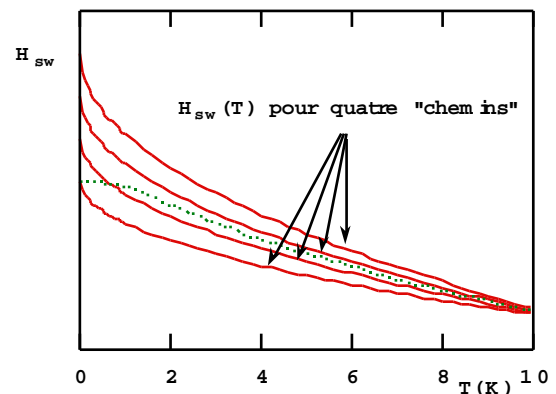


Fig. IV.2.4 : Schéma de la dépendance thermique de H_{SW} , de franchissement de la barrière d'énergie, pour quatre chemins. La ligne en pointillé est la moyenne des quatre chemins en supposant une probabilité plus grande pour le chemin d'énergie plus basse.

Dans ce qui suit nous discutons maintenant de la courbure résiduelle la courbe majeure de l'ajustement. L'origine physique de cette deuxième déviation du modèle de Kurkijärvi pourrait en fait être la même que la première déviation à basse température.

IV.2.6 Courbure résiduelle de la courbe majeure de l'ajustement du modèle de Kurkijärvi

L'ajustement du modèle de Kurkijärvi aux données $H_{SW}(T,v)$ montre une déviation par rapport au modèle qui s'exprime par une courbure résiduelle de la courbe majeure (cf. IV.2.3). Comme la pente de la courbe majeure est inversement proportionnelle à $(E_0)^{1/\alpha}$, on pourrait interpréter de manière phénoménologique la courbure résiduelle par une diminution de E_0 pour les températures plus basses. A titre d'exemple, la figure IV.2.5 montre cette variation de E_0 pour les quatre systèmes de la figure IV.2.1. A partir de E_0 , nous pouvons calculer un ordre de grandeur du volume d'activation V , dans lequel le retournement débute, en utilisant la formule :

$$V = \frac{E_0}{\mu_0 M_s H_{sw}^0}$$

La diminution de E_0 pour les températures plus basses correspond donc à une diminution du volume d'activation V . Les particules de Co monocristallisé n'ont pas cette déviation.

On voit que V tend vers une valeur minimale à basse température. Cette saturation de V à une valeur minimale semble être liée au fait que le système est indépendant de la température au dessous T_C .

Jusqu'à présent nous ne nous sommes intéressés qu'à la valeur moyenne du champ de retournement H_{SW} dans le cadre du modèle de Kurkijärvi. Pour comprendre la déviation observée par rapport à ce modèle, il faut aussi étudier la variation de la largeur de la distribution de H_{SW} .

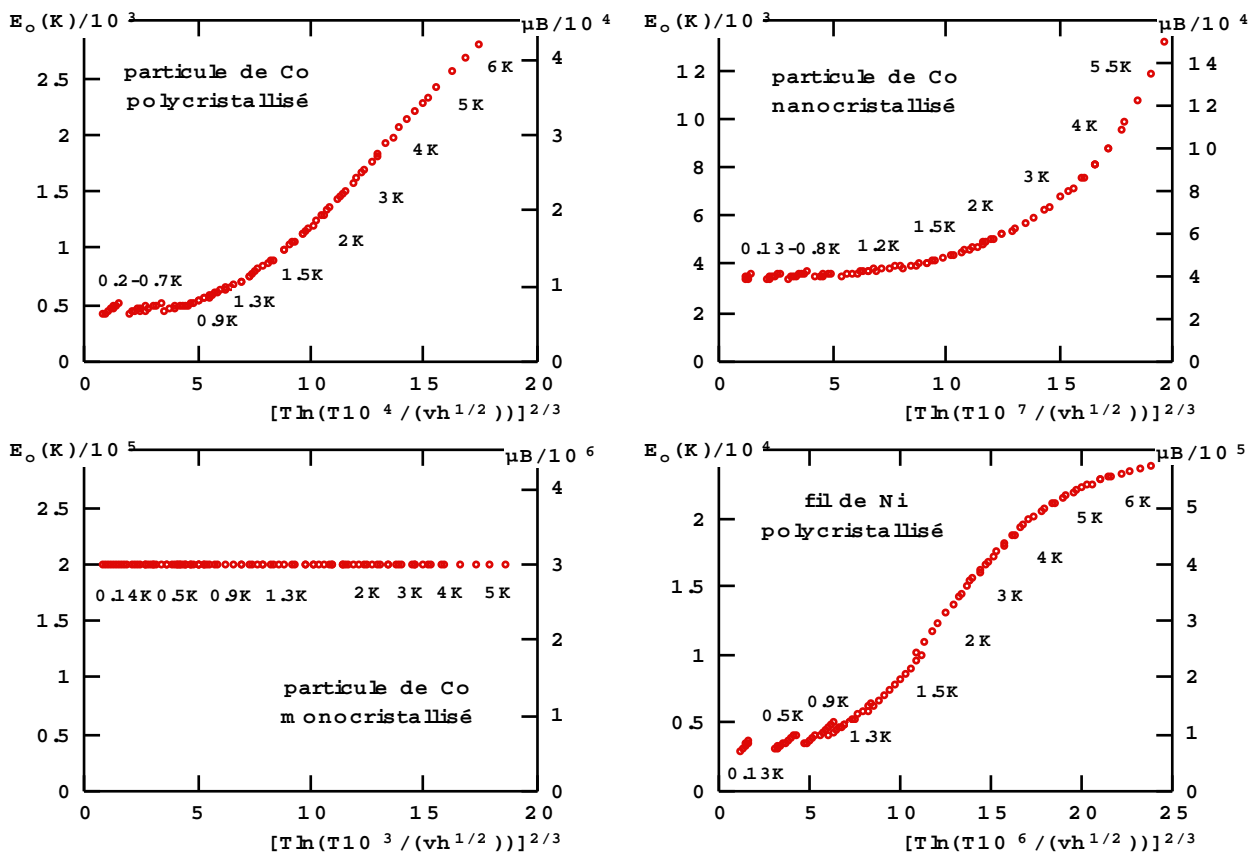


Fig. IV.2.5 : Variation de E_0 selon T et v pour les systèmes de la figure IV.2.1.

IV.2.7 Discussion sur la largeur σ de la distribution des champs de retournement

Une mesure macroscopique est une mesure reproductible, i.e. deux mesures doivent être identiques à la précision expérimentale près. Ce doit être le cas par exemple pour le champ coercitif H_C d'un système magnétique macroscopique comme une couche magnétique ou le matériau massif. Par contre ceci n'est pas le cas pour un système mésoscopique. Pour un tel système, toutes les grandeurs physiques, par exemple le champ de retournement H_{SW} , sont des variables stochastiques (de nature aléatoire), i.e. chaque mesure diffère des autres mesures. Il faut donc mesurer des distributions qui sont caractérisées par leur valeurs moyennes et leur largeurs σ données par la racine carrée de la variance (écart quadratique moyen).

Nous avons étudié la largeur σ de la distribution des champs de retournement obtenue par les mesures dynamiques. Le résultat principal de nos mesures de σ est en général son augmentation lorsque la température décroît.

Dans la suite, nous discutons plusieurs données qui interviennent dans la largeur σ et pourraient être responsables des valeurs mesurées.

a) Comparaison de la prédiction du modèle de Kurkijärvi avec les mesures de σ

Les fluctuations thermiques font que le passage de la barrière est un processus stochastique. Dans le paragraphe I.4, nous avons présenté le modèle de Kurkijärvi qui tient compte de ces fluctuations. Il est intéressant de remarquer que $\sigma \rightarrow 0$ pour $T \rightarrow 0$ si le système est seulement

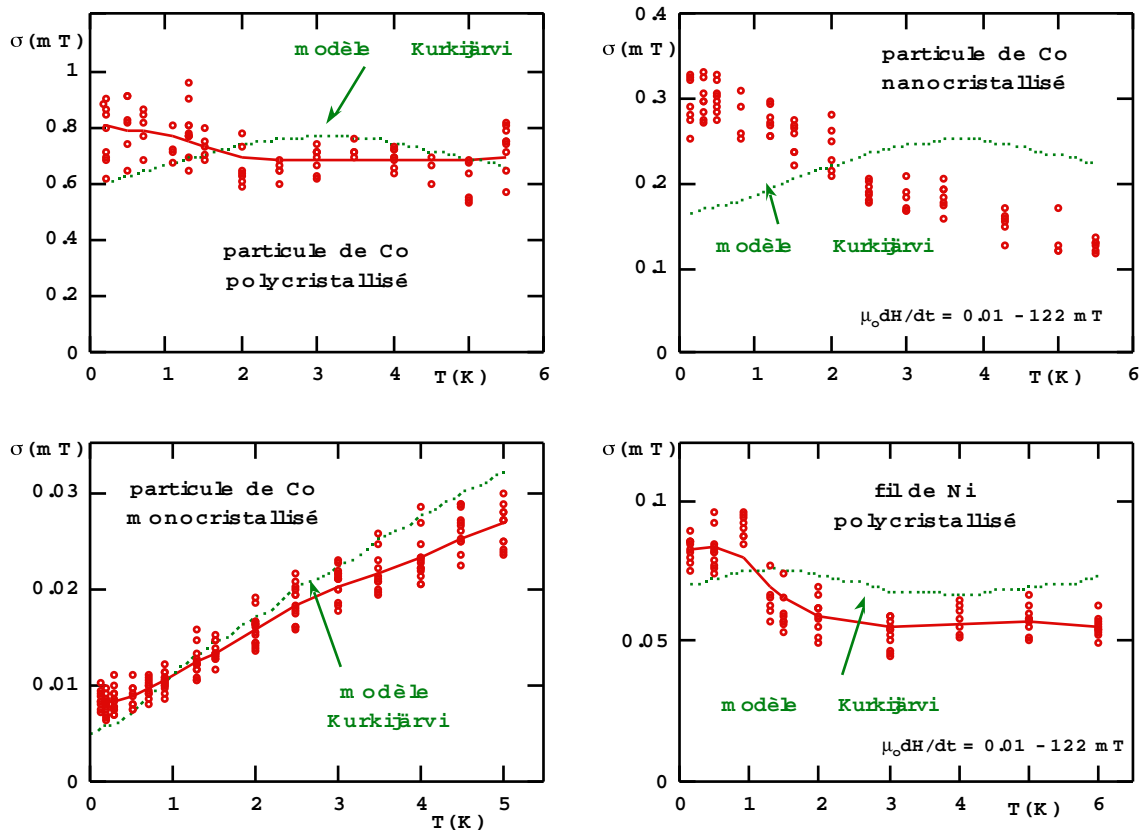


Fig. IV.2.6 : Comparisons de la prédiction du modèle de Kurkijärvi (courbe en pointillé) avec les mesures de σ pour les systèmes de la figure IV.2.1.

influencé par des fluctuations de température.

Pour pouvoir comparer les mesures de σ avec la prédiction du modèle de Kurkijärvi, il faut tenir compte des deux déviations par rapport au modèle, i.e. la saturation aux températures inférieures à T_C (cf. IV.2.5) et la variation de E_0 avec la température (cf. IV.2.6). En tenant compte de ces déviations, nos mesures sont en assez bon accord avec le modèle de Kurkijärvi. Quelques comparaisons de la prédiction du modèle de Kurkijärvi avec les mesures de σ sont présentés dans la figure IV.2.6. Les déviations de σ par rapport au modèle, en particulier à basse température, peuvent avoir plusieurs raisons présentés par la suite.

b) Défauts des échantillons

Nous reprenons ici l'explication déjà mentionnée dans le chapitre III. Les défauts des échantillons (rugosité de surface, défauts cristallins, impuretés, etc.) peuvent créer des surfaces d'énergie possédant plusieurs vallées. Ces défauts sont moins importants à haute température car l'énergie thermique kT est alors supérieure aux fluctuations de la surface d'énergie dues aux défauts. A basse température, lorsque kT devient du même ordre de grandeur ou même plus petit que l'énergie des fluctuations, ces dernières ont alors une influence sur le retournement de l'aimantation. En conséquence le système peut prendre des chemins, légèrement différents d'un cycle à l'autre, pour franchir la barrière d'énergie. Pendant le cycle d'hystérésis, le système choisit un chemin au hasard au travers de la surface d'énergie. Ce chemin se trouve le long des vallées et minimise l'énergie, mais il ne peut pas changer de vallée car l'activation thermique n'est pas suffisante pour passer les cols. Lorsque l'énergie thermique diminue, cet effet devient de plus en plus important et peut être à l'origine de la valeur constante ou de l'accroissement de la largeur σ .

c) Oxydation des échantillons

Nous avons observé qu'une oxydation de l'échantillon à la surface augmente fortement la largeur σ . Ceci est probablement dû au fait que l'oxydation augmente la rugosité de surface. De plus, certains matériaux (par exemple Co et Ni) forme des oxydes antiferromagnétiques, i.e. les spins à l'interface matériau métallique / couche oxydée sont couplés de manière antiferromagnétique. On peut facilement imaginer des situations de frustration qui varient d'un cycle d'hystérésis à l'autre. Ceci constitue donc une autre source de désordre à la surface de l'échantillon, qui augmente la largeur σ .

A titre d'exemple, nous présentons dans l'annexe 7 les mesures de la dynamique de retournement d'un fil de Ni juste après sa fabrication puis après 6 semaines. L'échantillon est resté dans un dessiccateur pendant les 6 semaines entre les deux mesures. Les cycles obtenus après 6 semaines sont pratiquement inchangés, i.e. moins de 1% de l'échantillon s'est oxydé pendant les 6 semaines. Par contre, la largeur de la distribution des champ de retournement a clairement augmenté. De plus, le volume d'activation est devenue plus petit et T_C a augmenté légèrement. Actuellement, nous ne savons pas si il faut directement relier l'augmentation de σ aux basses températures à celle de T_C .

d) Fluctuations du champ magnétique

L'influence des fluctuations du champ magnétique sur un système magnétique est similaire à l'influence de la température. Dans certains cas, on peut même remplacer les fluctuations du champ magnétique par des fluctuations de la température et vice versa. Donc, plus la température diminue, plus l'influence des fluctuations du champ magnétique devient importante.

Pour minimiser les fluctuations dans notre expérience, nous avons utilisé des alimentations de courant à bruit faible (inférieur à 10^{-5} de l'amplitude totale). De plus, nous avons écranté l'échantillon des fluctuations du champ à fréquences élevées en utilisant une enceinte en cuivre. Actuellement, nous ne possédons pas de preuves que les fluctuations du champ aient une influence significative sur nos mesures.

Pour étudier la dynamique de retournement de l'aimantation il existe deux approches possibles. La première, que nous venons de discuter, consiste à mesurer les distributions du champ de retournement. La seconde approche, que nous abordons maintenant, consiste à mesurer directement la probabilité de retournement de l'aimantation. Cette seconde approche nous permet en plus de vérifier l'hypothèse à l'origine du modèle de Kurkijärvi, à savoir que la probabilité de retournement est exponentielle.

IV.2.8 Discussion sur la probabilité de retournement de l'aimantation

Nous avons mesuré la probabilité de retournement $P(t)$ pour plusieurs particules en fonction du champ appliqué et de la température. Pour comparer les mesures de $P(t)$ avec un modèle basé sur l'activation thermique du type Arrhenius (voir I.4 : modèle de Kurkijärvi), nous avons ajusté aux mesures la loi suivante :

$$P(t) = e^{-(t/\tau)^\beta} \quad (1)$$

τ est la moyenne du temps d'attente et β donne la déviation du système par rapport au modèle avec une seule barrière d'énergie ($\beta = 1$).

En ce qui concerne tout d'abord τ , on peut ajuster une loi de type Arrhenius à nos mesures au dessus de la température critique T_c observée pour H_{SW} (cf. les figures III.3.2.9 et III.4.10). Donc, au dessus de T_c , l'hypothèse du modèle de Kurkijärvi est bien vérifiée pour τ .

En ce qui concerne β , nous avons mesuré des valeurs comprises entre 0.3 et 3. Nos mesures ont de plus révélé que β dépend de la température et de la vitesse de balayage du champ. Ledermann *et al.* [Ledermann 1994] ont obtenu des résultats similaires : ils ont mesuré la probabilité de retournement d'une particule individuelle elliptique mono-domaine de $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ de taille $0.3 \mu\text{m} \times 65 \text{ nm} \times 65 \text{ nm}$ à 300 K. La figure IV.2.7 montre un ajustement à leurs mesures de la loi (1) avec des valeurs de β comprises entre 2 et 7.

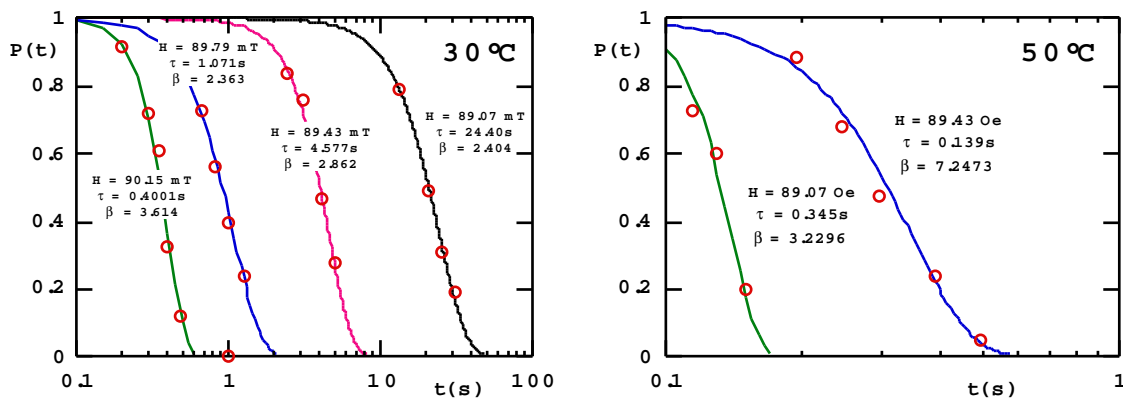


Fig. IV.2.7 : Probabilité de retournement d'une particule individuelle elliptique mono-domaine de $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ de taille $0.3\ \mu\text{m} \times 65\ \text{nm} \times 65\ \text{nm}$ à $300\ \text{K}$ [Ledermann 1994]. La loi (1) est ajustée aux mesures en utilisant des valeurs de β comprises entre 2 et 7

Nous avons mesuré des valeurs de β proches de l'unité et indépendantes de la température et du champ pour très peu d'échantillons, les fils de Ni avec un faible diamètre en sont un exemple (cf. la figure III.4.9).

Par la suite, nous discutons plusieurs faits intervenant dans la mesure de β et qui pourraient être responsables de la déviation observée sur la plupart des échantillons.

a) Défauts des échantillons

Dans le paragraphe IV.2.7, nous avons discuté la possibilité que les défauts des échantillons (rugosité de surface, défauts cristallins, impuretés, oxydation, etc.) créent des surfaces d'énergie possédant plusieurs vallées. En conséquence le système peut prendre des chemins, légèrement différents d'un cycle à l'autre, pour franchir la barrière d'énergie. Lorsque l'énergie thermique diminue, cet effet devient de plus en plus important et peut être à l'origine de la valeur constante ou de l'accroissement de la largeur σ .

De même, cet effet pourrait être responsable du fait que $\beta < 1$. Pour expliquer ceci, nous exposons ici un modèle simple. On suppose que le retournement de l'aimantation peut avoir lieu par N chemins différents. La probabilité que le système choisisse le chemin i est noté par g_i . De plus, on suppose que la probabilité Γ_i de retournement pour le chemin i est donnée par la loi Arrhenius :

$$\Gamma_i = \Gamma_i^0 e^{-E_i/kT}$$

Dans ce cas, la probabilité que l'aimantation de la particule ne soit pas encore retournée est donnée par :

$$P(t) = \sum_i^N g_i e^{-\Gamma_i t} \approx e^{-(\Gamma t)^\beta} \quad \text{avec} \quad \beta < 1$$

On obtient donc que les défauts diminuent la valeur de β .

b) Evolution de la barrière avec le temps

Au contraire de l'influence des défauts, un mécanisme de relaxation de la barrière d'énergie peut être à l'origine de l'augmentation de la valeur de β . Ce mécanisme prend en compte le fait que nos particules sont relativement grandes par rapport à la longueur de corrélation d'échange. Ainsi au bord

de la particule, les moments ne sont pas colinéaires à l'aimantation du matériau et, en diminuant le champ, le renversement de l'aimantation se produit via la formation d'éventails (fanning) et / ou la formation de vortex pour ces moments [Schabes 1988, Fredkin 1991, Nakatani 1991, Ferré 1995]. Ces formations peuvent ne pas être très stables près des champs de retournement et relaxer légèrement ce qui peut être vu comme une relaxation de la barrière d'énergie. Ceci est activé thermiquement, i.e. c'est de plus en plus bloqué lorsque la température décroît.

Pour illustrer ceci, nous présentons ici un modèle très simple. Imaginons que la barrière d'énergie diminue avec le temps avec la loi suivante (la notation est celle du paragraphe I.4) :

$$E(H,t) = E(H) \left[1 - \frac{kT}{E_R} \ln \left(\frac{t}{t_i} \right) \right]$$

où E_R et t_i sont des constantes. Dans ce cas, la probabilité de retournement est :

$$\Gamma(H,t) = \Gamma_0 e^{-\frac{E(H,t)}{kT}} = \Gamma(H) \left(\frac{t}{t_i} \right)^{E(H)/E_R}$$

et la probabilité que l'aimantation de la particule ne soit pas encore retournée est donnée par ($dP = -P \Gamma(H,t) dt$) :

$$P(t) = e^{-\frac{\Gamma(H)t}{\beta} \left(\frac{t}{t_i} \right)^\beta} = e^{-(\tilde{\Gamma}t)^\beta}, \text{ avec } \beta = 1 + \frac{E(H)}{E_R}.$$

On obtient donc une valeur de β supérieure à 1.

c) Plusieurs centres de nucléations indépendants

On peut enfin imaginer que la particule possède plusieurs centres de nucléation indépendants qui sont énergétiquement très proches. Supposons que chaque centre de nucléation ait une probabilité Γ_i de déclencher le retournement de l'aimantation de la particule qui soit donnée par la loi Arrhenius :

$$\Gamma_i = \Gamma_i^0 e^{-E_i/kT}$$

Dans ce cas, la probabilité que l'aimantation de la particule ne se soit pas encore retournée est donnée par :

$$dP = -P dt \sum_i \Gamma_i = -P dt \Gamma_{\text{total}} \quad \Rightarrow \quad P(t) = e^{-\Gamma_{\text{total}} t}$$

i.e. la probabilité reste exponentielle. Contrairement aux cas précédents, on voit ici que β ne varie pas.

Par exemple les particules composées de beaucoup d'agrégats (cf. A.5.2) ont probablement plusieurs centres de nucléation qui sont énergétiquement très proches, i.e. le retournement est déclenché par différents centres de nucléation. Par conséquence, les largeurs σ sont relativement élevées. Par contre, la probabilité de retournement est quand même relativement proche d'une exponentielle (voir la figure A.5.2.c). Ceci pourrait venir du fait que les différents centres de nucléation sont indépendants.

IV.2.9 Discussion concernant le préfacteur Γ_0 de la loi d'Ahrrenius

$\Gamma_0 = 1/\tau_0$ est le préfacteur de la loi d'Ahrrenius et est souvent appelé la "fréquence d'essais". Nous avons choisi de prendre Γ_0 constant (cf. I.4). En réalité, il dépend de la courbure de la barrière d'énergie et de l'amortissement et on peut en général modéliser ces dépendances par l'équation suivante [Garg 1995] :

$$\Gamma = A h^{\alpha+\delta-1} \exp(-B h^\alpha) \quad \text{i.e.} \quad \Gamma_0 = A h^{\alpha+\delta-1} \quad \text{où} \quad h = 1 - \frac{H}{H_{sw}^0}$$

Les différentes constantes sont données dans le tableau IV.2.4 et définies aussi dans le paragraphe I.4.

activation	amortissement	A	B	α	δ
thermique	faible	$18\eta E_0 / 5\pi k_B T$	$E_0 / k_B T$	3/2	1
thermique	moyen	$\omega_0 / 2\pi$	$E_0 / k_B T$	3/2	-1/4
thermique	fort	$\omega_0^2 / 2\pi\eta$	$E_0 / k_B T$	3/2	0
quantique	non	$(216E_0\omega_0 / \pi\hbar)^{1/2}$	$36E_0 / 5\hbar\omega_0$	5/4	5/8
quantique	fort	$(3E_0\eta^7 / \hbar\omega_0^6)^{1/2}$	$3\pi\eta E_0 / \hbar\omega_0^2$	1	0

Tab. IV.2.4 : Paramètres de la loi d'Ahrrenius pour le régime d'activation thermique et pour le régime quantique [Garg 1995].

Par exemple, pour le régime d'activation thermique avec un amortissement moyen, la loi d'Ahrrenius devient :

$$\Gamma = \Gamma_0 h^{1/4} \exp\left(-\frac{E_0}{k_B T} h^{3/2}\right) \quad \text{où} \quad h = 1 - \frac{H}{H_{sw}^0}$$

Pour tous les cas présentés dans le tableau IV.2.4 $1.5 \geq \alpha + \delta - 1 \geq 0$ ($\alpha + \delta - 1$ étant l'exposant de h dans l'expression de Γ) i.e. les valeurs de Γ_0 trouvées par les ajustements au modèle de Kurkijärvi sont en réalité un à deux ordres de grandeur plus élevées. Par exemple, pour des fils de Ni, nous avons trouvé des valeurs de Γ_0 autour de 10^8 s^{-1} alors qu'elles sont en réalité situées entre 10^{10} et 10^9 s^{-1} .

Pour la discussion de la thèse concernant la barrière et le volume d'activation, cette correction n'est pas significative. Nous n'irons pas plus loin concernant la signification de Γ_0 , la discussion devenant rapidement très complexe [Hänggi 1990, Brown 1994].

IV.2.10 Conclusion sur la dynamique du retournement de l'aimantation

Nous avons étudié la dynamique de retournement de l'aimantation soit par l'approche de la mesure des champs de retournement, soit par l'approche de la mesure de la probabilité de retournement. On observe en fait que ces deux approches se rejoignent. Ainsi la valeur moyenne des champs de retournement H_{SW} et la valeur moyenne du temps d'attente τ se comportent approximativement comme prédit par des modèles simples d'activation thermique tant qu'on reste au dessus de la température critique T_C . En dessous de T_C , H_{SW} et τ deviennent indépendants de la température. De plus, il semble que le volume d'activation dépende de la température et du temps.

Nous avons observé pour la largeur σ de la distribution des champs de retournement et pour le paramètre β , mesurant la déviation du système par rapport au modèle d'une seule barrière d'énergie, des déviations par rapport au modèle simple d'une activation thermique. Si on prend en compte la courbure de la courbe majeure de l'ajustement de Kurkijärvi et T_C , on peut assez bien expliquer les variations thermiques de σ .

Ces deux paramètres, σ et β , sont très sensible à tous les sources de "bruit" venant soit de l'extérieur (stabilité et fluctuation du champ appliqué, etc.), soit de l'échantillon lui-même (rugosité de surface, défauts cristallins, impuretés, oxydation, etc.). Dans ces cas, σ et β expriment en fait de manière différente le même problème : on remarque ainsi que lorsque σ augmente β diminue.

IV.3 Comparaison avec d'autres modèles

IV.3.1 Modélisation de la dynamique de retournement par un système de spins d'Ising

Dans ce paragraphe nous reprenons les résultats théoriques obtenus par R. Mélin [Mélin 1996].

Il s'agit de la simulation d'une particule magnétique par un système de spins d'Ising. La particule est à deux dimensions et la géométrie choisie est celle d'un disque et non d'un carré afin que la dynamique de retournement de l'aimantation ne soit pas complètement gouvernée par les coins du carré. Les calculs numériques simulent deux types d'expériences : la mesure du champ de retournement de l'aimantation H_{SW} en fonction de la température et de la vitesse de balayage du champ et la mesure de la probabilité de retournement en fonction du temps.

Le retournement obtenu est continu (il n'existe pas de limite à la résolution en temps) et le champ de retournement est défini comme celui pour lequel l'aimantation s'annule lors du parcours du cycle d'hystérésis. Le temps de retournement de l'aimantation est quant à lui défini comme le temps nécessaire pour que l'aimantation s'annule. La simulation de 30000 expériences de mesures du champ H_{SW} et de la probabilité de retournement permet un très bon traitement statistique des résultats. Ainsi la distribution du logarithme du temps moyen d'attente $\ln(\tau)$ est une courbe de Gauss. En ce qui concerne les mesures du champ de retournement H_{SW} en fonction de la température et de la vitesse de balayage il est possible de décrire sa variation par le modèle de Kurkijärvi jusqu'à très basse

température. La largeur σ des distributions de H_{SW} obtenues augmente à basse température. Concernant la probabilité de retournement, le coefficient β mesurant la déviation par rapport à un modèle avec une seule barrière d'énergie varie à l'inverse de la variance σ , c'est à dire que β augmente avec la température. Les simulations numériques montrent aussi que β augmente lorsque le champ H_{SW} augmente.

Ces résultats théoriques obtenus sur une particule en forme d'un disque et avec un système de spins d'Ising sont qualitativement les mêmes que nos observations expérimentales. Ceci constitue un résultat très intéressant qu'il convient d'approfondir encore.

IV.3.2 Approche statistique de la dynamique de retournement de l'aimantation

Dans ce paragraphe nous voulons mentionner l'approche développée dans la thèse de J.-E. Wegrowe [Wegrowe 1996]. Cette approche est basée sur le théorème de fluctuation - dissipation et sur la formule de Kubo de la réponse linéaire et propose une interprétation statistique du problème du traînage magnétique des nanostructures.

La dynamique du système et de son environnement est étudiée par l'observation du comportement des moyennes statistiques susceptibles de décrire le système sous des approximations de linéarités (permettant un calcul de perturbation). Dans le régime quantique cette approche traite indistinctement les fluctuations d'origines quantiques et les fluctuations provoquées par le bain thermique.

Le modèle, en réponse linéaire, aboutit à une formule décrivant la dépendance thermique de la relaxation de l'aimantation. Cette dépendance est donnée par la forme thermique du bruit $D(T)$ agissant sur l'aimantation de la particule (dans le cas d'une loi de type Arrhenius $D(T) = kT$).

Les études concernant cette approche étant en cours, nous renvoyons le lecteur aux références [Wegrowe 1996].

IV.4 Conclusion

Nous avons observé principalement trois effets inattendus au cours de nos études :

- (i) l'augmentation rapide du champ de retournement vers les basses températures (1.5 - 3 K) ;
- (ii) l'augmentation de la largeur σ de la distribution du champ de retournement vers les basses températures ;
- (iii) le fait que le système devienne indépendant de la température à très basse température (< 1 K).

Ces comportements pourraient être interprétés par un volume d'activation qui dépend de la température. De plus, l'influence des défauts de la particule deviennent non négligables à basse température. Pour conclure ce chapitre, nous présentons trois images résumant les idées principales de la discussion précédente.

a) Image I : Influence des défauts : "l'énergie potentielle multi-chemins"

Les figures I.4.1-2, dans le chapitre I, représentent un petit schéma de la courbe bien connue de l'énergie potentielle d'une particule. Il existe principalement deux états d'équilibre, avec le champ magnétique parallèle ou antiparallèle à l'axe de facile aimantation de la particule. Cette courbe devrait être ondulée par les défauts de la particule (défauts de surface, grains dans la particule etc.). Elle doit être considérée comme étant multidimensionnelle de même qu'une montagne comme présenté dans la figure IV.4.1.

A haute température, l'activation thermique est suffisamment importante pour que l'on puisse considérer que les accidents microscopiques sur la surface d'énergie potentielle soient sans influence sur la dynamique des particules. Mais à basse température ces accidents sur la surface d'énergie potentielle deviennent assez grands et ce sont eux qui décident du chemin que peut prendre le changement de l'aimantation. Il peut exister alors plusieurs chemins selon les défauts de la particule et cela entraîne donc une augmentation de la variance et parfois même la séparation en deux (cf. III.3.4) ou plusieurs distributions du champ de retournement (cf. III.4).

Une particule avec plusieurs chemins possibles pour le retournement est équivalente à un ensemble de particules composé de particules ayant un seul chemin de retournement. Dans ce cas, on peut appliquer la théorie de distribution du champ de retournement décrivant la probabilité de retournement par une exponentielle étendue de coefficient β inférieur 1.

b) Image II : "particule idéale entourée de petites particules"

Dans cette deuxième image, on remplace la particule ayant des défauts par une particule parfaite entourée de petites particules plus ou moins couplées avec la particule parfaite (voir la figure IV.4.2). Le couplage peut être ferromagnétique (dans le cas par exemple de rugosités de surface) ou antiferromagnétique (dans le cas par exemple d'une surface oxydée). A haute température, les petites particules ont un comportement superparamagnétique, i.e. elles se retournent librement avec l'aimantation de la particule idéale. Mais à basse température, ces particules sont de plus en plus bloquées. On peut imaginer que les petites particules étant proches du centre de nucléation peuvent influencer ou même déclencher le retournement de l'aimantation de la grande particule. Dans cette image, l'effet "multi-chemins" est décrit par le fait qu'il existe un grand nombre de configurations des petites particules. Après chaque mesure de H_{SW} , la configuration des petites particules peut changer. Cet effet augmente alors la largeur de la distribution des champs de retournement et diminue le coefficient β de la probabilité de retournement de l'aimantation décrite par une exponentielle étendue.

Dans cette image la relaxation de la barrière d'énergie peut être vue comme une relaxation des petites particules entourant la grande particule, cet effet augmentant le coefficient β de la probabilité de retournement.

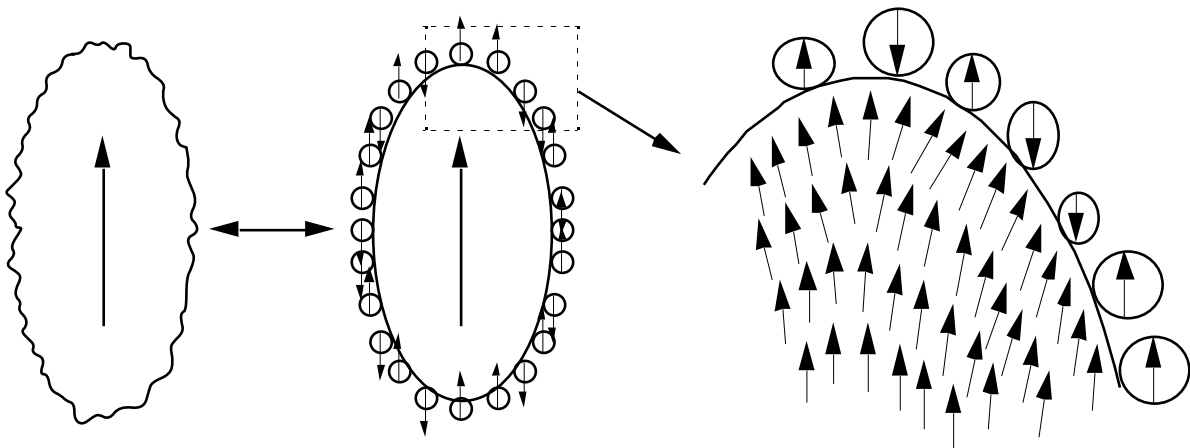


Fig. IV.4.2 : Schéma montrant qu'une particule avec des défauts de surface est équivalente à une particule parfaite entourée de petites particules plus ou moins couplées avec la particule parfaite.

c) Image III : Volume d'activation dépendant de la température.

Comme le montrent les simulations numériques, lorsque le champ magnétique opposé à l'aimantation de la particule croît, la configuration de spins de la particule évolue et tend à se rapprocher de plus en plus d'une configuration instable. C'est ensuite une fluctuation thermique qui déclenche le retournement de l'aimantation dans un petit volume de la particule. Pour les températures de plus en plus basses, il faut appliquer un champ magnétique de plus en plus grand car l'énergie thermique devient plus faible. Le volume affecté devient donc de plus en plus petit. Ce processus ne peut pas continuer jusqu'au zéro absolu car le volume d'activation doit rester fini, en effet le fort couplage entre les spins impose leur alignement dans un volume minimum. Donc, on pourrait attendre une augmentation importante du champ de retournement au moment où l'énergie thermique devient plus faible que le plus petit volume d'activation. Dans ce cas, la situation est comparable à de la vapeur d'eau sursaturée sans un germe qui pourrait nucléer une gouttelette d'eau. Dans le cas de la vapeur, c'est une poussière qui va nucléer la première gouttelette d'eau. Dans notre cas, une fluctuation quantique pourrait nucléer le retournement et expliquer la saturation que nous avons observée à très basse température.

Chapitre V : Extension de la technique de mesure

Dans cette thèse, nous avons montré que la technique des micro-SQUID est très adaptée à l'étude des systèmes submicroniques. La question est de savoir si cette technique est aussi adaptée aux systèmes plus grands, avec une taille comprise entre 1 μm et quelques mm. Au cours de ma thèse, j'ai voulu répondre à cette question. Pour cela, je présente brièvement dans ce chapitre quelques extensions de la technique de mesure à d'autres systèmes.

L'idée principale est de sonder localement des signaux qui contiennent beaucoup plus d'informations qu'un signal global, comme l'aimantation totale du système. Par exemple, plusieurs SQUID placés à des endroits précis, très près d'un échantillon magnétique, peuvent mesurer localement le retournement de l'aimantation. La haute sensibilité en flux magnétique (100 à 1000 μB sont envisageables) et en temps (quelques dizaines de nanosecondes sont envisageables) de cette technique va permettre d'étudier le magnétisme à l'échelle de quelques dizaines de nanomètres. Cette technique est très performante puisque nous pourrons ainsi avoir directement accès aux données importantes comme la formation des domaines, la dynamique des parois, l'accrochage des parois sur les défauts, le couplage entre les grains d'une couche polycristallisée, le couplage entre les couches d'une multicouche, etc. L'étude d'un échantillon magnétique à l'échelle de quelques nanomètres englobe l'obtention de données macroscopiques accessibles par des expériences plus classiques. En effet, la somme des signaux microscopiques mesurés en plusieurs endroits correspond au signal macroscopique de l'échantillon entier.

Une autre extension de la technique peut être l'étude d'interactions entre des particules magnétiques. On peut étudier un ensemble de deux à quelques dizaines de particules (poudre et fluide magnétiques). Dans ce cas, un micro-SQUID (sonde locale) donne directement les interactions entre les particules.

Pour illustrer ces idées, je présente quelques mesures préliminaires. Par la suite, les résultats de ces illustrations devront être approfondis.

V.1 Comparaison entre un magnétomètre à SQUID classique et un micro-SQUID

Un magnétomètre à SQUID est composé essentiellement de quatre éléments :

1. un cryostat pour refroidir l'échantillon à une certaine température,
2. une bobine de détection pour capturer le signal magnétique (flux) de l'échantillon,
3. un SQUID avec amplificateur qui détecte le signal de la bobine de détection,
4. un système de bobines pour appliquer un champ magnétique à l'échantillon.

Le problème principal d'un magnétomètre à SQUID est de pouvoir coupler la bobine de détection au SQUID sans injecter de bruit dans le SQUID. Si l'on compare la sensibilité du SQUID seul avec la sensibilité du magnétomètre à SQUID, on remarque que ce couplage n'est pas facile à faire. Par exemple, un magnétomètre à SQUID commercial a une sensibilité typiquement de 10^{-10} Am^2 (10^{-7} emu) et la sensibilité du SQUID seul est d'environ $10^{-5} \phi_0$, i.e. le facteur de couplage entre SQUID et l'échantillon est de $10^{-5} \text{ Am}^2/\phi_0$ ($10^{-2} \text{ emu} / \phi_0$).

La technique du micro-SQUID est très similaire à la technique d'un magnétomètre à SQUID. La différence essentielle est que la bobine de détection est remplacée par un couplage direct de l'échantillon avec le SQUID. Dans le cas d'une particule placée sur le fil de la boucle du SQUID, le couplage est d'environ $3.4 * 10^{-16} \text{ Am}^2 / \phi_0$ ($3.4 * 10^{-13} \text{ emu} / \phi_0$) (cf. II.4.4), i.e. dans ce cas :

la technique du micro-SQUID est
 10^9 fois plus sensible qu'un
magnétomètre à SQUID classique.

Ce résultat est seulement valable pour des échantillons qui sont plus petits que la taille du SQUID. Dans le cas opposé, i.e. lorsque la taille de l'échantillon est beaucoup plus grande que la taille du SQUID, le couplage décroît rapidement. Cependant, à mon avis, la technique du micro-SQUID a plusieurs avantages que je présente par la suite.

V.2 Technique du micro-SQUID pour étudier des échantillons avec une taille bien supérieure à la taille du SQUID

V.2.1 Variation de la sensibilité en fonction de la taille des échantillons

Dans ce paragraphe, nous intéressons à la variation de la sensibilité des micro-SQUID en fonction de la taille des échantillons. En effet leur excellente sensibilité diminue lorsque la taille de l'échantillon est beaucoup plus grande que celle du SQUID. Pour simplifier le problème, nous considérons d'abord le cas d'une sphère aimantée de façon homogène, de taille supérieure à $10\ \mu\text{m}$. Le champ magnétique dans la sphère est constant et vaut $B_0 = 2\mu_0 M / 3$ et, à l'extérieur de la sphère, le champ vaut environ (cf. II.3.1) $B = N \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{m}{r^3}$. Ici, N est une constante de l'ordre de l'unité. Pour un bon couplage, il faut que la boucle du SQUID soit aussi proche que possible de la sphère. Expérimentalement, on peut facilement obtenir une distance entre le SQUID et la sphère inférieure à 10 % du diamètre de la sphère. Dans ce cas, le champ magnétique vaut $B \approx 10^{-1} \mu_0 M$. La sensibilité en champ d'un SQUID de surface de $1\ \mu\text{m} \times 1\ \mu\text{m}$ est de $10^{-7}\ \text{T}$ ($10^{-3}\ \text{Oe}$). La sensibilité de cette géométrie est donc d'environ $M \approx 1\ \text{A/m}$ ($10^{-3}\ \text{emu/cm}^3$), i.e. indépendante de la taille de la sphère.

Par exemple, la sensibilité de mesure pour une sphère d'un volume de $(10\ \mu\text{m})^3$ est d'environ $10^{-15}\ \text{Am}^2$ ($10^{-12}\ \text{emu}$), i.e. dans ce cas cette technique est encore 10^5 fois plus sensible que celle du magnétomètre à SQUID classique. De plus, la sensibilité peut facilement être améliorée d'un ou deux ordres de grandeur en augmentant la surface du SQUID (voir la figure V.2.1).

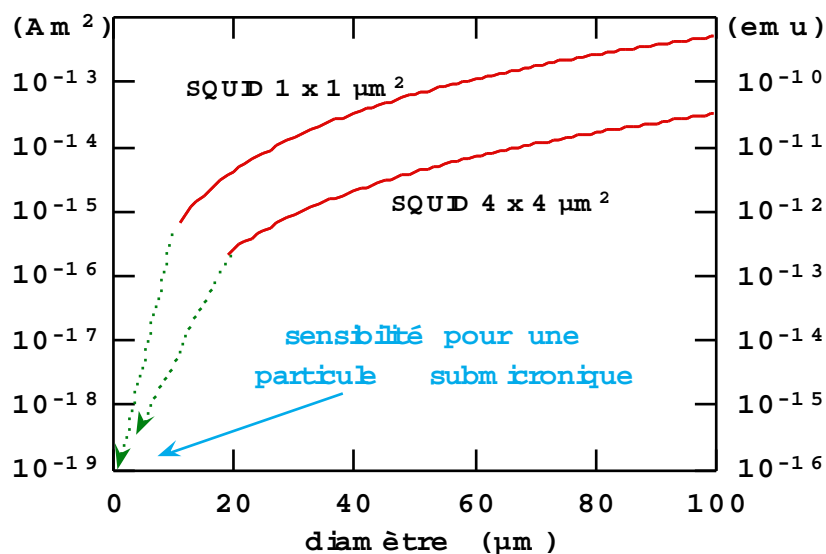


Fig. V.2.1 : Sensibilité approximative de la technique de micro-SQUID en fonction du diamètre d'un échantillon sphérique. La surface du SQUID est $(1\ \mu\text{m})^2$ ou $(4\ \mu\text{m})^2$.

Munis de cette précision quant à la sensibilité, nous donnons maintenant trois exemples de l'application de la technique des micro-SQUID à l'étude de systèmes plus grands. Il s'agit tout d'abord d'un cristal de Mn_{12} , puis de couches minces de Co et enfin d'une multicouche de GdFe .

V.2.2 Exemple 1 : Cristal de Mn₁₂

Pour tester la technique de mesure du micro-SQUID appliquée aux échantillons d'une taille bien supérieure à la taille du SQUID, nous avons choisi un cristal de Mn₁₂ étudié magnétiquement par Paulsen *et al.* [Paulsen 1994]. Le schéma du montage expérimental est montré dans la figure V.2.2. Le cristal est collé sur un bras en cuivre (pour la thermalisation), maintenant ainsi le cristal au-dessus d'une rangée de quelques SQUID.

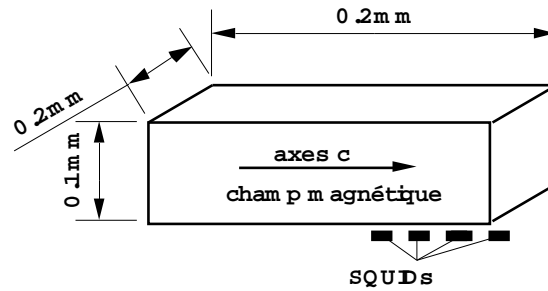
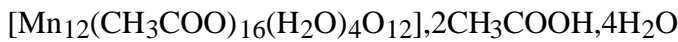


Fig. V.2.2 : Schéma d'un cristal de Mn₁₂ avec les positions des SQUID.

Les cristaux de Mn₁₂ sont formés de molécules de [Lis 1980] :



avec une symétrie tétragonale et un volume de la maille cristalline de 3.716 nm³. Les douze ions manganèse forment un cluster dans lequel la valence n'est pas uniforme. Il y a quatre Mn⁴⁺ (S = 3/2) entourés de huit Mn³⁺ (S = 2). Les fortes interactions antiferromagnétiques entre Mn⁴⁺ et Mn³⁺ conduisent à un état fondamental ferromagnétique de spin S = 10 dans lequel le cristal possède une forte anisotropie uniaxiale [Sessoli 1993]. Les mesures de l'aimantation et de la susceptibilité alternative montrent clairement un comportement superparamagnétique avec un seul temps de relaxation

$$\tau = \tau_0 e^{E_0/kT} \quad (1)$$

avec $\tau_0 = 10^{-7}$ s et $E_0 = 64$ K ainsi qu'une température de blocage T_B proche de 3 K. Les expériences de relaxation magnétique faites à des températures entre 0.2 et 3 K et avec des champs de 0 à 2 T montrent essentiellement un seul temps de relaxation [Paulsen 1994]. Ces mesures montrent que la relaxation est exponentielle, i.e. la variation de l'aimantation du cristal peut être décrite par :

$$M(t) = M_{t=0} - (M_{t=0} - M_{t \rightarrow \infty}) (1 - e^{-t/\tau})$$

La relaxation à haute température est très rapide (par exemple à 4 K $\tau = 1.8$ s) et devient de plus en plus lente à basse température (par exemple à 2 K $\tau = 10^7$ s). Pour illustrer la vitesse de la relaxation en fonction de la température, la figure V.2.3 montre la partie $\Delta M/M_S$ de l'échantillon qui a relaxé après 1 heure ou 7 jours. On voit que, pour les températures supérieures à

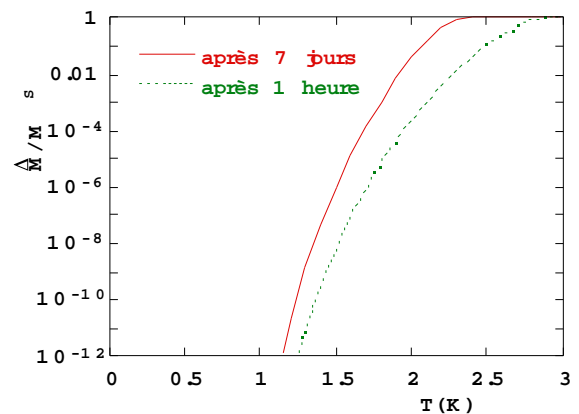


Fig. V.2.3 : Variation de l'aimantation après 1 heure ou 7 jours d'un cristal de Mn₁₂.

2.8 K, 1 heure suffit pour observer la relaxation totale de l'échantillon. A la température $T = 2.3$ K, il faut déjà 7 jours pour observer cette relaxation totale. A 1.5 K, seulement 10^{-6} de l'échantillon a relaxé après 7 jours. Comme la durée d'une mesure expérimentale de la relaxation est en général inférieure à 7 jours, il faut avoir une très bonne sensibilité pour pouvoir mesurer la relaxation à basse température. De plus l'échantillon doit être très pur car si une petite partie de l'échantillon possède une température de blocage inférieure au reste de l'échantillon, cette petite partie peut dominer totalement la relaxation à basse température.

Avec la magnétométrie à SQUID traditionnelle, Paulsen *et al.* ont trouvé que la vitesse de relaxation sature pour des températures en dessous de 2 K, à un temps de relaxation $\tau = 10^8$ s, i.e. 0.6 % de l'échantillon se retourne après 7 jours. Les auteurs suggèrent d'expliquer cette saturation par un effet tunnel de l'aimantation.

En ce qui nous concerne, les résultats principaux de nos mesures préliminaires avec la technique des micro-SQUID sont les suivants.

1) Les cycles d'hystérésis mesurés sont composés de marches équidistantes tous les 0.4 T (cf. la figure V.2.4) qui correspondent probablement à un croisement des différents niveaux d'excitation de la molécule de Mn_{12} . Ce comportement a déjà été remarqué par d'autres expérimentateurs [Paulsen 1994, Novak 1994].

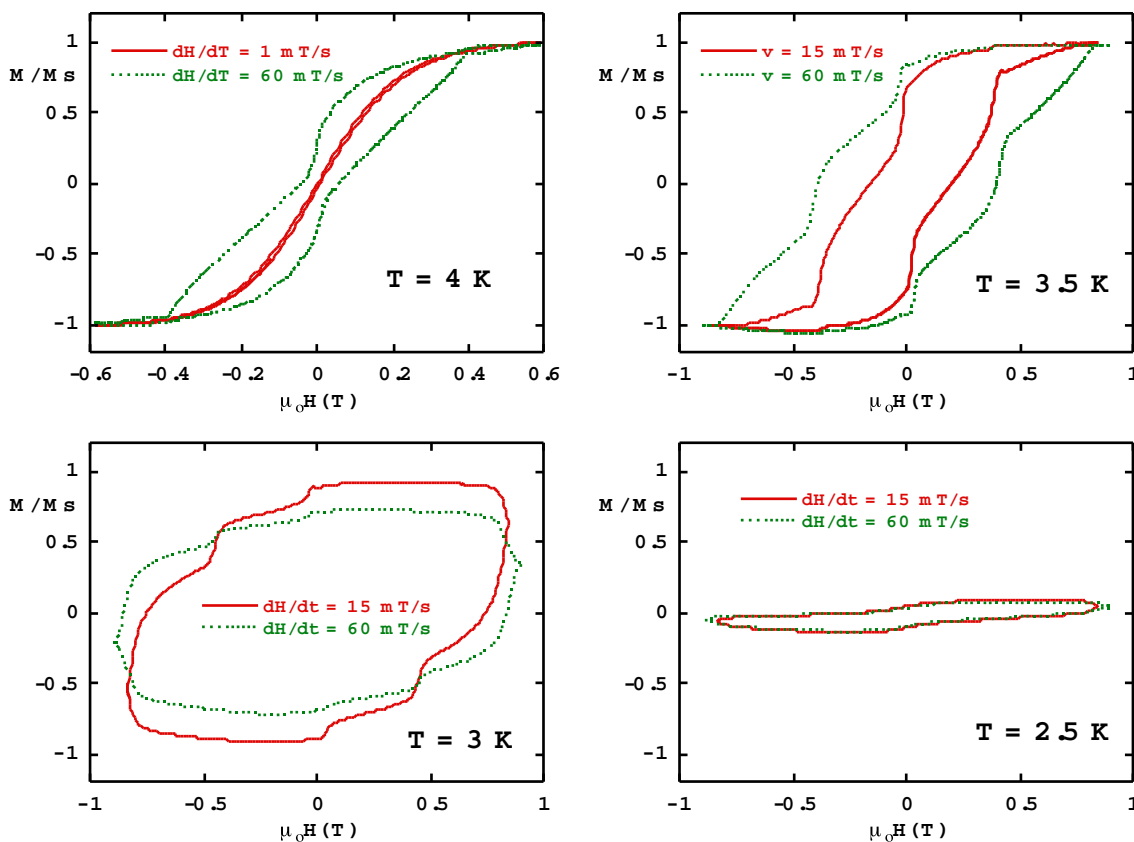


Fig. V.2.4 : Cycles d'hystérésis d'un cristal de Mn_{12} mesurés à l'aide de la technique du micro-SQUID. Les marches équidistantes tous les 0.4 T correspondent probablement à un croisement des différents niveaux d'excitation de la molécule de Mn_{12} . Les cycles sont déformés par la relaxation pendant la mesure.

2) Nos mesures confirment les résultats de Paulsen *et al.* concernant la vitesse de relaxation pour les températures au dessus de 2 K. Quelques mesures de relaxation sont montrées dans la figure V.2.5. La comparaison des temps de relaxation de l'expériences avec la formule (1) est montrée dans la figure V.2.6. A basse température nous n'avons pas pu confirmer la saturation de la relaxation à $\tau = 10^8$ s. Nous pouvons seulement dire que le temps de relaxation est probablement inférieur à $\tau = 10^{10}$ s (cf. la figure V.2.5 à $T=0.3$ K), i.e. la relaxation est probablement inférieur à 10^{-4} de l'aimantation totale de l'échantillon après 9 jours.

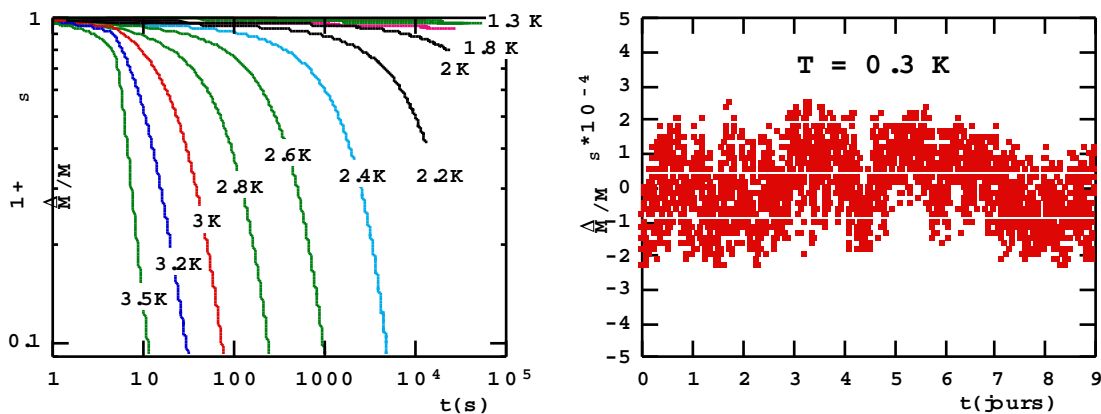


Fig. V.2.5 : Variation de l'aimantation au cours du temps d'un cristal de Mn_{12} à $H = 0.4$ T pour différentes températures.

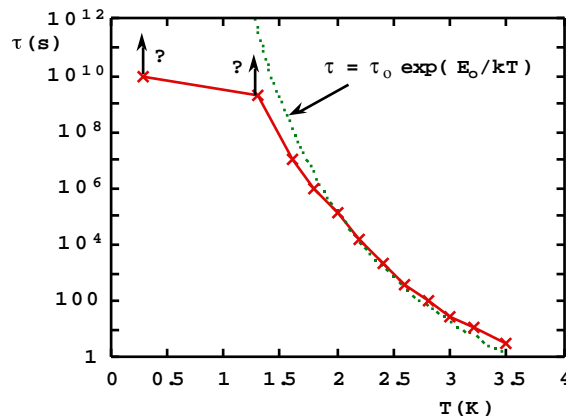


Fig. V.2.6 : Dépendance thermique du temps de relaxation τ .

3) Avec ces expériences préliminaires lorsqu'elles sont faites pendant des temps courts, la sensibilité de mesure obtenue est 10^{-7} de l'aimantation totale de l'échantillon. Les expériences faites pendant des temps beaucoup plus longs (quelques jours) montrent une sensibilité réduite de trois ordres de grandeur. Cette sensibilité pourrait néanmoins être facilement augmentée de trois ordres de grandeur par l'amélioration de la stabilité mécanique du montage expérimental. De plus, un meilleur couplage avec l'échantillon et une augmentation de la surface du SQUID pourrait améliorer la sensibilité par encore deux à trois ordres de grandeur.

4) Nos mesures ont montré que la relaxation de l'échantillon n'est pas homogène, i.e. les coins du cristal relaxent probablement plus rapidement que le coeur du cristal.

5) 1 à 2 % de l'échantillon, sans doute en surface, possèdent un temps de relaxation plus rapide que le coeur de l'échantillon. Ceci a déjà été signalé par d'autres auteurs. [Paulsen 1994, Novak 1994]. Nos mesures ont montré que c'est cette partie de l'échantillon qui est principalement responsable de la saturation du temps de relaxation à $\tau = 10^8$ s.

En conclusion nos mesures préliminaires confirment, avec une meilleure sensibilité en temps et en amplitude que les SQUID traditionnels, l'existence de marches dans les cycles d'hystérésis. Par contre, nous n'avons pas pu confirmer la saturation du temps de relaxation à une valeur de $\tau = 10^8$ s, qui dans les mesures que nous avons citées était interprété par un effet tunnel. Actuellement nous pouvons seulement dire que le temps de relaxation est supérieur à 10^{10} s, i.e. après 7 jours la variation de l'aimantation totale est inférieure à 10^{-4} . Pour clarifier la situation, nous pensons pouvoir augmenter la sensibilité de notre technique de mesure par 3 à 5 ordres de grandeur par l'amélioration de la stabilité mécanique du montage expérimental, un meilleur couplage entre l'échantillon et le SQUID et une augmentation de la surface du SQUID.

V.2.3 Exemple 2 : Couches magnétiques minces

On peut aussi utiliser la technique des micro-SQUID pour étudier le retournement de l'aimantation d'une couche magnétique mince. Plusieurs SQUID placés à des endroits précis très près de la couche magnétique mesurent localement le retournement de l'aimantation. Le schéma du montage expérimental est montré dans la figure V.2.7. La figure V.2.8 présente les cycles d'hystérésis des quatre SQUID A, B, C et D. Le SQUID A est situé au bord de la couche. En conséquence, le flux mesuré est proportionnel à l'aimantation. Les sauts d'aimantation sont dus aux retournements de l'aimantation des domaines magnétiques de la couche. Ce cycle d'hystérésis est pratiquement identique aux cycles d'hystérésis mesurés par un SQUID traditionnel.

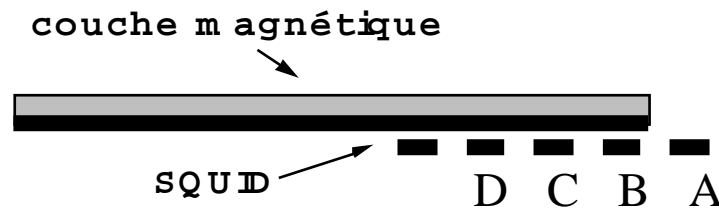


Fig. V.2.7 : Schéma (présentation en coupe) de la mesure de l'aimantation d'une couche magnétique à l'aide de la technique des micro-SQUID.

Pour les SQUID situés plus en dessous de la couche (B, C et D), les variations de flux ne sont plus proportionnelles à l'aimantation. Le SQUID D est situé complètement en dessous de la couche.

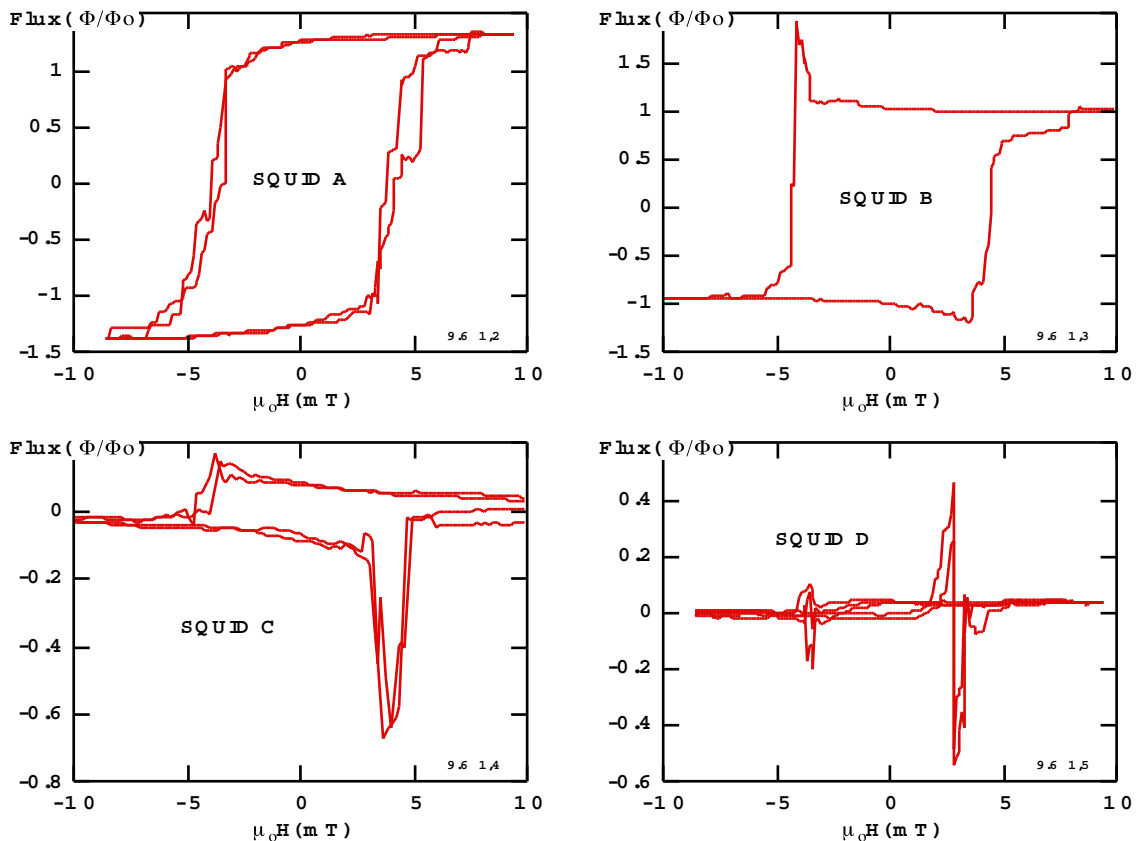


Fig. V.2.8 : Cycles d'hystérésis d'une couche de Co d'épaisseur 8 nm. On voit la non reproductibilité des mesures car les graphes des SQUID A, C et D montrent, chacun, deux cycles d'hystérésis obtenus dans les mêmes conditions.

Donc, si la couche est saturée, le flux traversant la boucle de SQUID est nul pour toutes les directions d'aimantation. Néanmoins, pendant le retournement, il détecte des variations de flux qui sont dues aux nucléation, propagation et annihilation des parois de domaine. Si le domaine situé directement au-dessus du SQUID se retourne, l'amplitude de variation du flux est trop grande et rapide pour être détectée par la méthode de compensation (cf. II.2.2). Par contre, la méthode de détection des sauts de flux (cf. II.2.4) est idéale pour détecter le retournement du domaine au dessus du SQUID.

Les figures V.2.9 a-c montrent quelques études effectuées pour caractériser des couches magnétiques qui ont été utilisées pour la fabrication des particules présentées dans le paragraphe III.3. Les trois couches ont été fabriquées de la même manière mais pas en même temps. Il faut noter que pour chaque couche les mesures sont essentiellement les mêmes quel que soit le SQUID utilisé pour la mesure (à part pour les SQUID près du bord de la couche). En comparant les trois couches on remarque que les mesures sont par contre différentes, au niveau tout d'abord du champ de retournement mais aussi de sa dépendance thermique. Le modèle de Kurkijärvi peut être ajusté pour les couches n°1 et 2, par contre ce n'est pas possible avec la couche n°3. Les volumes d'activation obtenus par le modèle $\sqrt[3]{V} = 18 \text{ nm}$ et 88 nm respectivement pour les couches n°1 et 2. Ces volumes sont donc très différents.

L'origine des différences observées bien que les échantillons aient été fabriqués de la même manière est sans doute à trouver dans les structures cristallines qui doivent être légèrement différentes. Ceci implique que le retournement de l'aimantation, sensible aux défauts, ne se fasse donc pas de la même manière.

On voit sur cet exemple que la technique des micro-SQUID est très intéressante pour caractériser la qualité d'une couche magnétique.

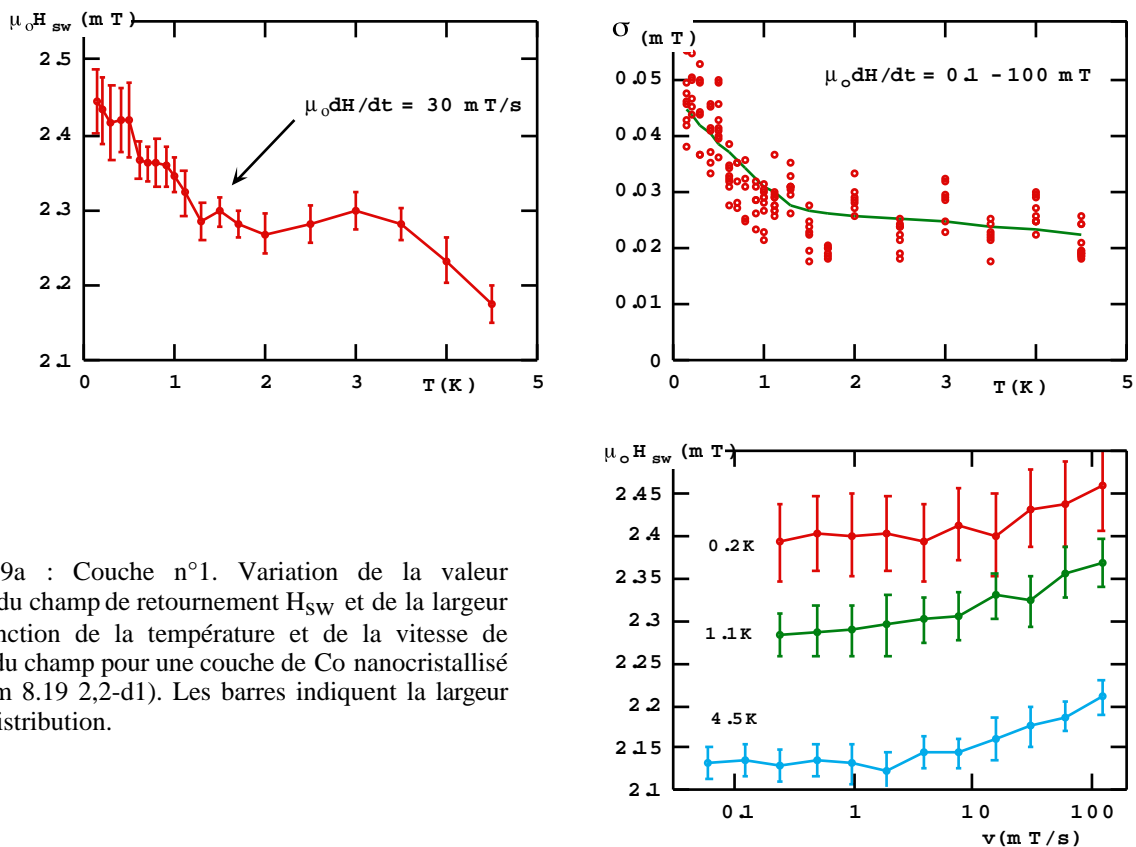


Fig. V.2.9a : Couche n°1. Variation de la valeur moyenne du champ de retournement H_{sw} et de la largeur σ en fonction de la température et de la vitesse de balayage du champ pour une couche de Co nanocristallisé (Co 30 nm 8.19 2,2-d1). Les barres indiquent la largeur σ de la distribution.

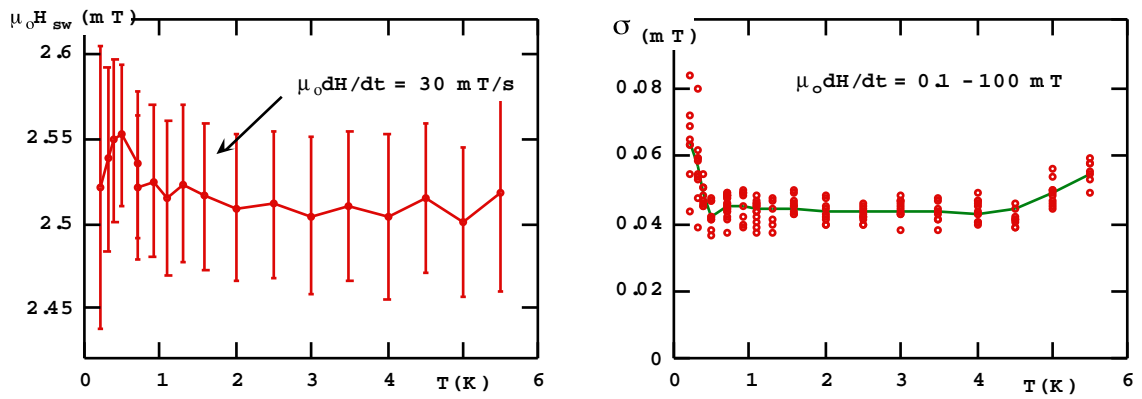


Fig. V.2.9b : Couche n°2. Variation de la valeur moyenne du champ de retournement H_{SW} et de la largeur σ en fonction de la température et de la vitesse de balayage du champ pour une couche de Co nanocristallisé (Co 30 nm 8.3 5,7-d3). Les barres indiquent la largeur σ de la distribution.

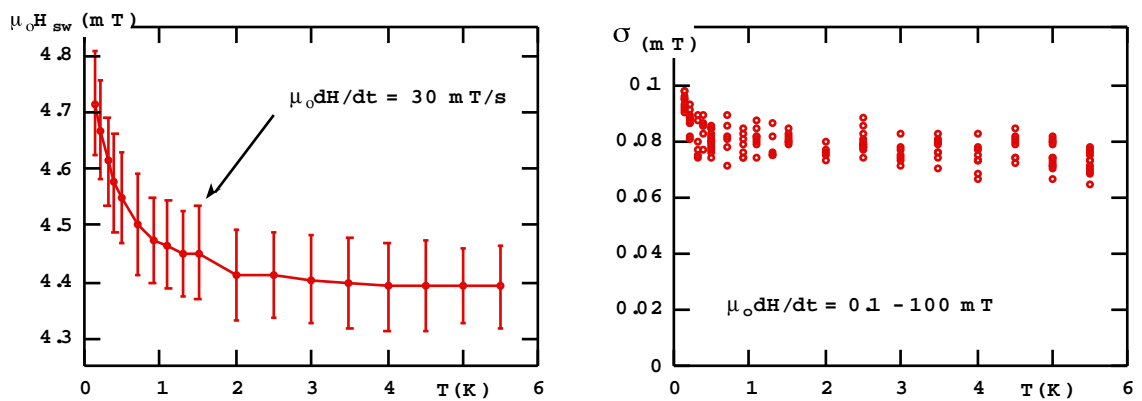
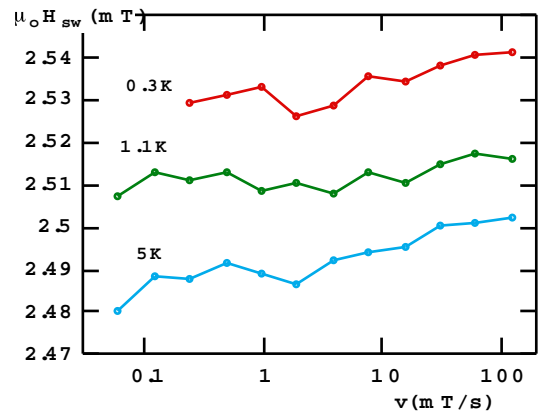
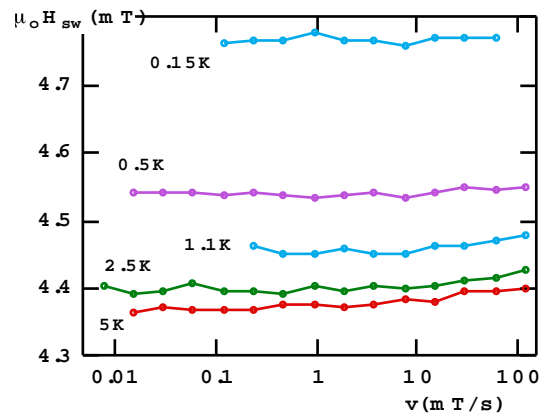


Fig. V.2.9c : Couche n°3. Variation de la valeur moyenne du champ de retournement H_{SW} et de la largeur σ en fonction de la température et de la vitesse de balayage du champ pour une couche de Co nanocristallisé (Co 30 nm 8.5 5,8-d4). Les barres indiquent la largeur σ de la distribution.



V.2.4 Exemple 3 : multicouches magnétiques

Pour démontrer l'intérêt de la technique des micro-SQUID pour l'étude du retournement de l'aimantation d'une multicouche magnétique, j'ai choisi un système qui fait l'objet de la thèse de S. Mangin. Il s'agit d'une multicouche composée de deux matériaux doux GdFe séparés par un matériau dur TbFe qui constitue une barrière de potentiel (voir la figure V.2.10). La multicouche est élaborée au laboratoire LMPDM de Nancy. Les épaisseurs du matériau doux sont choisies très différentes afin de permettre l'apparition d'une paroi d'abord dans la couche plus épaisse.

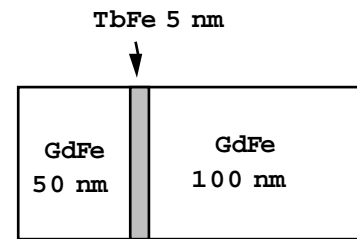


Fig. V.2.10 : Schéma de la multicouche composée de deux matériaux doux GdFe séparés par un matériau dur TbFe.

Pour le système de GdFe/TbFe/GdFe, S. Mangin a fixé les épaisseurs des deux couches douces à 50 et 100 nm. Ensuite, la hauteur de la barrière peut être modifiée en variant l'épaisseur de la couche dure (TbFe).

La figure V.2.11 montre des cycles d'hystérésis mesurés par magnétométrie à SQUID traditionnelle. Les mesures ont été effectuées par A. Sulpice (CRTBT). Les cycles d'hystérésis sont essentiellement caractérisés par deux sauts d'aimantation qui sont dus à la nucléation et à l'annihilation de la paroi.

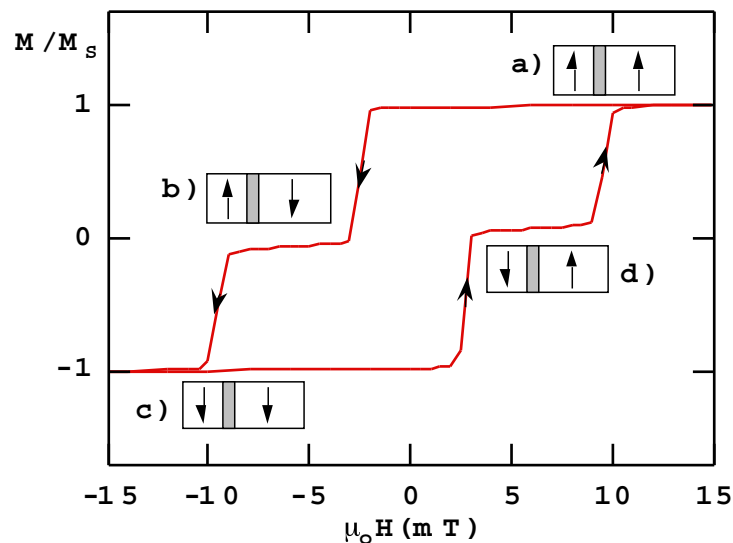


Fig. V.2.11 : Cycle d'hystérésis d'une multicouche de GdFe/TbFe/GdFe à $T = 1.7$ K, mesuré par A. Sulpice (CRTBT).

La configuration (a) venant d'un état saturé est stable jusqu'au champ nul. Il faut alors appliquer un champ antiparallèle à l'aimantation pour que l'aimantation commence à se retourner. Dans un premier temps, une paroi se nucléée dans la couche épaisse. Elle nécessite très peu d'énergie pour s'y propager et se déplace jusqu'à être bloquée par la couche dure (b). Puis, la paroi traverse la barrière (c), soit par l'effet du champ si l'on continue à appliquer un champ encore plus négatif, soit par effet thermique.

La difficulté expérimentale est d'élaborer une barrière qui soit assez grande pour bloquer la paroi et assez petite pour que la nucléation d'une deuxième paroi dans la couche moins épaisse ne se produise pas avant. Pour démontrer l'intérêt de la technique du micro-SQUID, nous avons choisi une tri-couche avec 0.5 nm de TbFe. L'étude détaillée sera présentée dans la thèse de Stéphane Mangin.

J'ai étudié la nucléation et l'annihilation de la paroi à l'aide de SQUID placés très près de la couche magnétique mesurant ainsi localement le retournement de l'aimantation. Le schéma du montage expérimental est similaire à celui de la figure V.2.7. L'une des questions à résoudre est de savoir si le retournement de l'aimantation s'effectue par une nucléation d'une paroi, suivie d'une propagation et d'une annihilation de la paroi, ou bien par une deuxième nucléation de paroi dans la couche douce moins épaisse. Par la suite, je présente brièvement quelques résultats permettant de répondre à cette question.

Les figures V.2.12 montrent les champs moyens de nucléation $H_{sw}^{nucl.}$ et d'annihilation $H_{sw}^{annih.}$ en fonction de la température et de la vitesse de balayage du champ (technique de mesure du paragraphe II.2.4). Ces dépendances sont typiques d'un système activé thermiquement. On remarque que la dépendance thermique de $H_{sw}^{annih.}$ est beaucoup plus élevée que celle de $H_{sw}^{nucl.}$, de même pour la dépendance avec la vitesse de balayage. Les dynamiques de retournement de deux sauts d'aimantation sont donc très différentes (voir aussi la figure V.2.14).

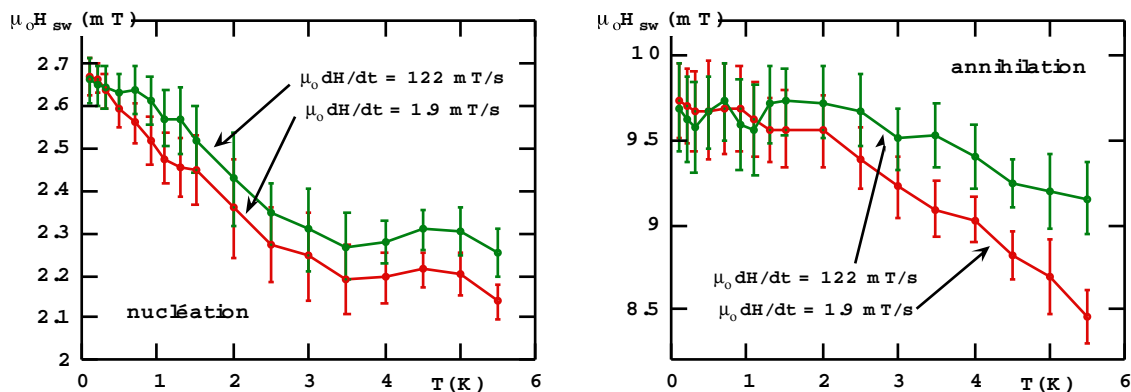


Fig. V.2.12 : Champs de nucléation et d'annihilation moyennés sur 100 cycles d'hystérésis, en fonction de la température et pour deux vitesses de balayage du champ. La largeur de la distribution du champ de nucléation et d'annihilation est présentée par les barres.

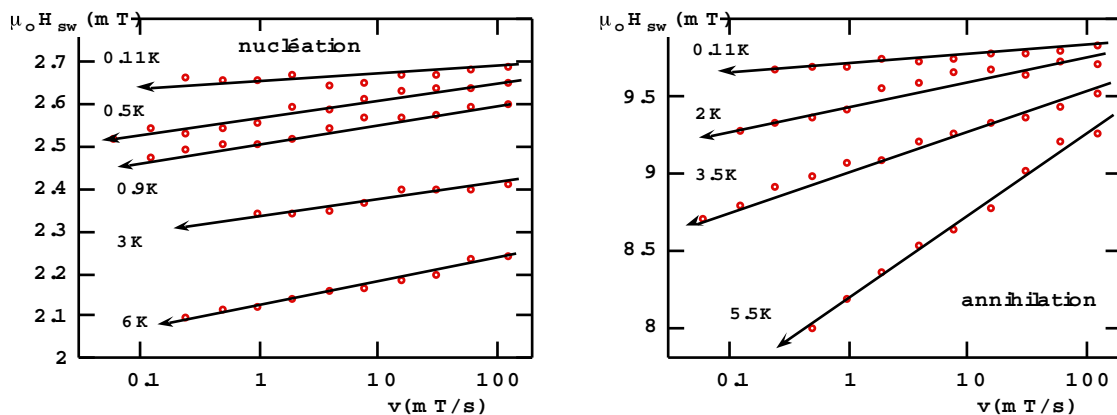


Fig. V.2.13 : Champs de nucléation et d'annihilation moyennés sur 100 cycles d'hystérésis, en fonction de la vitesse de balayage du champ.

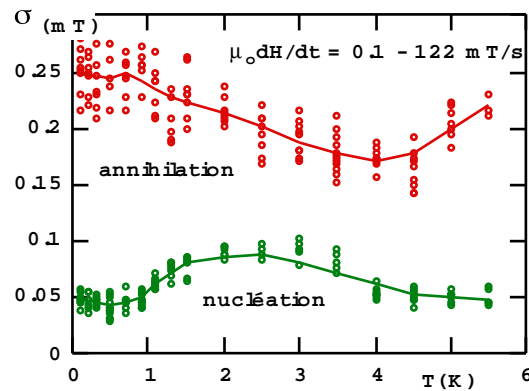


Fig. V.2.14 : Dépendance thermique de la largeur de la distribution du champ de nucléation et d'annihilation pour des vitesses de balayage comprises entre 0.1 et 122 mT/s.

Une autre méthode consiste à enregistrer le "bruit" de Barkhausen (variations de flux traversant la boucle du SQUID) pendant les deux sauts d'aimantation. On moyenne ensuite le bruit sur de nombreux cycles d'hystérésis. Les figures V.2.15 montrent des résultats pour trois températures. Le bruit enregistré pendant la nucléation de la paroi change peu en fonction de la température. Par contre, le bruit pendant l'annihilation de la paroi s'étale sur une région de champ magnétique de plus en plus grande à plus basse température.

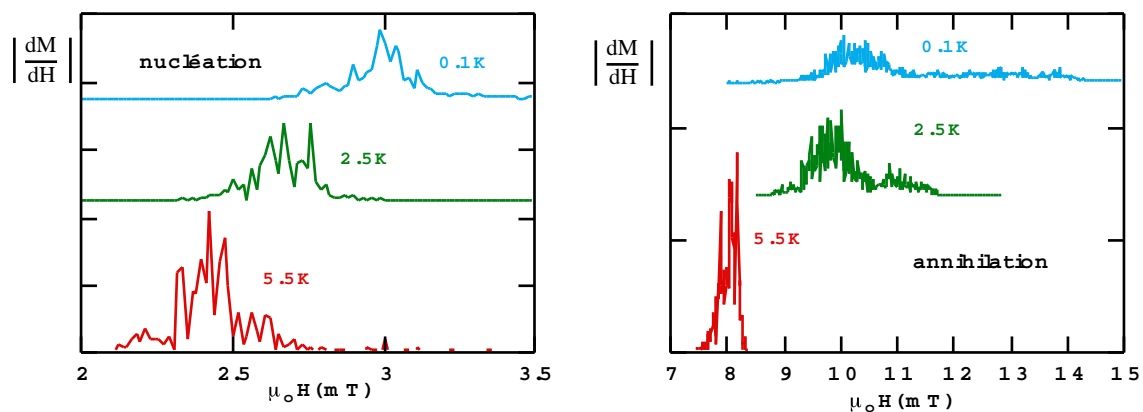


Fig. V.2.15 : "Bruit" de Barkhausen pendant les deux sauts d'aimantation pour trois températures.

La figure V.2.16 montre les intégrales du bruit de Barkhausen sur le champ magnétique. Ces courbes sont similaires aux cycles d'hystérésis mesurés en magnétométrie à SQUID traditionnelle. Les amplitudes des sauts pour l'intégrale du bruit ne sont pas comparables aux mesures macroscopiques car, dans le montage utilisé, le SQUID n'a détecté que les petites variations ($< \phi_0/2$) plus lentes que 1 ms. L'intégrale du bruit correspond donc aux cycles d'hystérésis auquel on soustrait les grandes avalanches de retournement.

On peut interpréter ces résultats de la manière suivante : pour les températures comprises entre 2 et 6 K, le retournement de l'aimantation de la multicouche se fait par la nucléation d'une paroi dans la couche douce épaisse, suivie d'une propagation de la paroi à travers la barrière puis d'une annihilation de la paroi. Pour les températures inférieures à 2 K, le retournement se fait essentiellement par la nucléation d'une deuxième paroi dans la couche douce moins épaisse. L'indication de ceci est que la dépendance thermique de $H_{sw}^{annih.}$ devient très faible pour $T < 1.5$ K, montrant un changement de mécanisme de retournement. De plus, la mesure du bruit de Barkhausen pendant le retournement montre qu'il y a encore un bruit important après le deuxième saut du cycle d'hystérésis. Ce bruit vient certainement de la couche dure qui se retourne après le retournement des deux couches douces. L'origine de cet effet est à chercher du côté de l'anisotropie de TbFe augmentant rapidement à basse température, le champ de propagation de la paroi devant alors plus grand que le champ de nucléation de la couche moins épaisse. On peut diminuer cet effet en réduisant l'épaisseur de TbFe.

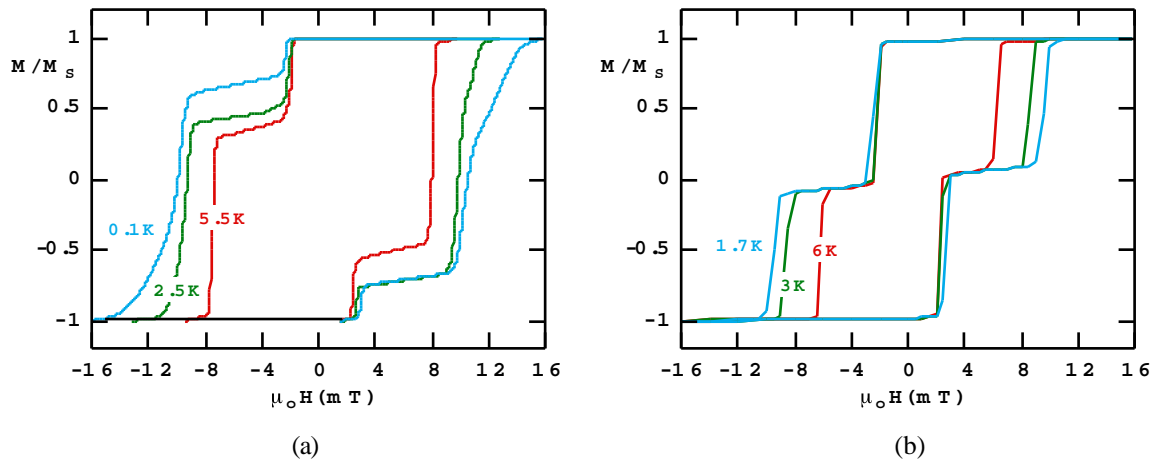


Fig. V.2.16 : (a) : Intégrales sur le bruit de Barkhausen pour trois températures, comparées à (b) : trois cycles d'hystérésis mesurés par A. Sulpice (CRTBT) utilisant la magnéto-métrie à SQUID traditionnelle.

Cette étude préliminaire sur une multicouche montre que la technique des micro-SQUID nous permet une nouvelle fois de retrouver les résultats de la magnéto-métrie à SQUID traditionnelle. De plus, les mesures locales permettent d'avoir accès directement aux détails du processus de retournement de l'aimantation.

V.3 Etude des interactions entre des particules magnétiques

Une autre extension de la technique peut être l'étude d'interactions entre des particules magnétiques. On peut étudier un ensemble de deux à quelques dizaines de particules (poudre et fluide magnétiques). On va voir que dans ce cas, un micro-SQUID (sonde locale) donne directement accès aux avalanches de retournement de l'aimantation, accompagnées d'un échauffement local. Ceci donne des informations sur les interactions entre les particules.

V.3.1 Particules dans un ferrofluide Fe_2O_3

Les particules en Fe_2O_3 ont été fabriquées chimiquement par le groupe de recherche de E. Tronc [Vincent 1994]. Elles sont initialement en suspension dans l'eau. A leur surface se trouvent de nombreux groupes hydroxylés (OH) qui sont plus ou moins ionisés selon le pH du milieu. Cette ionisation induit des forces de répulsion électrostatique qui entrent en compétition avec les forces attractives de Van der Waals. A pH 2, l'agrégation est minimale et cette dispersion stable peut être gelée par l'addition d'un polymère.

a) Dépôt des particules en suspension dans un liquide

Pour les particules gravées à partir d'une couche magnétique, il est facile de placer un SQUID dessus car on connaît exactement la position de la particule gravée. Pour les particules en suspension, le dépôt d'une seule particule est plus compliqué. La méthode pour placer un petit ensemble de particules sur la boucle du SQUID est basée sur la technique de "lift-off" (cf. II.5) : on fabrique d'abord les SQUID sur la plaquette, on fait ensuite un dépôt d'une couche de résine. On crée des trous dans la couche sur le SQUID à l'aide de la lithographie électronique (cf. II.5). Après cela, on dépose une goutte du ferrofluide mélangé avec un polymère (très dilué dans de l'eau) sur la plaquette et on laisse sécher. Finalement, on dissout la résine dans du trichloroéthylène (lift-off). Le dépôt disparaît, sauf là où il y avait le trou dans la résine.

b) Cycles d'hystérésis d'un petit ensemble de particules de Fe_2O_3

La figure V.3.1 montre un cycle d'hystérésis pour un trou de $1.6 \mu\text{m}$ sur $0.4 \mu\text{m}$. Si l'on regarde ce cycle en détail, on observe de nombreux sauts d'aimantation. Ces sauts sont probablement dus aux retournements de l'aimantation d'une particule ou de plusieurs particules qui

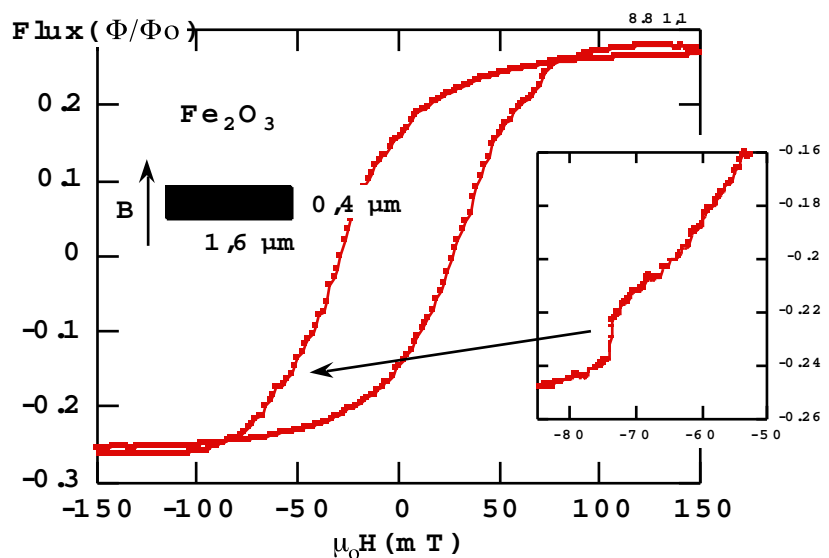


Fig. V.3.1 : Cycle d'hystérésis d'un ensemble de particules de Fe_2O_3 . La surface du dépôt est de $1.6 \mu\text{m}$ par $0.4 \mu\text{m}$.

s'effectuent simultanément dans un intervalle de temps de 200 μs . On peut aussi imaginer qu'il y a des effets d'avalanche résultant d'interactions entre les particules à travers le polymère. Les particules ne peuvent alors pas être considérées comme isolées.

La figure V.3.2 montre le signal obtenu pour un dépôt dans un trou de 0.1 μm sur 0.05 μm . Ce signal vient probablement d'une dizaine de particules. On observe que ce cycle n'est pas symétrique i.e. on a un grand saut à champ négatif et trois sauts à champ positif. Ceci est un autre indice en faveur de l'existence d'interactions entre les particules.

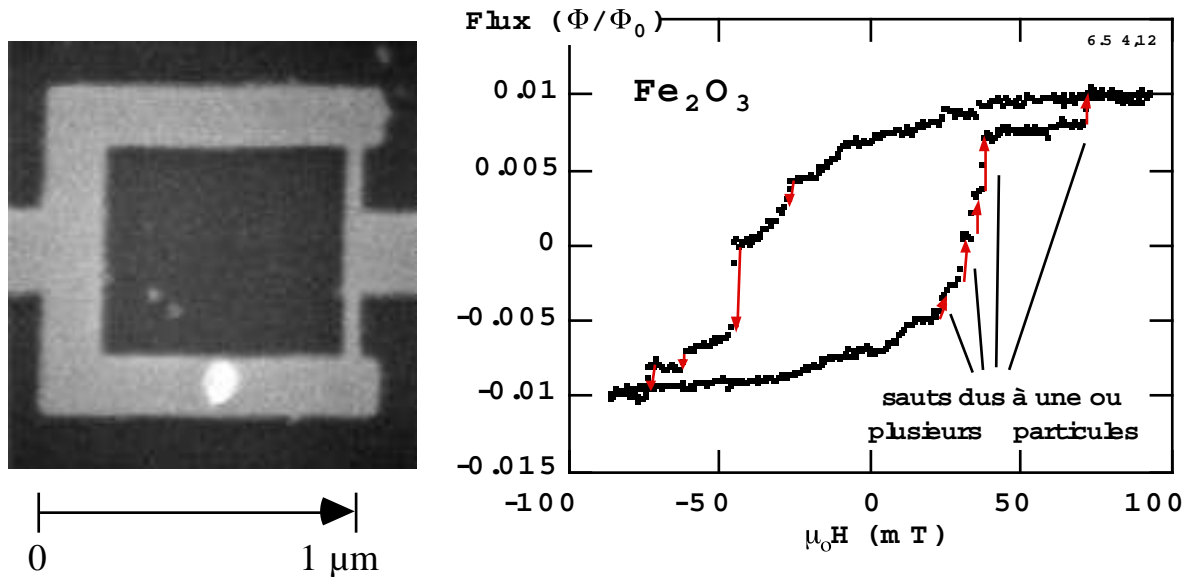


Fig. V.3.2 : Dépôt de gouttelettes du ferrofluide contenant plusieurs particules à l'aide d'un masque élaboré par lithographie électronique. Le cycle d'hystérésis montre des sauts d'aimantation dus à une ou plusieurs particules.

V.3.2 Particules de ferrite de baryum

Les particules de ferrite de baryum ont été préparées par la méthode de cristallisation vitreuse par O. Kubo. Elles ont la forme d'une plaquette hexagonale, et la direction de facile aimantation est perpendiculaire au plan de la plaquette. La fonction de distribution des diamètres est caractérisée par microscopie électronique à transmission. Le diamètre moyen est de 31.7 nm et les diamètres observés minimum et maximum sont respectivement de 14 nm et 60 nm. Le rapport diamètre sur épaisseur est de 2.2 (valeurs reçues de O. Kubo).

Le cristal de ferrite de baryum a une structure hexagonale compacte, avec des paramètres de maille égaux à $a = 0.588$ nm et $c = 2.32$ nm. Sa structure magnétique est ferrimagnétique avec un moment magnétique de $20 \mu_B$ par maille. La figure

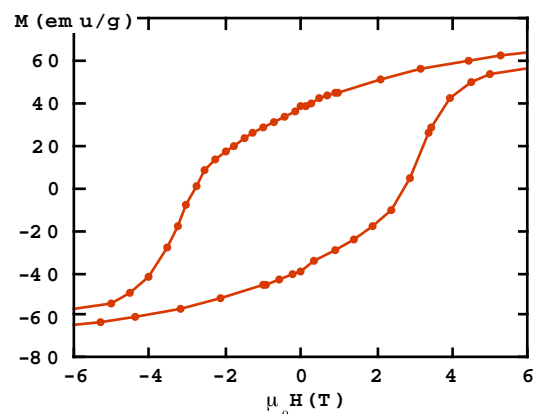


Fig. V.3.3 : Cycle d'hystérésis de quelques mg de poudre de particules de ferrite de baryum, à 4 K [Sampaio 1994].

V.3.3 montre le cycle d'hystérésis de quelques mg du poudre de ferrite de baryum mesuré par la magnétométrie à SQUID traditionnelle.

a) Dépôt des particules initialement sous forme d'une poudre

Les particules de ferrite de baryum ($\text{BaFe}_{14}\text{O}_{19}$) se présentent sous forme d'une poudre. A cause de leurs interactions magnétiques, ces particules forment de gros amas composés de 10^3 à 10^6 particules. Nous n'avons pas trouvé de bon moyen pour séparer ces particules. Néanmoins, pour essayer de mesurer une particule isolée, j'ai suivi la démarche suivante.

On mélange d'abord la poudre avec du propanol, car c'est un liquide qui s'étale bien sur un substrat lisse (faible tension de surface) et qui sèche relativement vite. Ensuite, on met le mélange dans un bain à ultrasons pendant une heure. Grâce à cette méthode mécanique, on sépare les plus gros amas. Après avoir laissé décanter la solution, on filtre le liquide avec un filtre d'environ $0.45 \mu\text{m}$ (taille des trous) pour avoir une solution contenant seulement de petits amas. Finalement, on dépose une goutte de la solution filtrée ou non filtrée sur une plaquette comportant une vingtaine de SQUID, en espérant qu'une particule ou qu'un petit amas se place sur un SQUID.

Par la suite, je présente quelques résultats préliminaires obtenus avec ce type de particules.

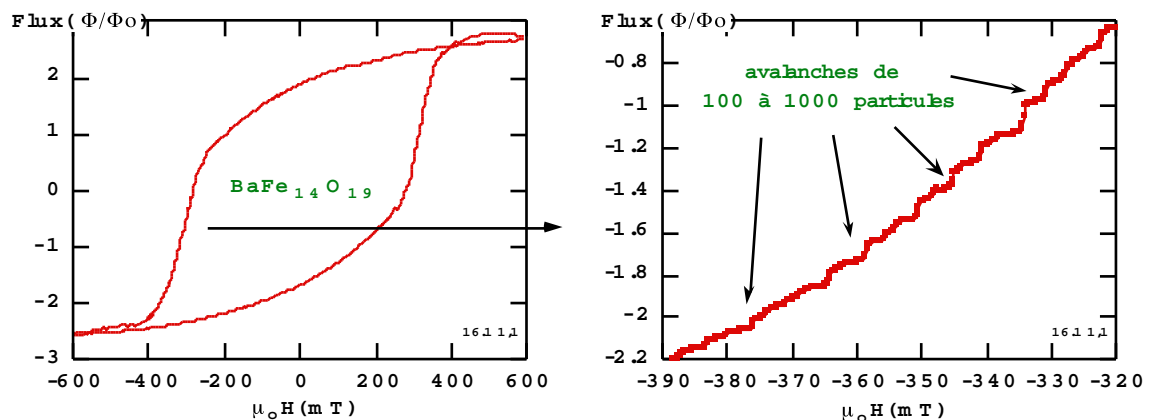


Fig. V.3.4 : Cycle d'hystérésis d'un amas d'environ 10^5 particules de $\text{BaFe}_{14}\text{O}_{19}$ mesuré par un SQUID à une distance de quelques micromètres.

b) Cycles d'hystérésis des amas de $\text{BaFe}_{14}\text{O}_{19}$

La figure V.3.4 montre le cycle d'hystérésis d'un amas composé d'environ 10^5 particules. Le signal est relativement faible car la distance entre le SQUID et l'amas est de quelques μm . Le cycle d'hystérésis est composé de nombreux de petits sauts. Contrairement à tous les sauts d'aimantation présentés dans ce rapport, la durée de chacun des petits sauts est de l'ordre d'une milliseconde. Nous pensons que chaque saut vient du renversement de l'aimantation d'environ 10^3 particules, qui se fait par une avalanche. Ces avalanches sont très intéressantes pour l'étude des interactions entre les particules.

Le cycle d'hystérésis d'un amas composé d'une centaine de particules est montré dans la figure V.3.5. Ici, la durée du saut est inférieure à $100 \mu\text{s}$ et correspond au retournement de l'aimantation de plusieurs particules.

Jusqu'à présent, je n'ai eu qu'une fois un SQUID qui ait mesuré le signal d'un seul saut d'aimantation (figure V.3.6). L'amplitude du signal est petite et pourrait correspondre au renversement de l'aimantation d'une seule particule. Malheureusement ce SQUID ne fonctionnait pas assez bien pour mesurer le champ de renversement de l'aimantation H_{SW} en fonction de la température par la méthode présentée dans le paragraphe II.2.4.

Cependant, nous avons pu mesurer la distribution de H_C par la méthode présentée dans le paragraphe II.2.2, i.e. pour une température fixe et inconnue. La figure V.3.6 montre les deux distributions de H_{SW} (pour les champs positif et négatif). On observe une grande variance qui est égale à 8 % de H_{SW} .

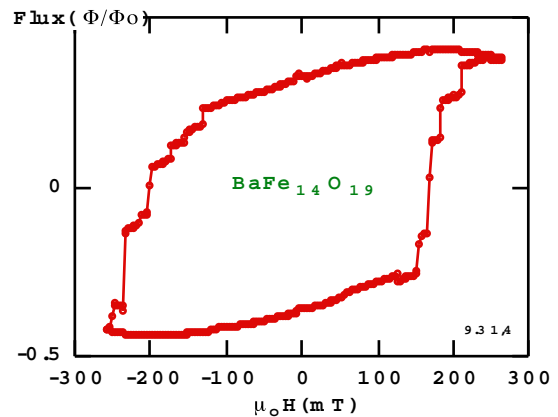


Fig. V.3.5 : Cycle d'hystérésis d'un amas d'une centaine de particules de $\text{BaFe}_{14}\text{O}_{19}$.

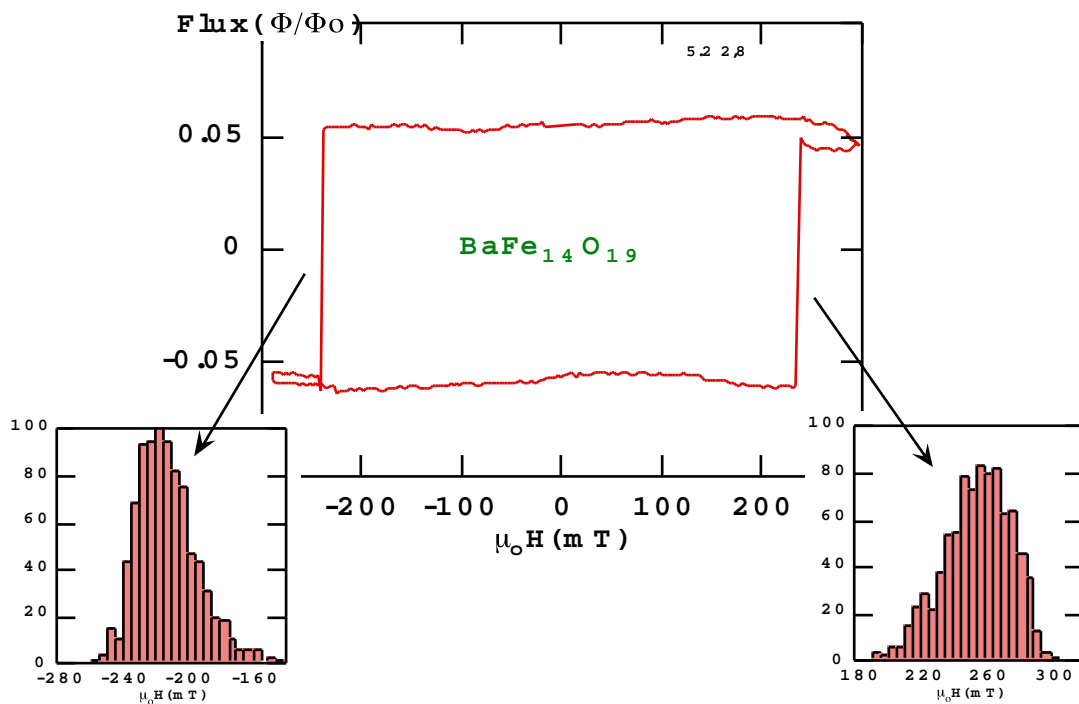


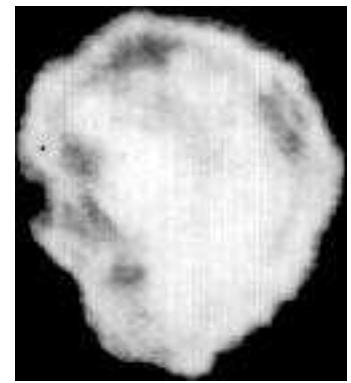
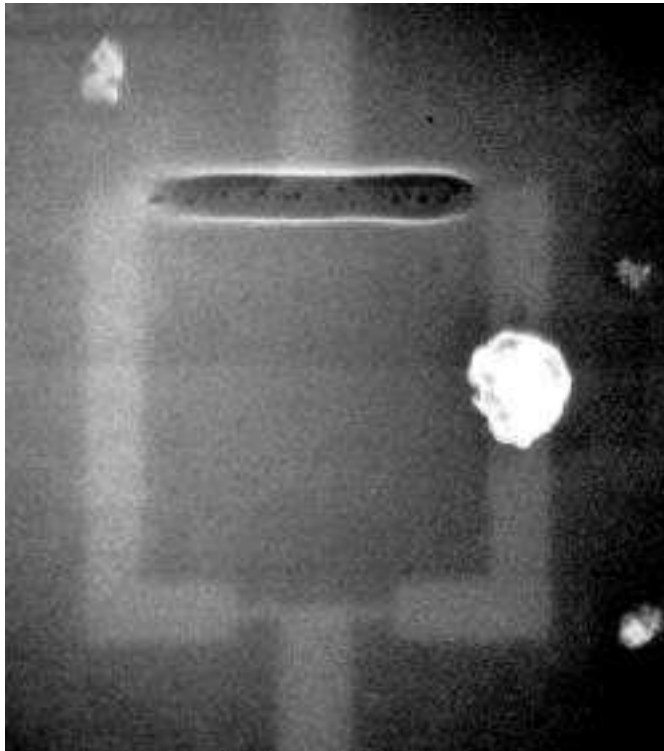
Fig. V.3.6 : Cycle d'hystérésis d'une particule de $\text{BaFe}_{14}\text{O}_{19}$ et les deux distributions des H_{SW} .

Avec ces particules de ferrite de baryum, nous avons étudié un nouveau type de particules et nous avons montré qu'avec la technique des micro-SQUID on peut étudier directement les interactions entre les particules.

Un dernier type de particules sur lesquelles nous avons faits des études préliminaires sont des particules de Ni entouré de Pd présentées dans le paragraphe suivant.

V.3.3 Particules de nickel enrobées de palladium

Les particules ont été préparées grâce à la méthode de réduction chimique par T. Kikinzoku, . Nous avons reçu ces particules de Y. Otani. Il s'agit de particules cristallines de Ni enrobées de Pd. La méthode, choisie pour déposer une particule sur un SQUID, est décrite au paragraphe V.3.2a. Un exemple de dépôt est montré dans la figure V.3.7 et schématisé dans la figure V.3.8. La particule est séparée du SQUID par une couche de PMMA pour réduire le signal magnétique.



0 0.6 μm

Fig. V.3.7 : Sur la photo à gauche, zoom d'une particule de Ni enrobée de Pd (20-35 nm).

0 2 μm

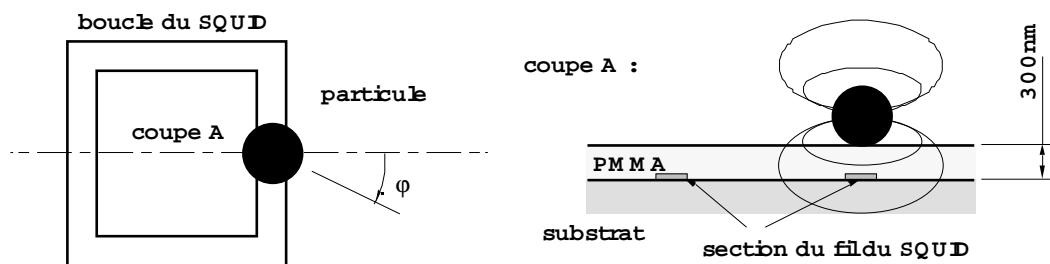


Fig. V.3.8 : Schéma de la position de la particule de Ni sur le SQUID.

La figure V.3.9 montre quelques cycles d'hystérésis pour différents angles du champ appliqué. Le retournement commence par un grand saut d'aimantation, créant une structure en domaine à flux

fermé. Ensuite, le retournement continue par d'autres sauts. Il faut noter que le bruit du SQUID est inférieur à $0.001 \Phi_0$. Les fluctuations de flux sont donc d'origine magnétique.

La figure V.3.10 présente deux histogrammes de H_{SW} correspondant au grand saut d'aimantation. La largeur de l'histogramme est importante. La dépendance thermique de H_{SW} est très faible ($\approx 0.1 \text{ mT/K}$) par rapport à $\sigma \approx 1.4 \text{ mT}$.

Il serait intéressant de continuer ces études plus en détail.

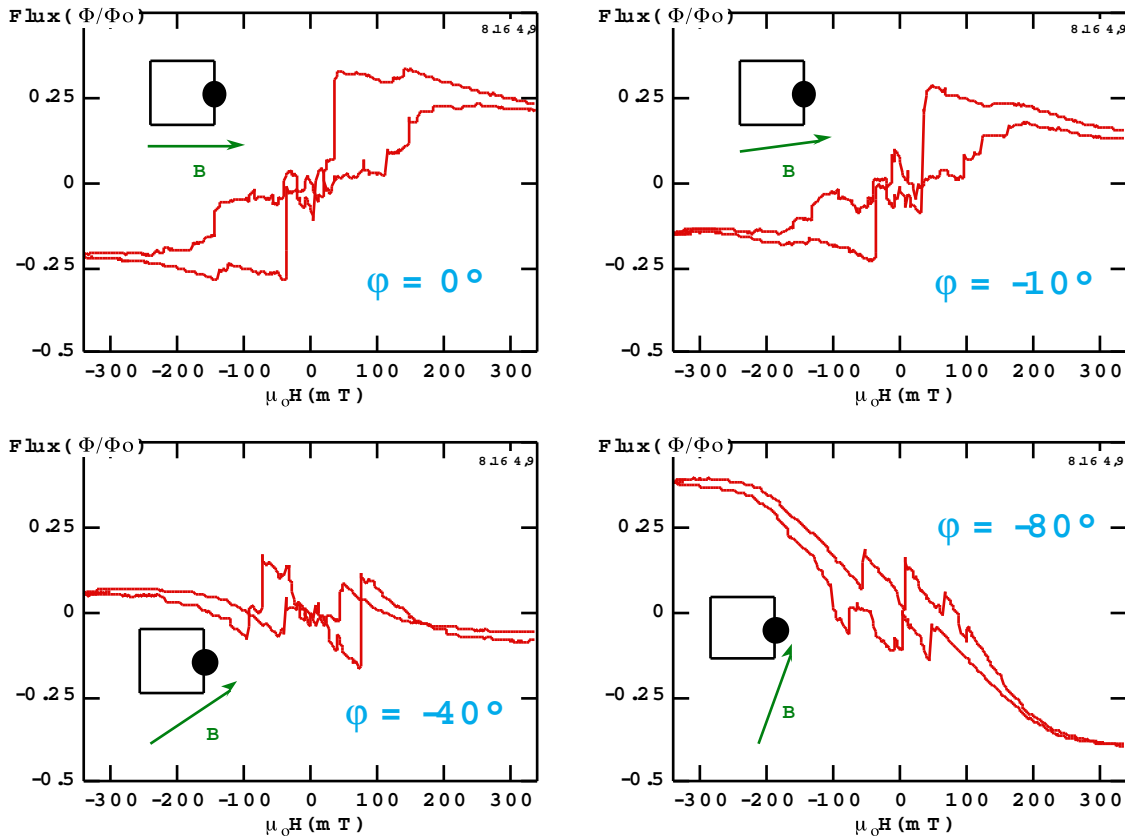


Fig. V.3.9 : Quelques cycles d'hystérésis pour différents angles du champ appliqué.

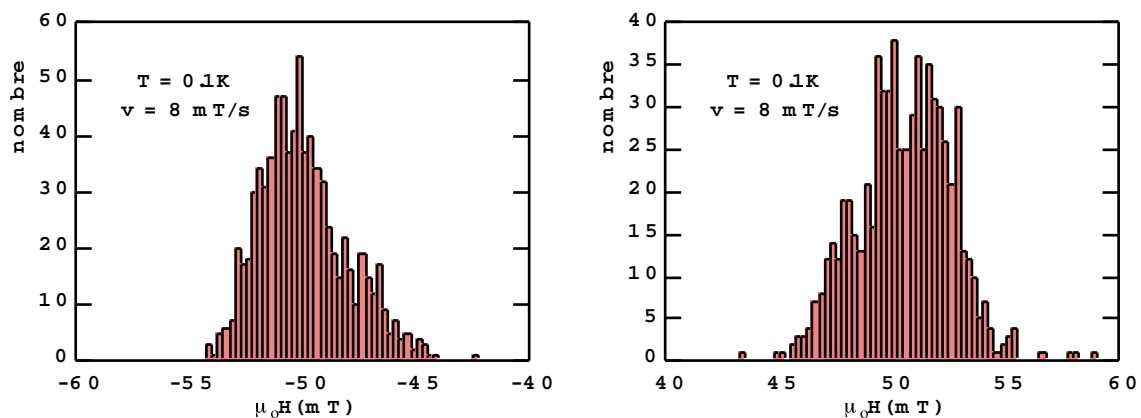


Fig. V.3.10 : Deux exemples d'histogrammes de H_{SW} correspondant au premier grand saut marquant le début du retournement d'aimantation, $\phi = 0^\circ$, $\sigma \approx 1.4 \text{ mT}$.

V.4 Conclusion

Dans ce dernier chapitre la question était de savoir si la technique de micro-SQUID est aussi adaptée aux systèmes plus grands, avec une taille comprise entre 1 μm et quelques mm. Pour cela, j'ai exposé brièvement quelques extensions de la technique de mesure à d'autres systèmes. A l'issue de ces premières études nous avons vu qu'on peut utiliser plusieurs SQUID en tant que sondes en les plaçant très près de l'objet à étudier. On peut alors mesurer localement les retournements de l'aimantation avec de très bonnes sensibilités en flux magnétiques et en temps. Cette technique est très performante puisqu'on peut ainsi avoir directement accès aux données importantes comme la formation des domaines, la dynamique des parois, l'accrochage des parois sur les défauts, le couplage entre les grains d'une couche polycristallisée, le couplage entre les couches d'une multicouche, etc. L'étude d'un échantillon magnétique à l'échelle de quelques nanomètres englobe l'obtention de données macroscopiques accessibles par des expériences plus classiques. En effet, la somme des signaux microscopiques mesurés en plusieurs endroits correspond au signal macroscopique de l'échantillon entier.

Une autre extension de la technique peut être l'étude d'interaction entre des particules magnétiques. On peut étudier un ensemble de deux à quelques dizaines de particules (poudre et fluide magnétiques). Dans ce cas, un micro-SQUID (sonde locale) donne directement accès aux interactions entre les particules. De plus, on peut étudier directement les avalanches de retournement de l'aimantation qui sont accompagnées d'un échauffement local. Ces avalanches deviennent importantes au moment où les interactions entre les particules sont fortes.

En ce qui concerne la comparaison entre le magnétomètre à SQUID classique et le micro-SQUID que nous avons utilisé, nous avons montré que cette deuxième technique est beaucoup plus sensible que la première. Le problème principal d'un magnétomètre à SQUID est de coupler la bobine de détection au SQUID sans injecter de bruit dans le SQUID. Avec le micro-SQUID cette bobine est remplacée par un couplage direct de l'échantillon avec le SQUID. Dans le cas d'une particule placée sur le fil de la boucle du SQUID, la technique des micro-SQUID est alors 10^9 fois plus sensible qu'un magnétomètre à SQUID classique. Cependant il faut noter que ce résultat est seulement valable pour des échantillons qui sont plus petits que la taille du SQUID. Dans le cas opposé, i.e. lorsque la taille de l'échantillon est beaucoup plus grande que la taille du SQUID, le couplage décroît rapidement.

Si la technique du micro-SQUID est très performante, il reste qu'elle n'est applicable qu'à très basses températures. En utilisant comme matériau constituant les SQUID des matériaux supraconducteurs à haute température critique, et en faisant le même type de mesures que celles que nous avons présentées, on pourrait étudier l'aimantation jusqu'à 100 K.

Il serait aussi possible d'appliquer le même raisonnement avec des sondes à effet Hall et d'utiliser des micro-sondes ceci afin d'arriver jusqu'à la température ambiante.

Conclusion générale

Au cours de ce travail de thèse, nous avons effectué les premières mesures de l'aimantation d'une seule particule ferromagnétique à basse température (0.1 - 6 K). Nous avons utilisé pour ceci des SQUID hystérétiques continus extrêmement performants puisqu'ils sont 10^9 fois plus sensibles que les magnétomètres à SQUID traditionnels : la sensibilité de nos mesures est de $10^4 \mu_B$. Nous avons étudié des systèmes multiples et variés : tout d'abord des particules faites par lithographie électronique de forme elliptiques et de dimensions supérieures à 50 nm, mais aussi des fils magnétiques et des agrégats.

En ce qui concerne les particules élaborées par lithographie électronique, les plus petites ont montré que la variation du champ de retournement en fonction de l'angle est en accord qualitatif avec le modèle de rotation uniforme de Stoner Wohlfarth [St.-W. 1948, Néel 1947]. Cependant nous avons trouvé que le retournement de l'aimantation de la particule est déclenché par un processus de nucléation. Ceci se voit par le fait que la barrière d'énergie trouvée à l'issue des mesures dynamiques est deux ordres de grandeur plus petite que celle prévue par le modèle de rotation uniforme.

Pour acquérir des informations sur le mécanisme de retournement (activation thermique, quantique...) et sur le volume d'activation dans lequel le retournement débute, nous avons étudié la dynamique de retournement de l'aimantation par deux méthodes :

- (i) en mesurant le champ de retournement moyen et la largeur de la distribution du champ de retournement en fonction de la température et de la vitesse de balayage ;
- (ii) en mesurant la probabilité de retournement à champ fixe en fonction du temps et de la température.

Les études de la dynamique de retournement de l'aimantation faites sur les particules obtenues par lithographie (cf. III.3 et A.5), les fils magnétiques (cf. III.4) et les particules monocristalines (cf. A.6) ont montré que le retournement de l'aimantation est activé thermiquement et peut être approximativement décrit par le modèle de Kurkijärvi [Kurkijärvi 1972]. Il y a principalement deux déviations par rapport au modèle. Premièrement, l'ajustement n'est possible qu'au dessus d'une certaine température (typiquement au dessus de 1 K). En dessous de cette température critique, la dynamique de retournement semble devenir indépendante de la température. Ceci pourrait être dû à un effet quantique qui s'étend sur le volume d'activation. La deuxième déviation par rapport au modèle est une courbure résiduelle de la courbe majeure de l'ajustement qui pourrait s'interpréter par une diminution du volume d'activation vers les basses températures. Cette interprétation pourrait aussi expliquer l'augmentation de la largeur de la distribution du champ de retournement lorsque la température décroît.

En ce qui concerne les mesures de la probabilité de retournement de l'aimantation nous avons trouvé pour les plus petites particules que cette probabilité est proche d'une exponentielle ce qui jusqu'à présent n'était qu'une hypothèse dans presque tous les modèles existants. Cependant il existe de nouveau deux déviations à plus basse température probablement de même origine que les déviations observés sur les mesures de la distribution du champ de retournement.

Nos mesures ont aussi montré l'influence de défauts (rugosité de surface, défauts cristallins, impuretés, oxydation, etc.) qui créent de multiples vallées et cols dans la surface d'énergie potentielle décrivant le système. Ces vallées et cols sont en fait révélés lorsque l'énergie thermique est du même ordre de grandeur ou inférieure à ces fluctuations de la surface d'énergie.

Enfin, avec les premières mesures sur les agrégats (cf. III.5) et des particules monocristallines (cf. A.6), nous avons commencé à étudier des systèmes beaucoup plus petits et possédant peu d'impuretés. En espérant que ces systèmes présentent moins de défauts que ceux jusqu'à présent étudiés, nous pourrions voir plus clairement si un effet quantique de l'aimantation existe ou non.

Dans le dernier chapitre sont présentées quelques extensions possibles de la technique de mesure avec les SQUID, notamment à des systèmes plus grands. Nous avons montré qu'on peut utiliser plusieurs SQUID en tant que sondes en les plaçant très près de l'objet à étudier. On peut alors mesurer localement les retournements de l'aimantation avec de très bonnes sensibilités en flux magnétiques et en temps.

Même si notre technique des SQUID hystériques continus est extrêmement performante (sensibilité de $10^4 \mu_B$), il y a encore une marche de quatre ordres de grandeur à franchir pour atteindre la limite quantique. C'est en utilisant des SQUID shuntés que nous espérons nous approcher plus près de cette limite avec une sensibilité de $100 \mu_B$.

En utilisant comme matériau de constitution des SQUID des matériaux supraconducteurs à haute température critique, on pourrait étudier l'aimantation à de plus hautes températures jusqu'à 100 K.

Annexe 1 : Modèle de Stoner-Wohlfarth

L'énergie totale du système est donnée par :

$$E = \sin^2\theta - 2h \cos(\theta - \varphi) \quad h = \frac{\mu_0 M H_0}{2K}$$

Comme le système est dans un minimum local, la dérivée $\partial_{\theta_0} E = 0$ s'annule :

$$\partial_{\theta_0} E = 2\sin\theta_0 \cos\theta_0 + 2h \sin(\theta_0 - \varphi) = 0 \Rightarrow -2h \sin(\theta_0 - \varphi) = 2\sin\theta_0 \cos\theta_0 = \sin 2\theta_0 \quad (1)$$

La dérivée $\partial_{\theta_0}^2 E = 0$ s'annule aussi car ceci est la définition du retournement de l'aimantation :

$$\partial_{\theta_0}^2 E = 2 \cos 2\theta_0 + 2h \cos(\theta_0 - \varphi) \Rightarrow -h \cos(\theta_0 - \varphi) = \cos 2\theta_0 \quad (2)$$

On divise les deux équations puis on transforme l'expression obtenue :

$$\frac{(1)}{(2)} : \quad \tan 2\theta_0 = 2 \tan(\theta_0 - \varphi) \Rightarrow \frac{2 \tan \theta_0}{1 - \tan^2 \theta_0} = \frac{2(\tan \theta_0 - \tan \varphi)}{1 + \tan \theta_0 \tan \varphi}$$

Ceci donne une relation importante entre l'angle du champ appliqué et l'angle de l'aimantation juste avant le retournement :

$$\tan \theta_0 = -\tan^{1/3} \varphi \quad (3)$$

Ensuite, $(1)^2 + (2)^2$ donne le champ de retournement en fonction de l'angle du champ appliqué :

$$h_0 = \frac{\left(1 - \tan^{2/3} \varphi + \tan^{4/3} \varphi\right)^{1/2}}{1 + \tan^{2/3} \varphi} = \frac{1}{\left(\sin^{2/3} \varphi + \cos^{2/3} \varphi\right)^{3/2}} \quad (4)$$

Le champ coercitif n'est égal au champ de retournement que pour $0 > \pi - \varphi > \frac{\pi}{4}$. Pour $\frac{\pi}{4} > \pi - \varphi > \frac{\pi}{2}$

il est donné par le champ où l'aimantation s'annule. L'aimantation est donnée par la projection de M sur la direction du champ appliqué, donc :

$$M = M_S \cos(\varphi - \theta) = 0 \Rightarrow \varphi - \theta = \frac{\pi}{2}$$

$$(1) \Rightarrow -2h \sin\left(-\frac{\pi}{2} + \varphi - \varphi\right) = \sin 2\left(\frac{\pi}{2} + \varphi\right)$$

$$\Rightarrow h_c = -\frac{1}{2} \sin 2\varphi = \frac{1}{2} \sin 2(\pi - \varphi)$$

Annexe 2 : Curling

Dans cette annexe est calculée la dépendance angulaire du champ de nucléation d'un cylindre magnétique infini. En partant des équations données dans le paragraphe I.1.2c :

$$\sin 2\theta + 2h_n \sin(\theta - \varphi) = 0 \quad (1)$$

$$h_{ni} = -\sin^2 \theta + h_n \cos(\theta - \varphi) \quad (2)$$

Transformation à l'aide des formules trigonométriques :

$$\sin \theta \cos \theta + h_n \sin \theta \cos \varphi - h_n \cos \theta \sin \varphi = 0 \quad (1')$$

$$-\sin^2 \theta + h_n \cos \theta \cos \varphi + h_n \sin \theta \sin \varphi = h_{ni} \quad (2')$$

En faisant l'opération $-(1') \cdot \cos \theta + (2') \cdot \sin \theta$ on obtient :

$$-\sin \theta + h_n \sin \varphi = h_{ni} \sin \theta \quad \rightarrow \quad \sin \theta = \frac{h_n \sin \varphi}{h_{ni} + 1} \quad (3)$$

En remplaçant (3) dans (1') on a :

$$-\frac{h_n \sin \varphi}{h_{ni} + 1} \cos \theta + h_n \sin \varphi \cos \theta - h_n \cos \varphi \frac{h_n \sin \varphi}{h_{ni} + 1} = 0$$

$$\cos \theta = \frac{h_n \cos \varphi}{h_{ni}} \quad (4)$$

Finalement avec $\sin^2 \theta + \cos^2 \theta = 1$ et (3) et (4) on trouve :

$$h_n = \frac{h_{ni}(h_{ni} + 1)}{\sqrt{h_{ni}^2 + (1 + 2h_{ni} \cos^2 \varphi)}}$$

Annexe 3 : Développement limité de l'énergie appliqué au modèle de Stoner-Wohlfarth

Quelques dérivées de l'énergie totale du système pour le champ de retournement :

$$\begin{aligned}
 \partial_{\theta_0} E &= \sin 2\theta_0 + 2h_0 \sin(\theta_0 - \varphi) = 0 & \partial_{H_0} \partial_{\theta_0} E &= 2 \sin(\theta_0 - \varphi) = -\frac{1}{h_0} \sin 2\theta_0 \\
 \partial_{\theta_0}^2 E &= 2 \cos 2\theta_0 + 2h_0 \cos(\theta_0 - \varphi) = 0 & \partial_{H_0} \partial_{\theta_0}^2 E &= 2 \cos(\theta_0 - \varphi) = -\frac{2}{h_0} \cos 2\theta_0 \\
 \partial_{\theta_0}^3 E &= -4 \sin 2\theta_0 - 2h_0 \sin(\theta_0 - \varphi) = -3 \sin 2\theta_0 & \partial_{H_0} \partial_{\theta_0}^3 E &= -2 \sin(\theta_0 - \varphi) = \frac{1}{h_0} \sin 2\theta_0 \\
 \partial_{\theta_0}^4 E &= -8 \cos 2\theta_0 - 2h_0 \cos(\theta_0 - \varphi) = -6 \cos 2\theta_0 & \partial_{H_0} \partial_{\theta_0}^4 E &= -2 \cos(\theta_0 - \varphi) = \frac{2}{h_0} \cos 2\theta_0 \\
 \partial_{\theta_0}^5 E &= 16 \sin 2\theta_0 + 2h_0 \sin(\theta_0 - \varphi) = 15 \sin 2\theta_0 & \partial_{H_0} \partial_{\theta_0}^5 E &= 2 \sin(\theta_0 - \varphi) = -\frac{1}{h_0} \sin 2\theta_0 \\
 \partial_{\theta_0}^6 E &= 32 \cos 2\theta_0 + 2h_0 \cos(\theta_0 - \varphi) = 30 \cos 2\theta_0 & &
 \end{aligned}$$

Si on reporte ces dérivées dans le développement limité au premier ordre non nul, on a :

$$\begin{aligned}
 \Delta\theta_{2,1} &= \pm \sqrt{\frac{2\partial_{H_0} \partial_{\theta_0} E (\Delta H)}{\partial_{\theta_0}^3 E}} + O(\Delta H) = \pm \sqrt{\frac{2 (\Delta H)}{3 h_0}} + O(\Delta H) \\
 \Delta E &= E(\Delta\theta_2) - E(\Delta\theta_1) = (\Delta H)^{\frac{3}{2}} \frac{2}{3} \sqrt{\frac{(2\partial_{H_0} \partial_{\theta_0} E)^3}{\partial_{\theta_0}^3 E}} + O(\Delta H^2) = 2 \left(\frac{2 \Delta H}{3 h_0} \right)^{\frac{3}{2}} |\sin 2\theta_0| + O(\Delta H^2)
 \end{aligned}$$

Si on reporte les dérivées dans le développement limité jusqu'au deuxième ordre non nul, on a :

$$\begin{aligned}
 \Delta E &= E(\Delta\theta_2) - E(\Delta\theta_1) = \frac{2(\Delta H)}{3 h_0} \sqrt{\left(2\cos 2\theta_0 \frac{(\Delta H)}{h_0} \right)^2 + 6 \sin^2 2\theta_0 \frac{(\Delta H)}{h_0}} + \\
 & - \frac{1}{9} \sqrt{3 \left(2\cos 2\theta_0 \frac{(\Delta H)}{h_0} \right)^2 \left(2 \frac{(\Delta H)}{h_0} \right)^2 + 3 \sin^2 2\theta_0 \left(2 \frac{(\Delta H)}{h_0} \right)^3} + O(\Delta H^{\frac{5}{2}})
 \end{aligned}$$

La simplification de l'expression donne :

$$\Delta E = E(\Delta\theta_2) - E(\Delta\theta_1) \approx \frac{2}{3} \left(\frac{(\Delta H)}{h_0} \right)^{\frac{3}{2}} \left[\begin{array}{l} \sqrt{4\cos^2 2\theta_0 \frac{(\Delta H)}{h_0} + 6 \sin^2 2\theta_0} \\ -\frac{\sqrt{6}}{3} \sqrt{2\cos^2 2\theta_0 \frac{(\Delta H)}{h_0} + \sin^2 2\theta_0} \end{array} \right] + O(\Delta H^{\frac{5}{2}})$$

Le terme négligé dans le développement est environ égal à :

$$\frac{1}{24} \partial_{\theta_0}^4 E (\Delta\theta)^4 \approx \frac{1}{24} \partial_{\theta_0}^4 E \left(\frac{2\partial_{H_0} \partial_{\theta_0} E (\Delta H)}{\partial_{\theta_0}^3 E} \right)^2 + O(\Delta H^{\frac{5}{2}}) = -\frac{\cos 2\theta_0}{9} \left(\frac{(\Delta H)}{h} \right)^2 + O(\Delta H^{\frac{5}{2}})$$

Annexe 4 : Modèle de Kurkijärvi

Dans cette annexe sont présentés les calculs de la distribution du champ de retournement, de sa valeur moyenne et de sa largeur.

a) Cas particulier

Si le champ magnétique est constant, on suppose que le taux de passage de la barrière est :

$$\Gamma = \Gamma_0 e^{-E/kT} \quad (1)$$

De plus, on suppose que la probabilité de ne pas passer la barrière est :

$$dP = -P \Gamma dt \quad P(t) = e^{-\Gamma t} \quad (2)$$

De façon analogue, la probabilité de ne pas passer la barrière pour une vitesse de balayage constante est :

$$d\tilde{P} = -\tilde{P} \Gamma(H) dt = -\tilde{P} \Gamma(H) \frac{1}{dH/dt} dH \quad \tilde{P}(H) = \exp\left[-\int_0^H dH' \frac{\Gamma(H')}{dH'/dt}\right] \quad (3)$$

Donc, la distribution du champ de retournement est :

$$p(H) = -\frac{d\tilde{P}}{dH} = \frac{\Gamma}{dH/dt} \tilde{P}(H) \quad (4)$$

i.e. $p(H)$ est le produit de probabilité $\frac{\Gamma}{dH/dt}$ que le retournement se passe dans l'intervalle entre H et $H+dH$, et de la probabilité $\tilde{P}(H)$ que le retournement ne soit pas encore arrivé.

$$\text{On définit : } h = \frac{H}{H_c} \quad v = \frac{dh}{dt} \quad p(h) = e^{\phi(h)}$$

On fait un développement de Taylor autour du maximum de la distribution du champ de retournement \hat{h} définit par :

$$\frac{p(\hat{h})}{dt} = 0, \quad \text{i.e.} \quad \frac{\phi(\hat{h})}{dt} = 0$$

Donc :

$$\begin{aligned} p(h) &= p(\hat{h}) + \frac{1}{2}(h - \hat{h})^2 p''(\hat{h}) + \dots \\ \phi(h) &= \phi(\hat{h}) + \frac{1}{2}(h - \hat{h})^2 \phi''(\hat{h}) + \dots \end{aligned} \quad \Delta h = h - \hat{h} \approx \sqrt{\frac{2(p(h) - p(\hat{h}))}{p''(\hat{h})}}$$

On définit la largeur Δh de la distribution par la largeur de $p(h)$ à mi-hauteur ($2 p(h) = p(\hat{h})$), d'où :

$$\Delta h \approx \sqrt{\frac{-p(\hat{h})}{p''(\hat{h})}}, \quad \text{i.e.} \quad \Delta h \approx \frac{1}{\sqrt{\phi''(\hat{h})}}$$

On peut écrire :

$$\phi(h) = \ln\left(\frac{\Gamma}{v}\right) + \int_0^h dh' \frac{\Gamma(h')}{v}$$

Comme le maximum \hat{h} est défini par $\phi'(\hat{h}) = 0$, on trouve les relations :

$$\frac{d\Gamma}{dh} = \frac{\Gamma^2}{v} \quad \phi''(\hat{h}) = -\frac{1}{\Gamma} \frac{d^2\Gamma}{dh^2} + 2\left(\frac{\Gamma}{v}\right)^2 \quad (5)$$

Donc, la largeur de la distribution est :

$$\Delta h = \frac{1}{\sqrt{-\frac{1}{\Gamma} \frac{d^2\Gamma}{dh^2} + 2\left(\frac{\Gamma}{v}\right)^2}} \quad (6)$$

On suppose :

$$\Gamma = \Gamma_0 \exp\left[-\frac{E_0}{kT} \varepsilon^\alpha\right] \quad \text{avec} \quad \varepsilon = \left(1 - \frac{H}{H_{sw}^0}\right) = (1-h) \quad (7)$$

L'équation (5) donne pour $h = \hat{h}$, i.e. le maximum de la distribution :

$$\frac{\Gamma}{v} = \alpha \frac{E_0}{kT} \varepsilon^{\alpha-1} \Rightarrow \frac{\hat{H}}{H_{sw}^0} = 1 - \left[\frac{kT}{E_0} \ln\left(\frac{cT}{v\varepsilon^{\alpha-1}}\right)\right]^{1/\alpha} \quad c = \frac{k H_{sw}^0 \Gamma_0}{\alpha E_0} \quad (8)$$

Ensuite, l'équation (6) pour la largeur de la distribution devient :

$$\Delta h = \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{\Gamma}{v}\right)^2 + \frac{(\alpha-1)}{\varepsilon} \left(\frac{\Gamma}{v}\right)}} \quad \text{avec} \quad \frac{\Gamma}{v} = \alpha \left(\frac{E_0}{kT}\right)^{1/\alpha} \left[\ln\left(\frac{cT}{v\varepsilon^{\alpha-1}}\right)\right]^{1/\alpha} \quad (9)$$

Le rapport des deux termes dans la racine est $\frac{\Gamma}{v} \varepsilon \approx \frac{E_0}{kT} \varepsilon^\alpha$. En général, pour nos mesures, $\frac{E_0}{kT} > 1000$ et $\varepsilon < 0.1$, on peut donc négliger le deuxième terme :

$$\Delta h \approx \frac{v}{\Gamma} \approx \frac{1}{\alpha} \left(\frac{kT}{E_0}\right)^{1/\alpha} \left[\ln\left(\frac{cT}{v\varepsilon^{\alpha-1}}\right)\right]^{1-\alpha}$$

Avec l'approximation que la valeur est environ égale au maximum de la distribution et que la racine de la variance est environ égale à la demi largeur de la distribution, on trouve :

$$\bar{H}_{sw} \cong H_{sw}^0 \left(1 - \left[\frac{kT}{E_0} \ln\left(\frac{cT}{v\varepsilon^{\alpha-1}}\right)\right]^{1/\alpha}\right) \quad c = \frac{k H_{sw}^0 \Gamma_0}{\alpha E_0} \quad \varepsilon = 1 - \frac{H}{H_{sw}^0} \quad (10)$$

$$\sigma \cong H_{sw}^0 \frac{1}{\alpha} \left(\frac{kT}{E_0}\right)^{1/\alpha} \left[\ln\left(\frac{cT}{v\varepsilon^{\alpha-1}}\right)\right]^{(1-\alpha)/\alpha} \quad (11)$$

b) Cas plus général

Les cas plus généraux de la distribution ont été calculés par Garg [Garg 1995]. Nous ne donnons ici que les résultats importants.

On suppose que le taux de passage de la barrière est donné par :

$$\Gamma(\varepsilon) = A \varepsilon^{a+b-1} e^{-B \varepsilon^b}$$

Ici, les variables A, B, a et b dépendent du mécanisme de la transition (thermique ou quantique). Pour le cas simple considéré plus haut, les variables sont :

$$b = 1 - a = \alpha, \quad A = \Gamma_0, \quad B = E_0/kT$$

Le calcul de la valeur moyenne et de la largeur de la distribution donne :

$$\begin{aligned} \bar{H}_{sw} / H_{sw}^0 &= 1 - \left[\frac{\ln(X)}{B} \right]^{1/b} \left[1 + \frac{1}{b \ln(X)} \left[\frac{a}{b} \ln(\ln(X)) + \gamma \right] + \dots \right] & X &= \frac{H_{sw}^0}{dH/dt} \frac{A}{b B^{1+a/b}} \\ \sigma &= \frac{(\ln(X))^{(1-b)/b}}{B^{1/b}} \left[\frac{\pi^2}{6b^2} + \frac{1}{b^3 \ln(X)} \left\{ 2a(\bar{v}^2 + \bar{v} + \pi^2/6) - (b-1)(\pi^2 \bar{v}^2/3 - \psi''(1)) \right\} + \dots \right]^{1/2} \end{aligned}$$

où $\bar{v} = \frac{a}{b} \ln(\ln(X)) + \gamma$ et $\gamma = 0.5772\dots$ est la constante de Euler-Mascheroni et $\psi''(1) = -2.404\dots$ est une valeur particulière de la fonction tétragramma.

Comme la différence entre ce résultat "exact" et les formules (10) et (11) n'est pas significatif pour nos mesures nous ne considérerons pas ces résultats plus en détail.

Annexe 5 : Particules élaborées par lithographie électronique

Cette annexe présente la suite du paragraphe III.3 sur les particules de Co nanocristallisé. Nous mettons en évidence l'importance du type de matériau et de cristallisation de la particule. La taille, la forme et la fabrication sont similaires à celles des particules de Co nanocristallisé.

Annexe 5.1 : Particules de Co polycristallisé

Dans l'étude qui suit, nous mettons en évidence l'importance du type de cristallisation de la particule. Avec les particules de Co polycristallisé, nous avons observé des différences de comportement importantes par rapport à celles de Co nanocristallisé. Ce sont essentiellement ces différences que nous présentons maintenant.

a) Matériau

De même que pour les particules de Co nanocristallisé, le dépôt magnétique du Co polycristallisé a été effectué au laboratoire Louis Néel par Luc Thomas. Il a utilisé une autre pulvérisation cathodique que celle pour l'élaboration de Co nanocristallisé. La température du substrat pendant le dépôt était d'environ 70 K. L'analyse par microscopie électronique n'a montré aucune trace d'impuretés dans ces couches. L'étude par TEM a mis en évidence une structure polycristallisée avec des grains d'une taille allant jusqu'à 100 nm, i.e. les grains ont une taille du même ordre de grandeur que les particules élaborées à partir de ces couches. Le champ coercitif de ces couches est d'environ 100 mT à 4 K (cf. V.2). En conséquence, l'anisotropie des particules élaborées à partir de ces couches avec la technique de "lift-off" est donnée par l'anisotropie de forme et l'anisotropie cristalline.

Ces particules sont probablement composées d'un ou plusieurs grands cristaux, entourés de très petits cristaux. Les mesures des cycles d'hystérésis ont montré que le retournement de l'aimantation se fait par un grand saut accompagné par de petits sauts qui ont lieu soit avant soit après le grand saut. Les cycles d'hystérésis de ces particules sont généralement du type B. Par la suite, nous présentons des mesures de dynamique de retournement de quelques particules de différentes épaisseurs (10, 20, 30 et 40 nm).

b) Mesures des champs de retournement d'aimantation

Les figures A.5.1.1 - 5 montrent quelques résultats des mesures du champ de retournement de l'aimantation et de sa distribution pour des particules de Co polycristallisé avec une épaisseur d'environ 10, 20, 30 et 40 nm. En comparant ces mesures, on peut remarquer plusieurs choses :

1. Pour des particules *a priori* identiques, le champ de retournement peut être très différent. Par exemple, pour les particules de la figure A.5.1.1 les champs de retournement sont d'environ 60 ou 100 mT. Ceci est probablement dû au fait que l'anisotropie cristalline peut s'ajouter à l'anisotropie de forme ou la réduire.

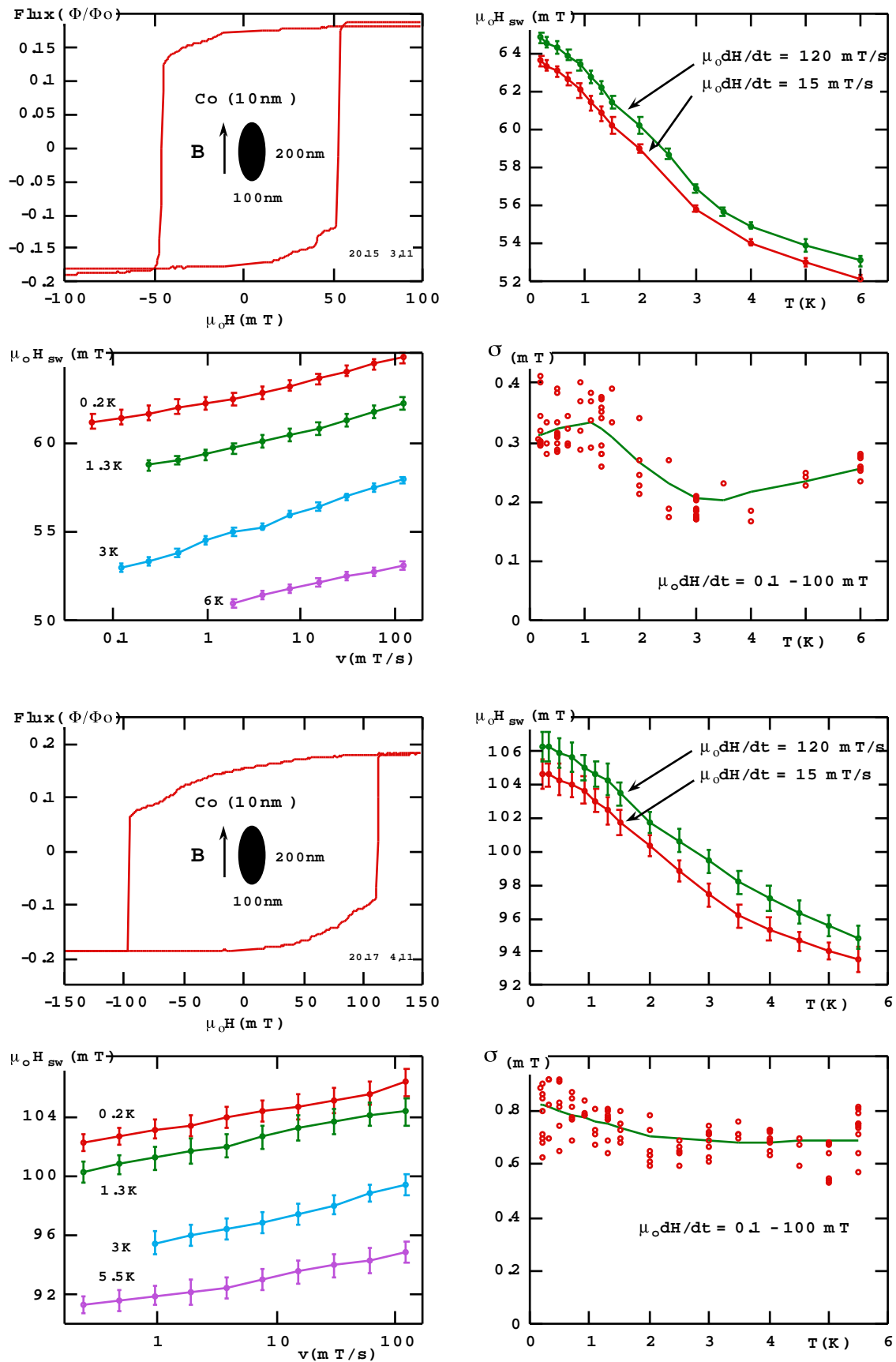
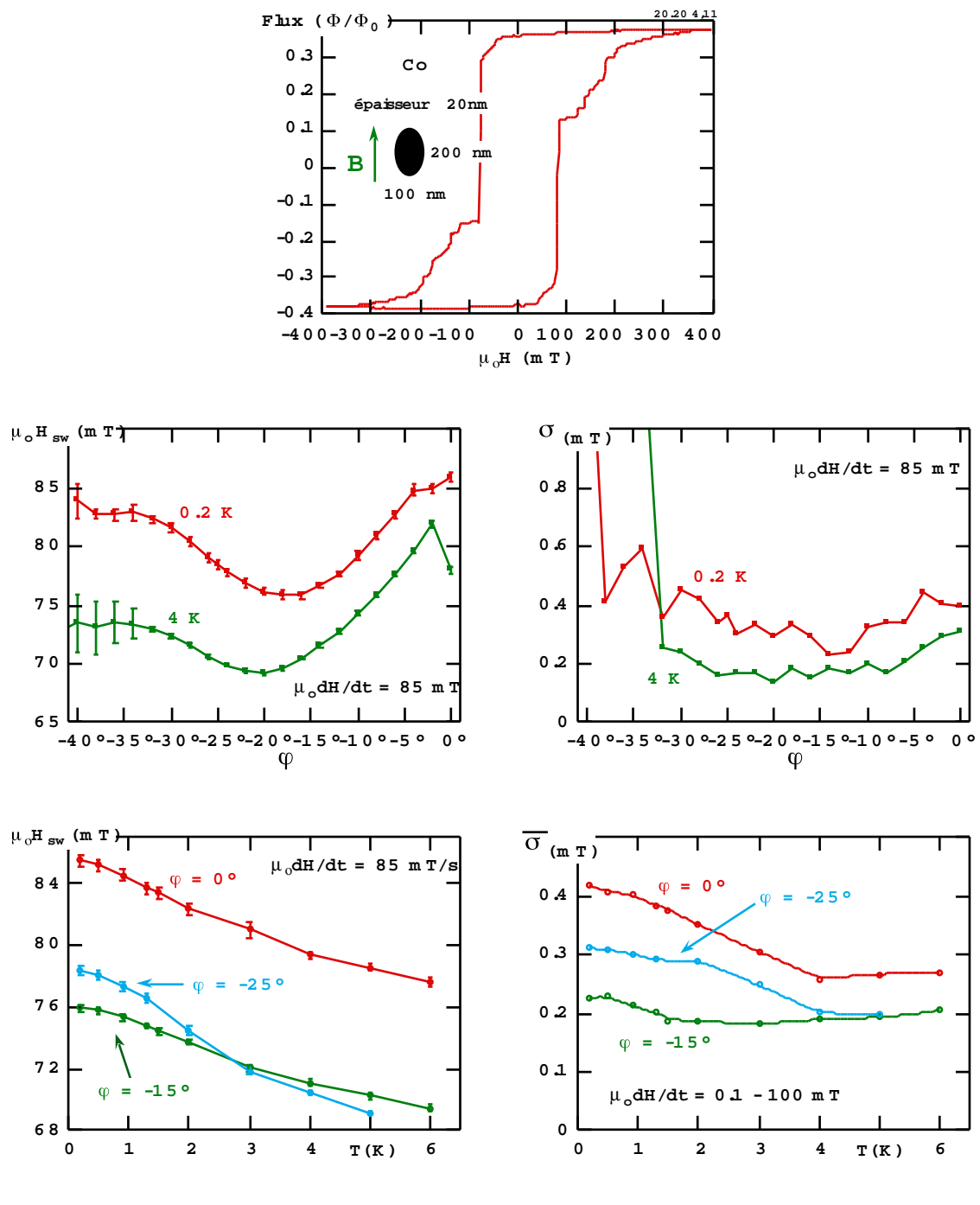


Fig. A.5.1.1 : Quelques résultats des mesures du champ de retournement de l'aimantation et de sa distribution de deux particules de Co polycristallisé avec une épaisseur d'environ 10 nm. Les barres représentent la largeur σ .



angle	E_0/k_B (K)	$\sqrt[3]{V}$ (nm)
0°	4600	8
-15°	6200	9
-25°	1100	5

Fig. A.5.1.2 : Quelques résultats de la dépendance angulaire et thermique du champ de retournement de l'aimantation et de sa distribution pour une particule de Co polycristallisé avec une épaisseur d'environ 20 nm. Le tableau montre quelques valeurs numériques des paramètres de l'équation 5 du paragraphe I.4 pour cette particule. On voit que le volume d'activation V dépend fortement de l'angle du champ appliqué.

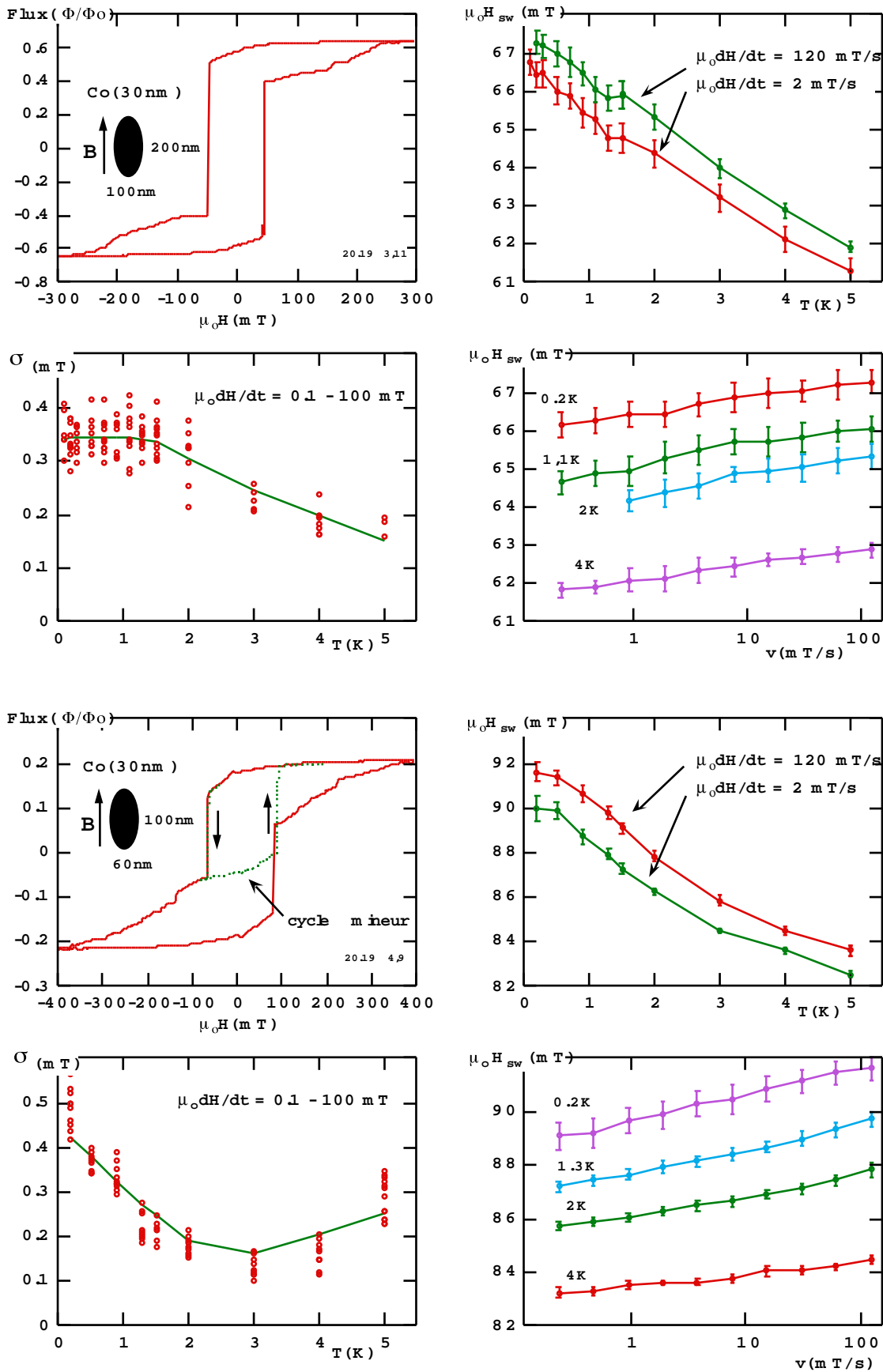


Fig. A.5.1.3 : Quelques résultats des mesures du champ de retournement de l'aimantation et sa distribution de deux particules de Co polycristallisé avec une épaisseur d'environ 30 nm.

2. La dépendance angulaire du champ de retournement du grand saut est bien différente de celle des modèles simples. Par exemple, pour la particule de la figure A.5.1.2, la dépendance angulaire du champ de retournement et de sa largeur σ montre un minimum dans l'intervalle de -20° à -15° et une augmentation rapide de H_{SW} pour les angles inférieurs et supérieurs. Pour les angles supérieurs à 0° et inférieurs à -40° , H_{SW} est beaucoup plus faible. De même, la dépendance thermique de H_{SW} et de σ varie de façon significative avec l'angle du champ appliqué.

La particule de la figure A.5.1.2 est probablement composée d'un grain important avec une anisotropie cristalline dans une direction telle que la somme de l'anisotropie cristalline et de l'anisotropie de forme est approximativement dans la direction -20° . De plus, ce grain est probablement entouré de petits grains avec des directions d'anisotropie différentes entraînant des petits sauts d'aimantation après le grand saut.

Un autre exemple de la dépendance angulaire de H_{SW} et σ est présenté dans les figures A.5.1.4 - 5.

3. Les dépendances thermiques de H_{SW} et σ peuvent être très différentes d'une particule à l'autre ; il faut aussi noter qu'elles varient pour des angles différents. Ceci est montré, par exemple, dans la figure A.5.1.2 pour trois angles du champ appliqué.

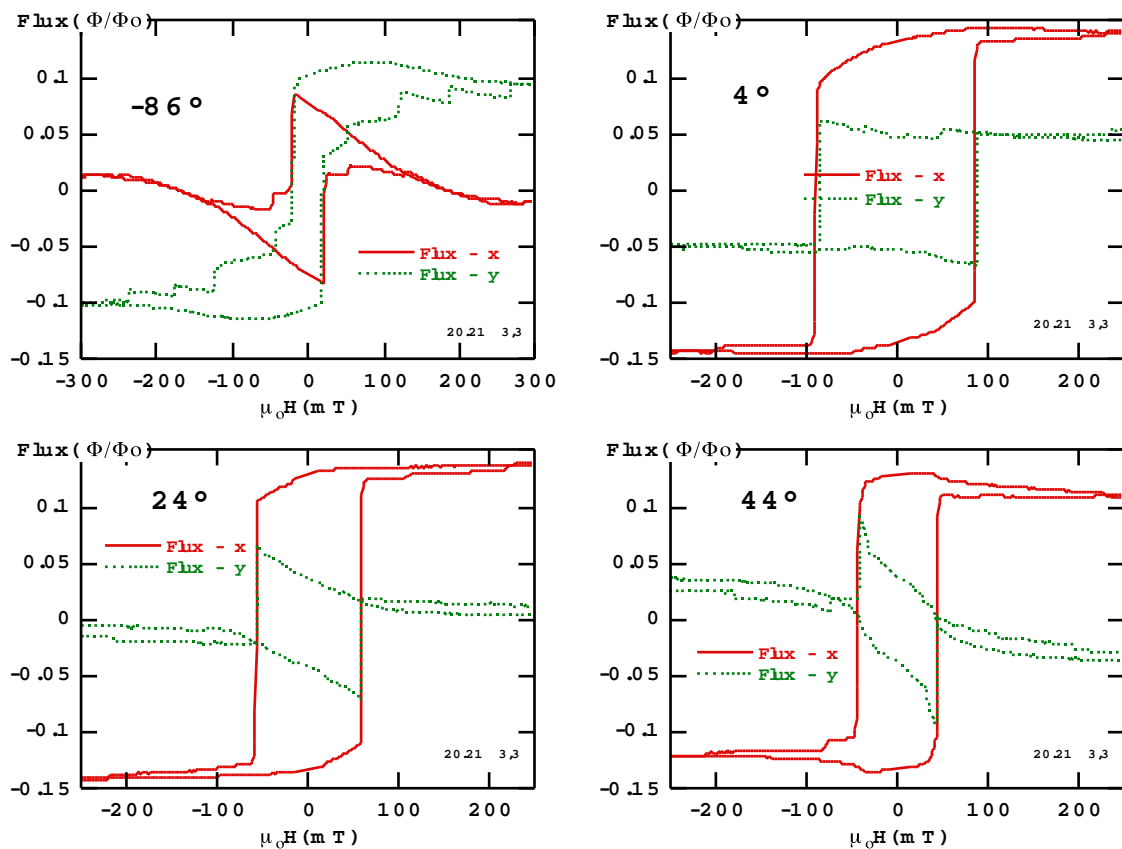


Fig. A.5.1.4 : Dépendance angulaire des cycles d'hystérésis pour une particule de Co polycristallisé avec une épaisseur de 40 nm. Les variations du flux sont enregistrées par deux SQUID juxtaposés (cf. II.2.6). Les lignes continues et en pointillé sont respectivement les composantes x et y.

c) Mesures des champs de retournement d'une particule à l'aide de deux SQUID

Nous avons appliqué la technique des SQUID doubles pour étudier ces particules. Cette technique permet de mesurer simultanément les deux composantes coplanaires de l'aimantation, M_x et M_y . Dans la figure A.5.1.4, nous présentons quelques cycles d'hystérésis. Ces mesures montrent bien que le retournement de l'aimantation est dominé par un grand saut d'aimantation qui est suivi par de petits sauts.

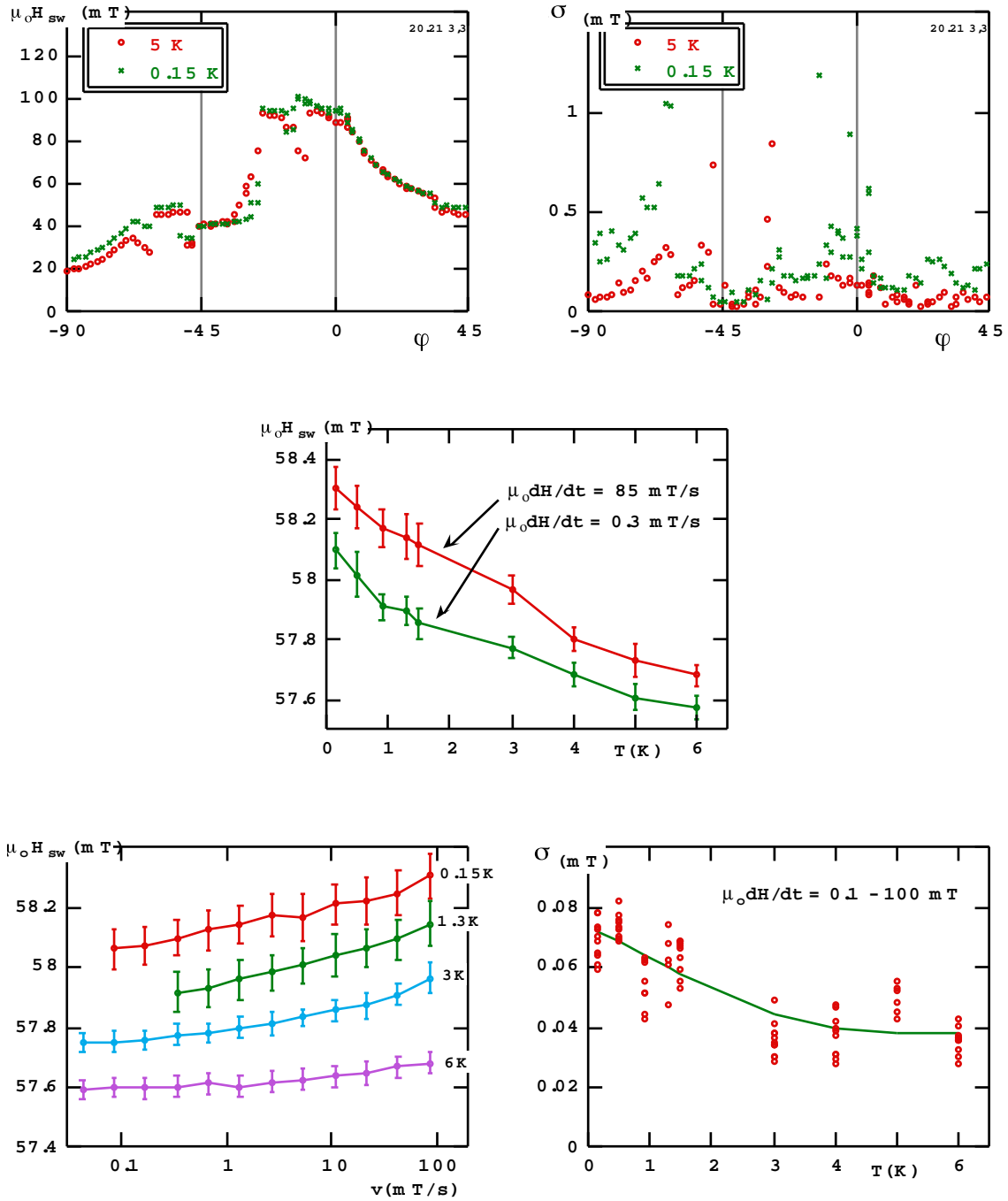


Fig. A.5.1.5 : Quelques résultats des mesures du champ de retournement de l'aimantation et sa distribution pour une particule de Co polycristallisé avec une épaisseur d'environ 40 nm. Des cycles hystérésis de cette particule sont montrés dans la figure A.5.1.4.

d) Variation du volume d'activation en fonction de l'épaisseur de la particule

Nous avons ajusté le modèle de Kurkijärvi aux mesures de $H_{SW}(T,v)$. L'ajustement permet d'obtenir différents paramètres dont E_0 , à partir duquel on peut calculer un ordre de grandeur du volume d'activation V dans lequel le retournement est initié. La figure A.5.1.6 montre V en fonction de l'épaisseur de la particule. Malgré la dispersion des valeurs, on peut observer que V augmente avec l'épaisseur de la particule. On peut imaginer que plus la particule est épaisse plus grands sont les cristaux dans la particule. Le volume d'activation est donc aussi plus grand.

Le volume d'activation dépend aussi fortement de l'angle du champ appliqué (figure A.5.1.2).

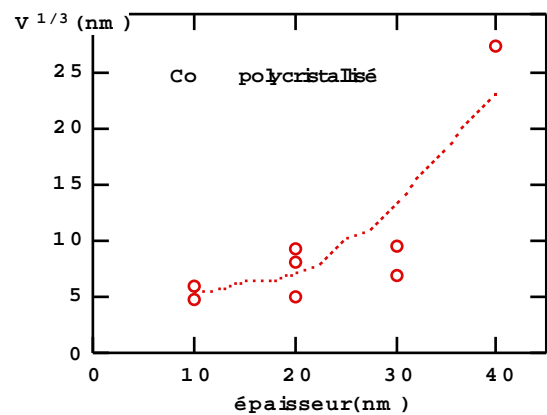


Fig. A.5.1.6 : Volume d'activation V , dans lequel le retournement est initié, en fonction de l'épaisseur de la particule.

e) Conclusion

Les particules de Co polycristallisé ont une anisotropie cristalline non négligeable. Cette anisotropie est orientée au hasard par rapport à l'anisotropie de forme. Par conséquent la dépendance angulaire du champ moyen de retournement et la largeur de la distribution H_{SW} peuvent être très compliquées. L'ajustement du modèle de Kurkijärvi est possible et donne un volume d'activation, dans lequel le retournement est initié, plus petit que pour une particule nanocristallisée (cf. III.3).

Annexe 5.2 : Particules de Co nanocristallisé poreux

Avec ces particules de Co nanocristallisé poreux, nous avons voulu observer les différences induites par un troisième type de structure caractérisé par un grand nombre de défauts sur la surface et dans le volume des particules.

Les dépôts de Co nanocristallisé poreux ont été effectués par l'équipe du Département de Physique des Matériaux de Lyon. Il s'agit de dépôts d'agrégats de 3 à 6 nm sur une épaisseur bien supérieure à l'épaisseur de percolation (> 2 nm) (cf. III.5). La densité de dépôt est de 20 à 30 % inférieure à celle d'une couche de Co mince. On peut imaginer la couche ressemblant à une éponge. Les agrégats ont une anisotropie cristalline assez importante mais avec une orientation quelconque. On peut donc considérer ces particules de Co nanocristallisé poreux comme des particules avec un grand nombre de défauts sur la surface et dans le volume des particules.

Les cycles d'hystérésis de ces particules sont généralement du type B et C, i.e. les agrégats sont magnétiquement bien couplés et forment des domaines magnétiques bien supérieurs à la taille des agrégats. Dans les figures A.5.2.1-2, nous présentons l'étude du retournement de l'aimantation de deux particules avec des épaisseurs de 5 et 20 nm. Il est intéressant de comparer ces mesures avec celles effectuées sur les particules de Co nanocristallisé (cf. III.3). Nous relevons les points suivants intéressants :

1. La dépendance thermique du champ de retournement est du même ordre de grandeur que celle des particules de Co nanocristallisé, i.e. comprise entre 1 à 2 mT/K.

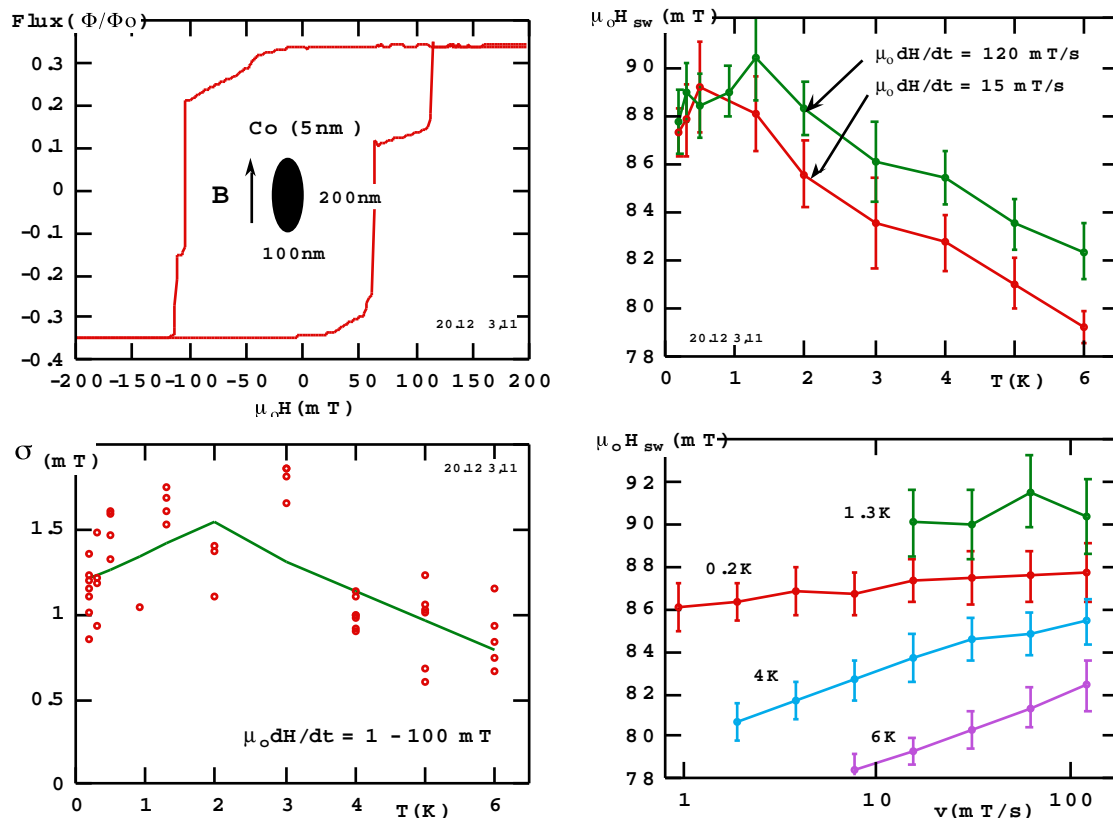


Fig. A.5.2.1 : Quelques résultats de la mesure du champ de retournement de l'aimantation et sa distribution pour une particule de Co nanocristallisé poreux avec une épaisseur d'environ 5 nm. Les barres indiquent σ .

2. La dépendance angulaire du saut d'aimantation est faible sauf pour les angles proches de 90° (figure A.5.2.2a).

3. La largeur σ de la distribution du champ de retournement de ces particules est bien plus grande que celle des particules nanocristallisées (cf. III.3), en effet il faut préciser que les deux exemples présentés ci-dessous ont une largeur σ très faible par rapport à celle des autres particules de Co nanocristallisé poreux non présentées ici mais que nous avons mesurées (σ varie entre 1 et 5 mT).

4. Bien que la largeur σ soit importante, la probabilité de retournement est proche d'une exponentielle (fig. A.5.2.2c).

5. L'ajustement du modèle de Kurkijärvi (cf. I.4) aux mesures de $H_{SW}(T, \nu)$ n'est pas possible ce qui est dû au fait que la variation de $H_{SW}(\nu)$ est trop important par rapport à celle de $H_{SW}(T)$.

Il est intéressant de discuter le fait que, bien que la largeur σ soit importante, la probabilité de retournement est proche d'une exponentielle. Nous proposons deux mécanismes qui pourraient expliquer le comportement observé.

Premièrement on peut imaginer que ce type de particules possède plusieurs centres de nucléation indépendants qui sont énergétiquement très proches. On suppose que chaque centre de nucléation a une probabilité Γ_i de déclencher le retournement de l'aimantation de la particule, qui est donnée par la loi Arrhenius :

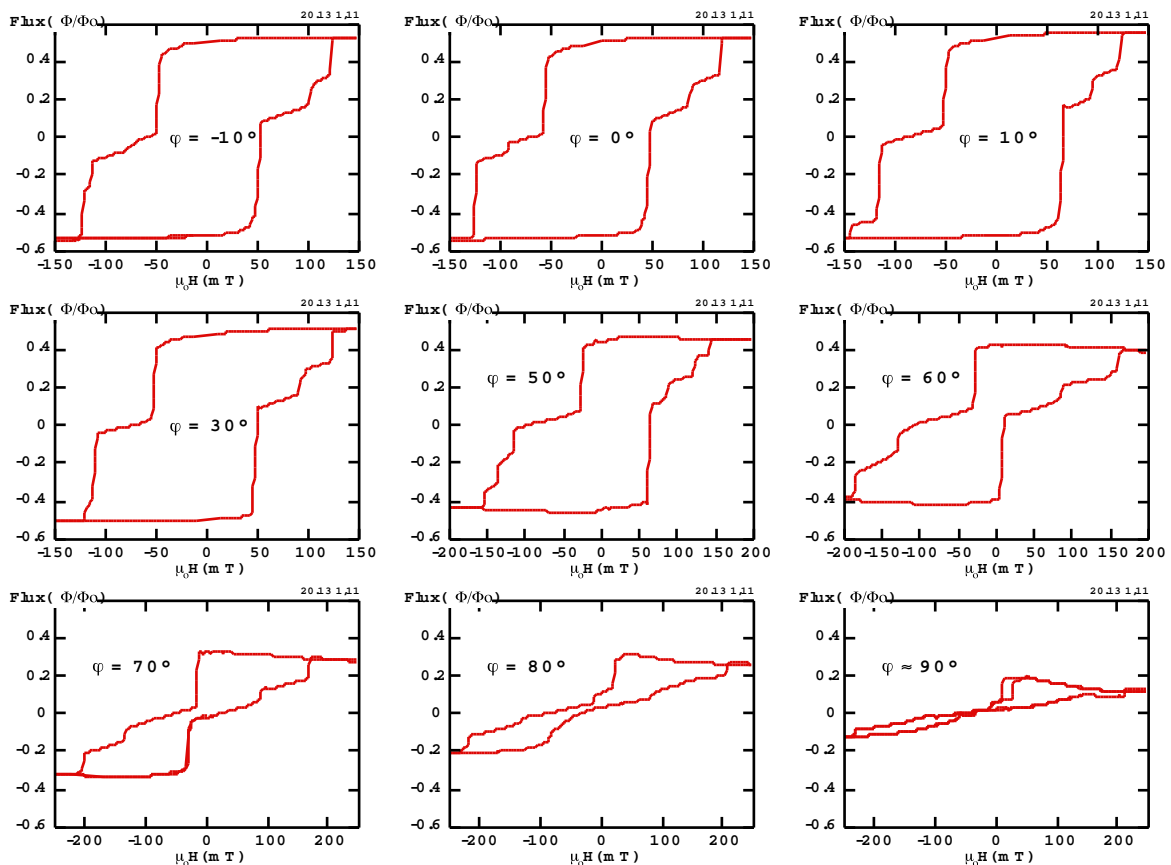


Fig. A.5.2.2a : Dépendance angulaire du cycle d'hystérésis pour une particule (200 nm x 100 nm) de Co nanocristallisé poreux avec une épaisseur d'environ 20 nm .

$$\Gamma_i = \Gamma_i^0 e^{-E_i/kT}$$

Dans ce cas, la probabilité que l'aimantation de la particule ne se soit pas encore retournée est donnée par :

$$dP = -P dt \sum_i \Gamma_i = -P dt \Gamma_{total} \Rightarrow P(t) = e^{-\Gamma_{total} t}$$

i.e. la probabilité reste exponentielle. Par contre, plusieurs centres de nucléation indépendants entraînent une augmentation de la largeur σ .

L'autre mécanisme qui pourrait être à l'origine de l'augmentation de β est le mécanisme de la relaxation de la barrière d'énergie déjà discuté en détail dans le paragraphe III.3.3e.

En conclusion, la structure différente car poreuse de ces particules de Co nanocristallisé a pour conséquences essentielles une plus grande largeur σ et une grande variation de $H_{sw}(v)$ ne permettant pas l'ajustement du modèle de Kurkijärvi. Ces deux observations se compensent et par conséquent la probabilité de retournement est proche d'une exponentielle. Il semblerait que l'existence de plusieurs centres de nucléation indépendants soit à l'origine de ces observations.

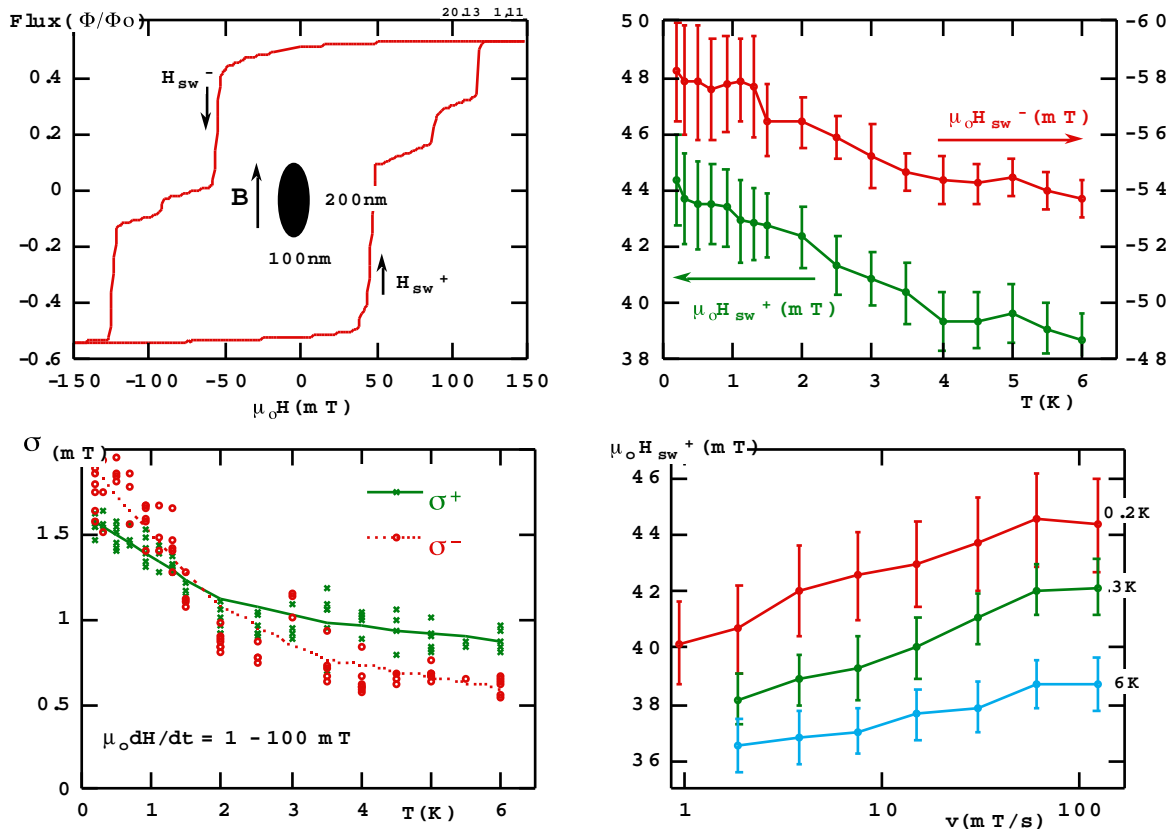


Fig. A.5.2.2b : Quelques résultats des mesures du champ de retournement de l'aimantation et de sa distribution pour une particule de Co nanocristallisé poreux avec une épaisseur d'environ 20 nm.

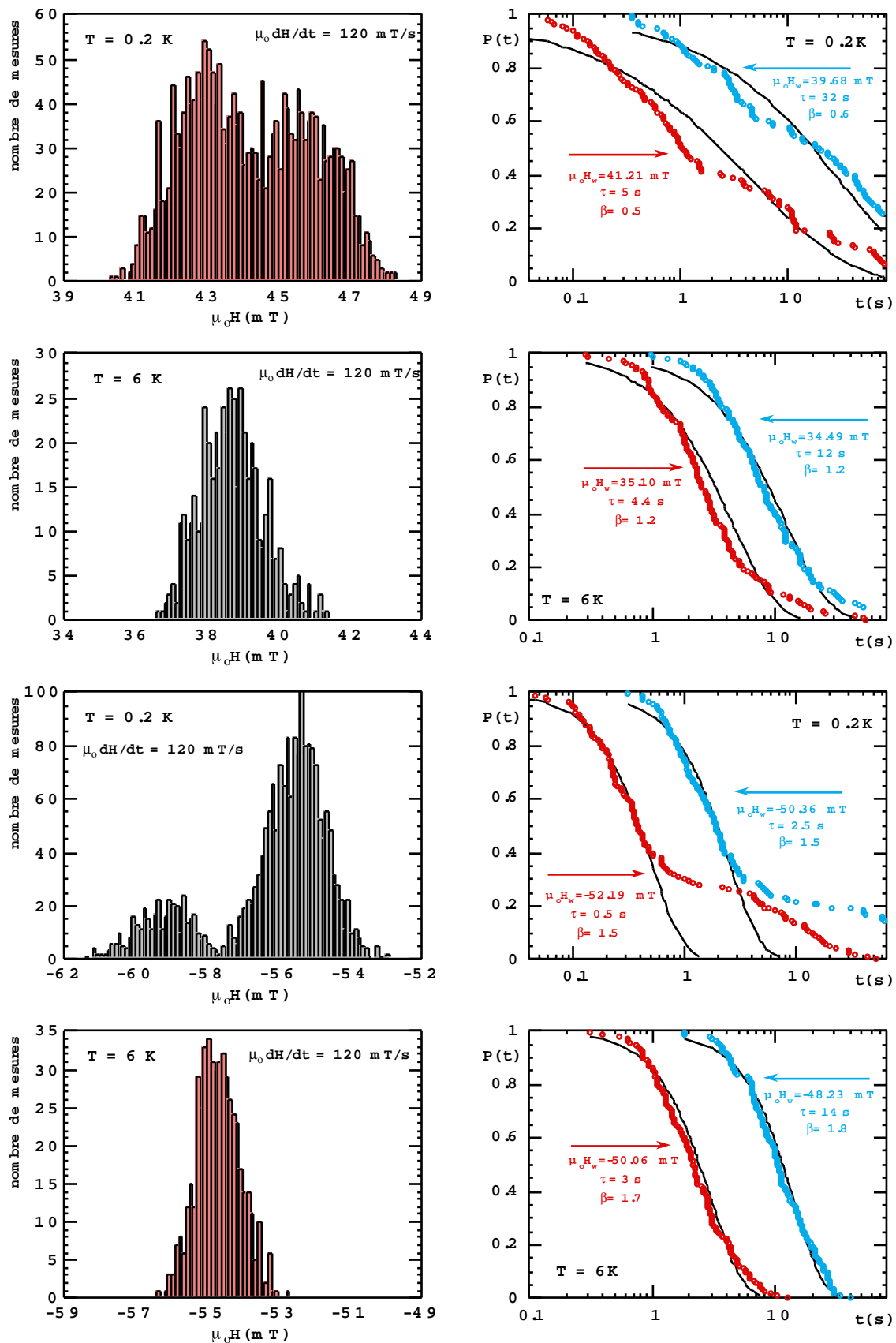


Fig. A.5.2.2c : Probabilité de non retournement de l'aimantation en fonction du temps pour différents champs appliqués. Les lignes continues sont ajustées aux données avec une exponentielle étendue. Les paramètres d'ajustement β et τ sont indiqués dans les graphes. La séparation de la distribution des champs de retournement en deux états à basse température est similaire à celle du paragraphe III.3.4.

Annexe 5.3 : Particules de Ni polycristallisé

Après l'étude approfondie des particules de Co, nous avons voulu étudier un autre type de métal avec des particules de Ni polycristallisé.

Le dépôt magnétique du Ni polycristallisé a été effectué à Bagnex au L2M. La technique d'évaporation est basée sur l'effet Joule. Les particules sont élaborées par la technique de "lift-off". L'anisotropie des particules est donnée par l'anisotropie de forme et l'anisotropie cristalline.

Nous avons étudié des particules de différentes épaisseurs (10, 20, 30 et 40 nm). Les figures A.5.3.1-6 montrent quelques résultats expérimentaux qui sont très proches des résultats des particules de Co polycristallisé. Les différences essentielles sont les suivantes :

1. Le champ de retournement est de deux à trois fois plus faible que celui des particules de Co polycristallisé.
2. Certaines particules (voir les figures A.5.3.2a-b) ont une dépendance thermique du champ de retournement très faible. Pour d'autres, cette dépendance est comparable à celle des particules de Co polycristallisé (voir les figures A.5.3.3a-c).
3. La largeur σ est plus élevée que celle des particules de Co polycristallisé.
4. L'ajustement du modèle de Kurkijärvi est possible et donne un volume d'activation dans lequel le retournement de l'aimantation est initié de $(15 \pm 4 \text{ nm})^3$, soit un volume plus grand que pour une particule de Co.

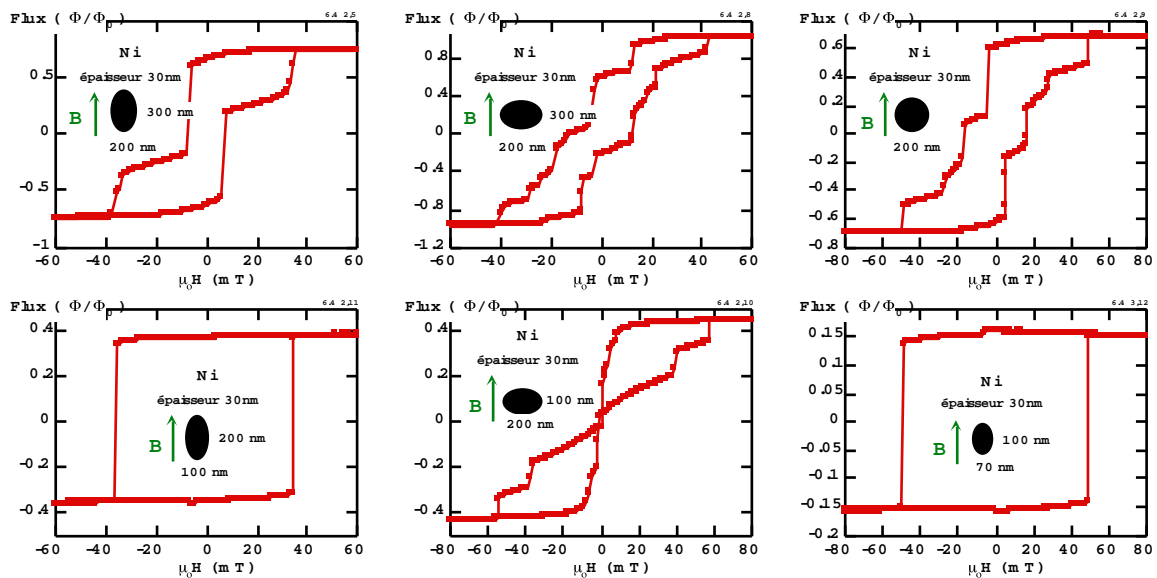


Fig. A.5.3.1 : Quelques cycles d'hystérésis des particules de Ni polycristallisé pour différentes formes et une épaisseur de 30 nm.

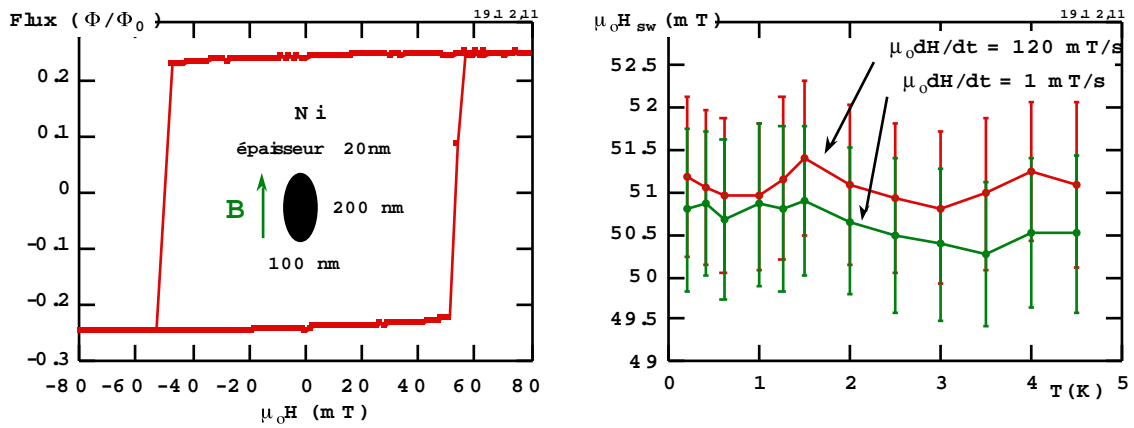


Fig. A.5.3.2a : Cycle d'hystérésis et dépendance thermique du champ de retournement d'une particule de Ni polycristallisé.

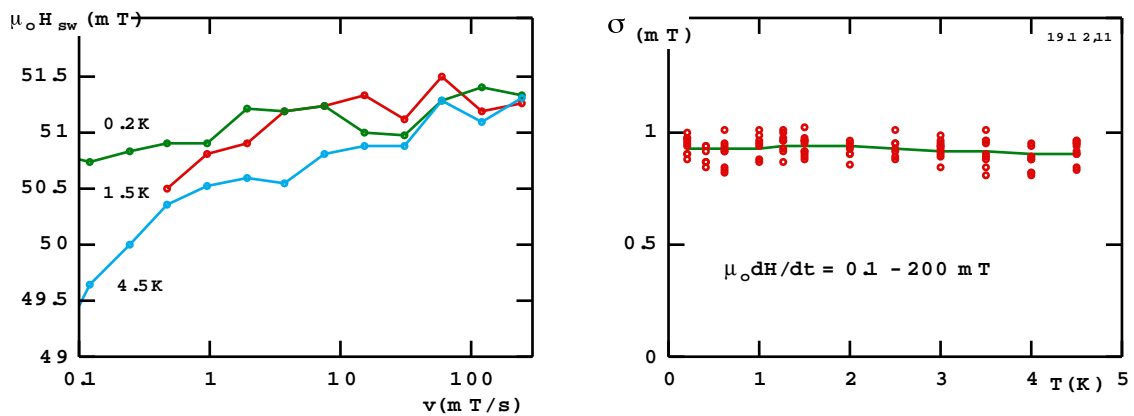


Fig. A.5.3.2b : Champ de retournement en fonction de la vitesse de balayage et dépendance thermique de la largeur σ pour une particule de Ni polycristallisé.

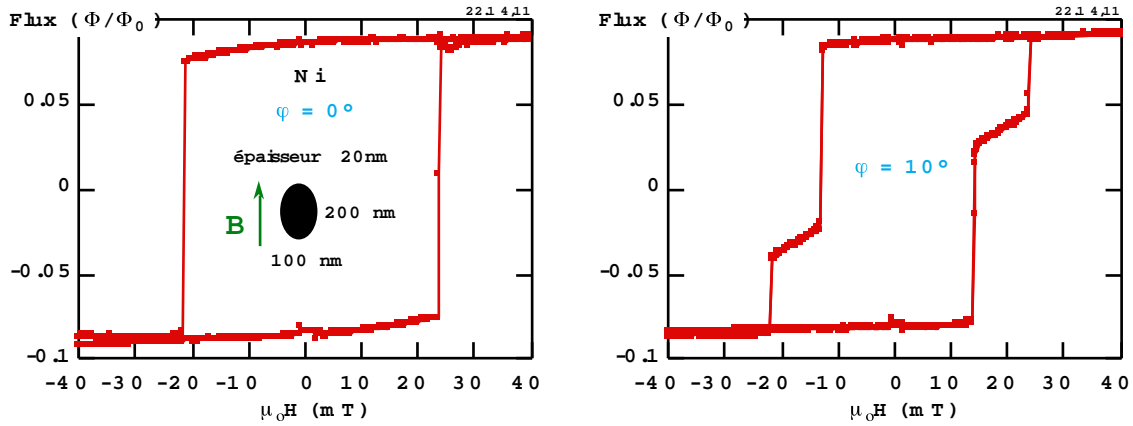


Fig. A.5.3.3a: Cycle d'hystérésis d'une particule de Ni polycristallisé. Le champ est appliqué parallèle et à des angles de 0° et 10° par rapport au grand axe de la particule.

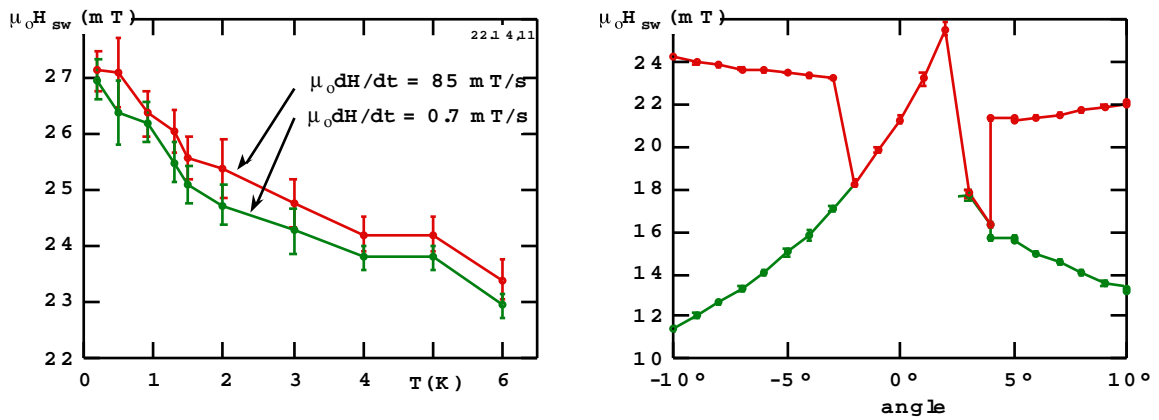


Fig. A.5.3.3b : Dépendances thermique et angulaire du champ de retournement d'une particule de Ni polycristallisé. Dans l'intervalle entre -3° et 2°, le cycle d'hystérésis est du type A. Sinon, il est du type B ou C.

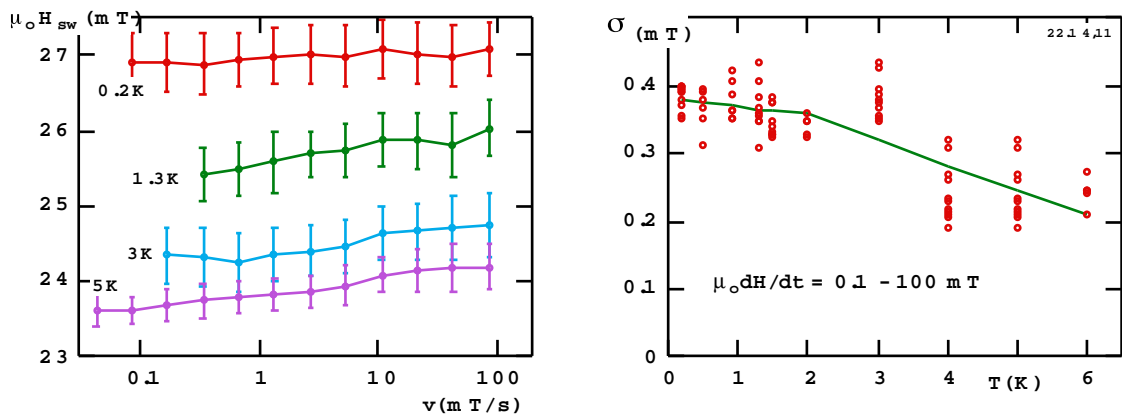


Fig. A.5.3.3c : Champ de retournement en fonction de la vitesse de balayage et dépendance thermique de la largeur σ pour une particule de Ni polycristallisé.

Annexe 5.4 : Particules de Fe nanocristallisé

Après le Co et le Ni, nous nous sommes intéressés à des particules de Fe nanocristallisé.

Les dépôts magnétiques du Fe polycristallisé ont été effectués par S. Mangin et G. Marschal au laboratoire LMPSM à Nancy. La technique d'évaporation est basée sur l'effet Joule. Les particules sont élaborées par la technique de "lift-off". L'anisotropie des particules est donnée essentiellement par l'anisotropie de forme.

La figure A.5.4.1 montre quelques cycles d'hystérésis pour différentes formes des particules. Tous les cycles d'hystérésis mesurés sont du type C. La structure en domaines est probablement proche de celle des particules de Co nanocristallisé du paragraphe III.3.3. La différence essentielle est que la largeur σ est de 10 à 30 fois plus grande que celle des particules de Co nanocristallisé. La figure A.5.4.2 montre un exemple des mesures de $H_{SW}(T,v)$

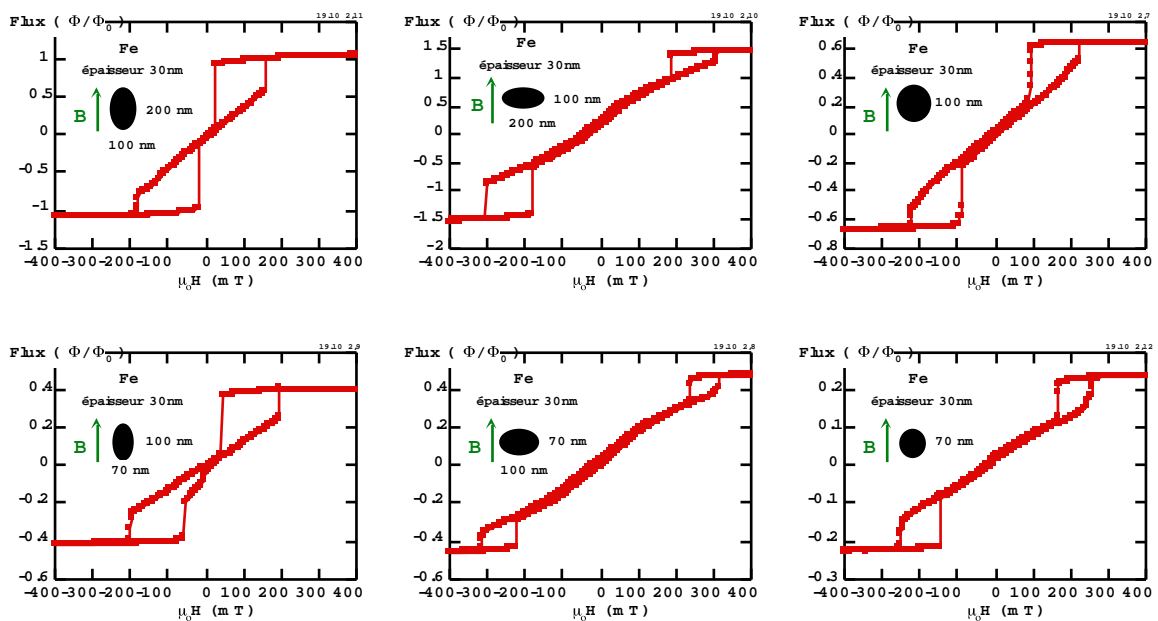


Fig. A.5.4.1 : Cycles d'hystérésis de particules de Fe nanocristallisé.

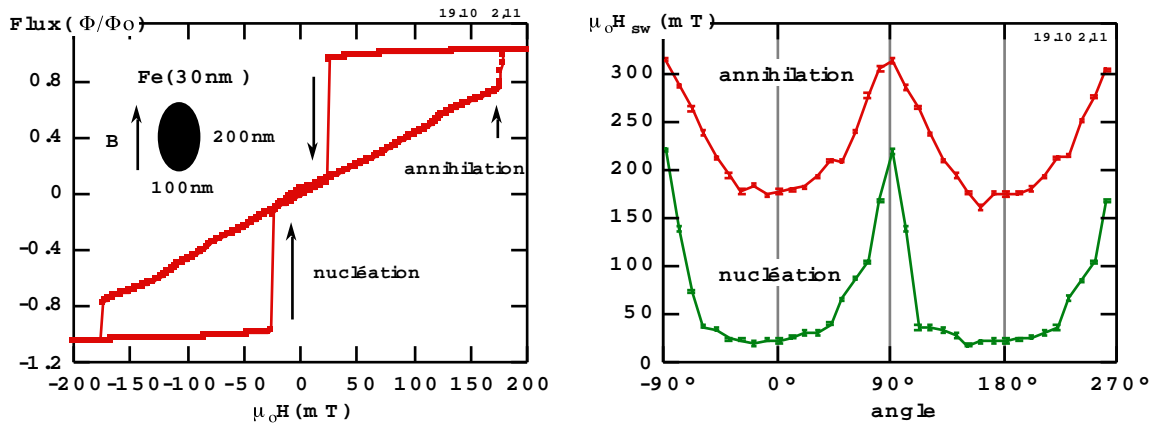


Fig. A.5.4.2a : Cycle d'hystérésis et dépendance angulaire des champs de nucléation et d'annihilation d'une particule de Fe nanocristallisé. Le champ est appliqué parallèle au grand axe de la particule. La structure en domaine est analogue à celle de la particule de Co du paragraphe III.3.3.

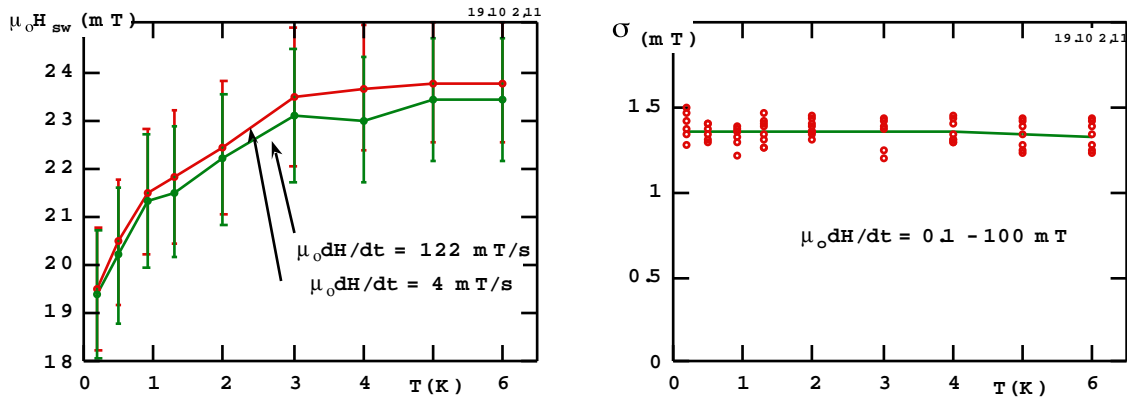


Fig. A.5.4.2b : Dépendance thermique du champ de retournement et largeur de la distribution des H_{sw} . σ est 20 fois plus grand que celui de la particule de Co du paragraphe III.3.3.

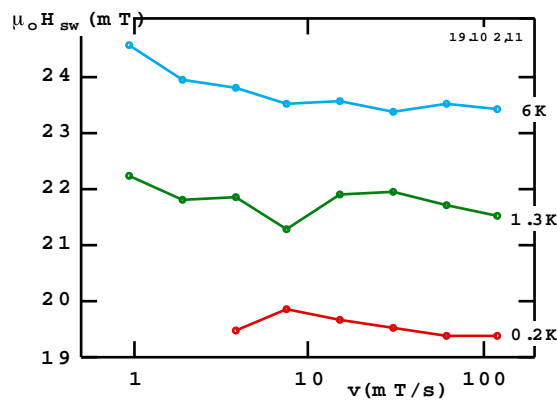


Fig. A.5.4.2c : Champ de retournement en fonction de la vitesse de balayage. σ est de 1.4 mT.

Annexe 5.5 : Particules de Fe épitaxié

Dans les paragraphes précédants, nous avons vu la grande influence des défauts sur le retournement de l'aimantation. En s'intéressant à un nouveau type de matériau, nous voulions éliminer au maximum ces défauts. Nous avons donc choisi d'étudier des particules gravées à partir d'une couche épitaxiée.

Le premier échantillon était une couche de Fe sur MgO (1 0 0), élaborée par Marty et Diény au DRF du CENG. Cette couche a une anisotropie de surface qui met les moments dans le plan de la couche. Nous avons gravé des particules à partir de cette couche, telles que le long axe des particules était aligné avec la direction de l'anisotropie de surface.

Tous les cycles d'hystérésis mesurés sont du type A, i.e. les particules sont mono-domaines. La figure A.5.5.1 montre plusieurs cycles d'hystérésis et la dépendance angulaire du champ de retournement d'une particule de Fe épitaxié. On remarque que cette dépendance est proche de la rotation uniforme de Stoner-Wohlfarth (cf. I.1).

L'étude de la distribution du champ de retournement a montré une largeur σ de cette distribution très importante, particulièrement pour les angles proches de zéro. Ceci est dû au fait que lorsque nous avons gravé les particules, nous avons créé de nombreux défauts sur leurs bords. Ainsi, bien que les particules possèdent peu de défauts en leur centre, les défauts des bords gouvernent complètement le retournement de l'aimantation : le but souhaité avec de telles particules n'a donc pas été atteint.

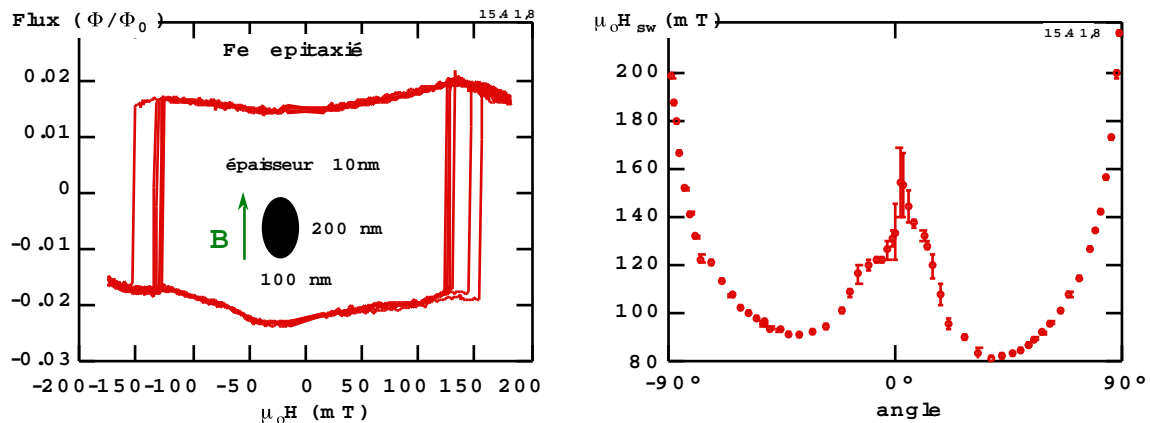


Fig. A.5.5.1 : Plusieurs cycles d'hystérésis d'une particule de Fe épitaxié et dépendance angulaire du champ de retournement.

Annexe 5.6 : Particules de CoZrMoNi amorphe

Le dépôt magnétique du $\text{Co}_{81}\text{Zr}_9\text{Mo}_8\text{Ni}_2$ a été fait au laboratoire LMMM de Meudon par G. Suran en utilisant la technique de pulvérisation cathodique. La température du substrat pendant le dépôt était d'environ 300 K. Le matériau est amorphe. L'intérêt de ce matériau était d'avoir un matériau sans anisotropie cristalline pour que l'anisotropie des particules élaborées soit essentiellement donnée par l'anisotropie de forme.

Nos études ont montré que l'anisotropie est effectivement gouvernée par la forme des particules. Cependant, la dépendance thermique du champ de retournement a montré que le retournement de l'aimantation est très influencé par le mécanisme de nucléation. La largeur de la distribution du champ de retournement est assez importante et comparable à celle des particules de Ni.

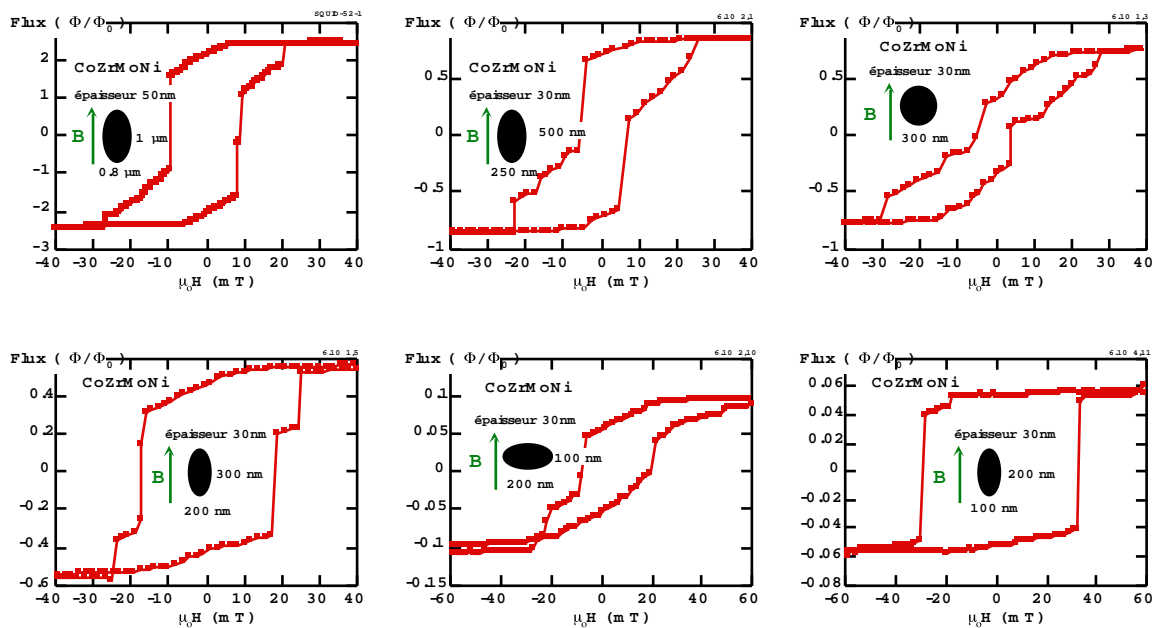


Fig. A.5.6.1 : Quelques cycles d'hystérésis des particules de CoZrMoNi amorphe pour différentes formes et épaisseurs.

Annexe 5.7 : Particules de CoZrTb amorphe

Le dépôt magnétique du $\text{Co}_{89}\text{Zr}_{10}\text{Tb}$ a été fait dans les mêmes conditions que celui du CoZrMoNi. Nous avons remplacé le Mo et le Ni par 1% du Tb, ceci pour augmenter le champ coercitif de la particule. La figure A.5.7.1 montre quelques cycles d'hystérésis pour différentes formes et épaisseurs comprises entre 10 nm et 40 nm. On peut remarquer que les champs coercitifs sont plus élevés que ceux de CoZrMoNi et que le type du cycle d'hystérésis est D, i.e. les cycles d'hystérésis sont composés de beaucoup de sauts d'aimantation non-reproductibles. On peut voir cette non-reproductibilité dans les graphes de la figure A.5.7.1 qui présentent parfois deux cycles d'hystérésis obtenus dans les mêmes conditions.

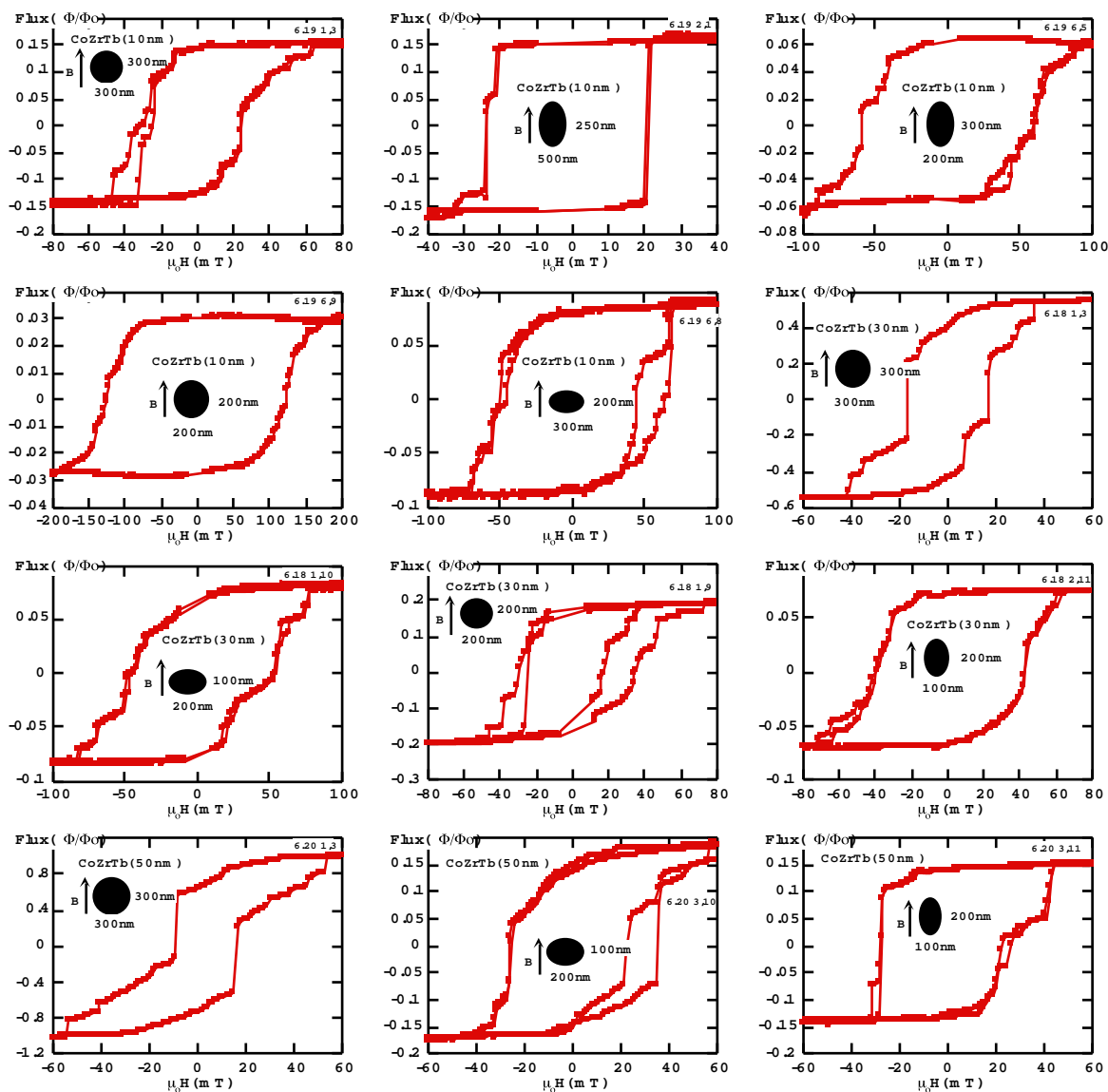


Fig. A.5.7.1 : Quelques cycles d'hystérésis des particules de CoZrTb amorphe pour différentes formes et épaisseurs.

Annexe 5.8 : Particules de TbFe₃ polycristallisé

En utilisant un nouveau matériau composé d'une terre rare, nous avons voulu voir l'influence d'une grande anisotropie cristalline due au Tb.

Le dépôt magnétique du TbFe₃ polycristallisé a été effectué au laboratoire Louis Néel par Luc Thomas en utilisant l'ancienne pulvérisation cathodique. La température du substrat pendant le dépôt était d'environ 80 K. Les particules sont élaborées à partir de ces couches avec la technique de "lift-off".

La figure A.5.8.1 montre quelques cycles d'hystérésis pour différentes formes des particules. Les cycles d'hystérésis sont du type D, i.e. caractérisés par un grand nombre de très petits sauts d'aimantation qui ne sont pas reproductibles. Ceci est dû à l'anisotropie magnétocristalline importante de ce matériau et distribuée au hasard. La longueur de corrélation ferromagnétique est faible (typiquement comprise entre 1 et 10 nm). La figure A.5.8.1 montre bien que les cycles d'hystérésis de ces particules sont relativement indépendants de la forme des particules.

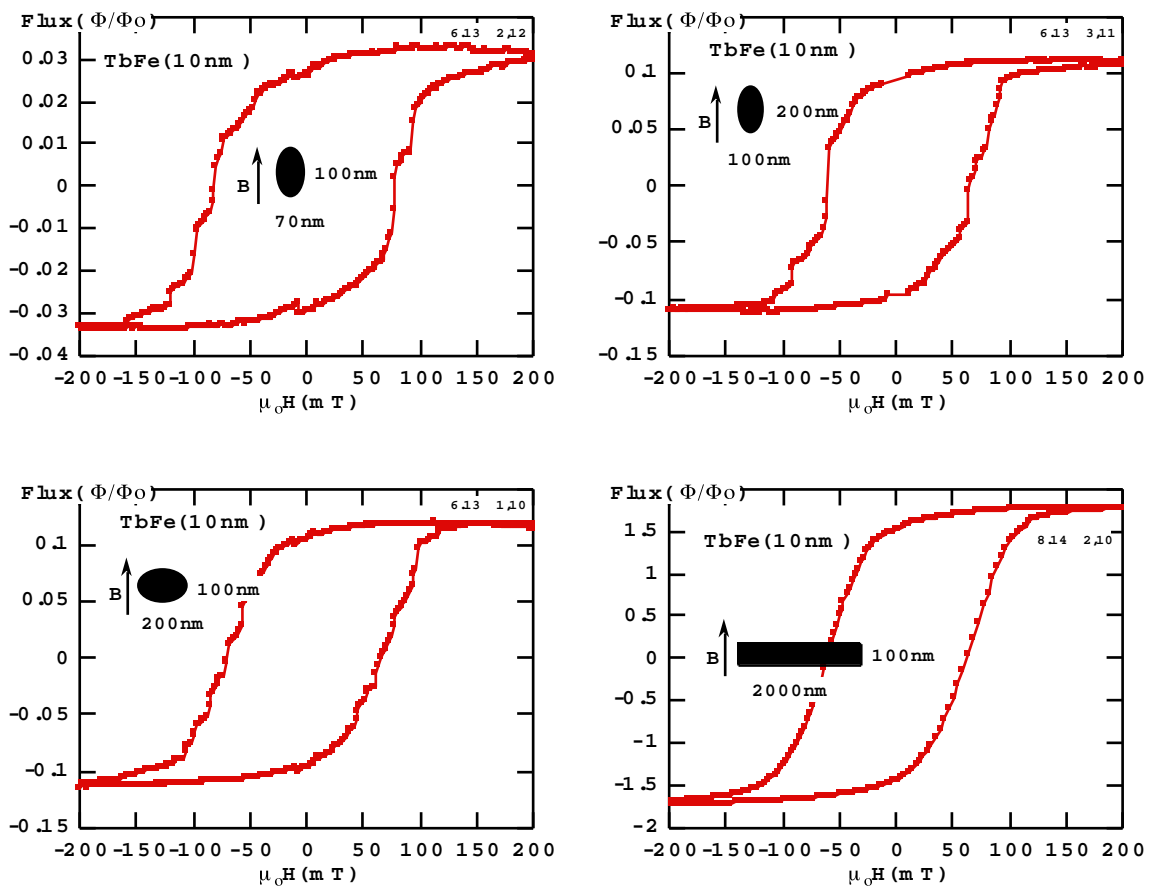


Fig. A.5.8.1 : Quelques cycles d'hystérésis des particules de TbFe polycristallisé pour différentes formes et épaisseurs.

Annexe 6 : Particules monocristallines élaborées par plasma par arc électrique

Dans ce paragraphe, nous présentons quelques résultats préliminaires obtenus sur des particules monocristallines. Les particules ont été élaborées par l'équipe de M. H. Pascard du Laboratoire des Solides Irradiés à l'École Polytechnique, Palaiseau. Cette équipe utilise la technologie de plasma par arc électrique pour fabriquer des nanoparticules et nanofils avec toutes sortes de matériaux. Ces particules sont protégées contre l'oxydation par un tube de carbone. Les différences essentielles entre ces particules et celles des paragraphes précédents sont que :

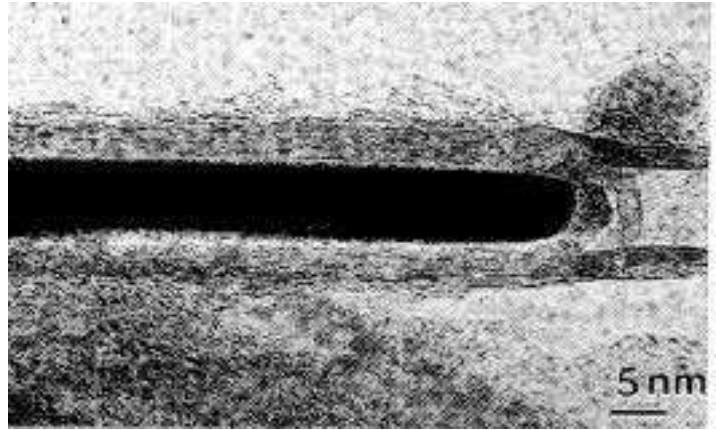


Fig. A.6.1 : Nanofil de Cr monocristallisé et enrobé de graphite [Guerret-Piécourt 1994]. Le diamètre est 5 nm.

- (i) le matériau est monocristallin ;
- (ii) il y a très peu d'impuretés (oxyde) ;
- (iii) la rugosité de surface est au maximum de deux couches atomiques.

La méthode de fabrication par plasma par arc électrique fournit un ensemble de nanoparticules et nanofils des diamètres entre 5 et 100 nm et de longueurs jusqu'au micromètre. En raison de la grande distribution de tailles et de formes, seule l'étude sur une particule isolée peut apporter des informations sur le retournement de l'aimantation. La figure A.6.1 montre un exemple d'un nanofil de Cr monocristallisé.

a) Particule de FeS

La dépendance angulaire du champ de retournement des particules de FeS (cf. figure A.6.2) est en très bon accord avec le modèle de rotation uniforme de Stoner et Wohlfarth (cf. figure A.6.3). La présentation du graphe est celle proposée par Landau pour montrer l'homogénéité d'un système [Landau 1935]. La courbe continue montre un système idéalement homogène, i.e. on a ici le modèle de rotation uniforme de l'aimantation.

Cependant, les mesures de la distribution des champs de retournement ont révélé une largeur très importante (cf. figures A.6.3-4). Ceci est probablement dû au matériau ferrimagnétique imparfait. On peut facilement imaginer des situations de frustration qui varient d'un cycle d'hystérésis à l'autre. Ceci constitue donc une source de désordre qui augmente la largeur σ et est similaire à une couche antiferromagnétique autour d'une particule ferromagnétique (cf. A.7).

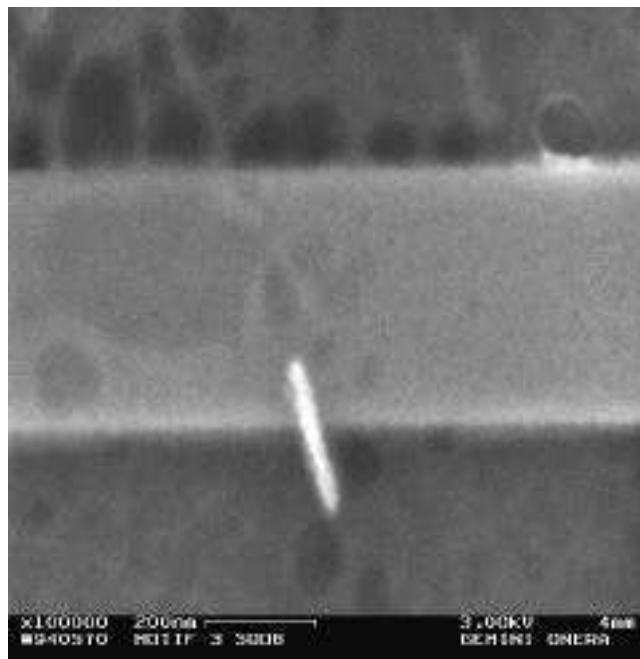


Fig. A.6.2 : Image obtenue par microscopie électronique (D. Boivin, ONERA) montrant le fil de la boucle du SQUID sur lequel un nanofil de FeS est déposé. La longueur du fil est 200 nm et le diamètre est 20 nm.

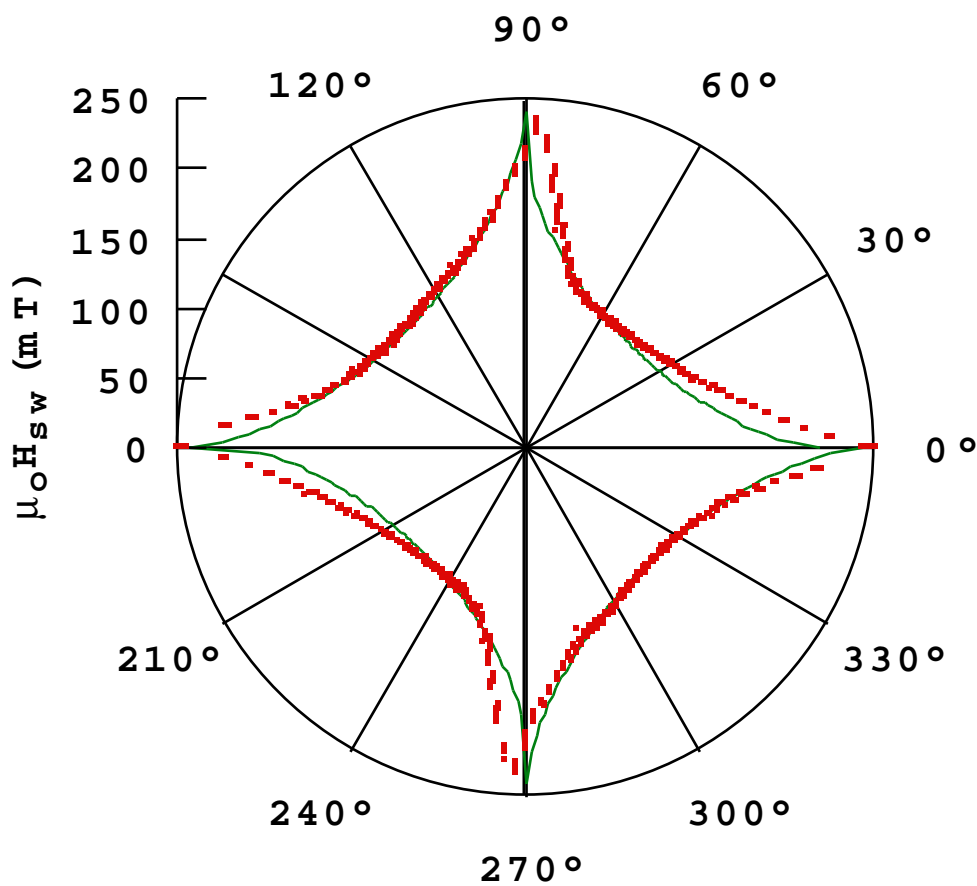


Fig. A.6.3 : Dépendance angulaire du champ de retournement pour le nanofil de FeS présenté dans la figure A.6.2. La longueur de chaque point représente la largeur de la distribution du champ de retournement. La ligne continue est la prédiction de Stoner et Wohlfarth (rotation uniforme).

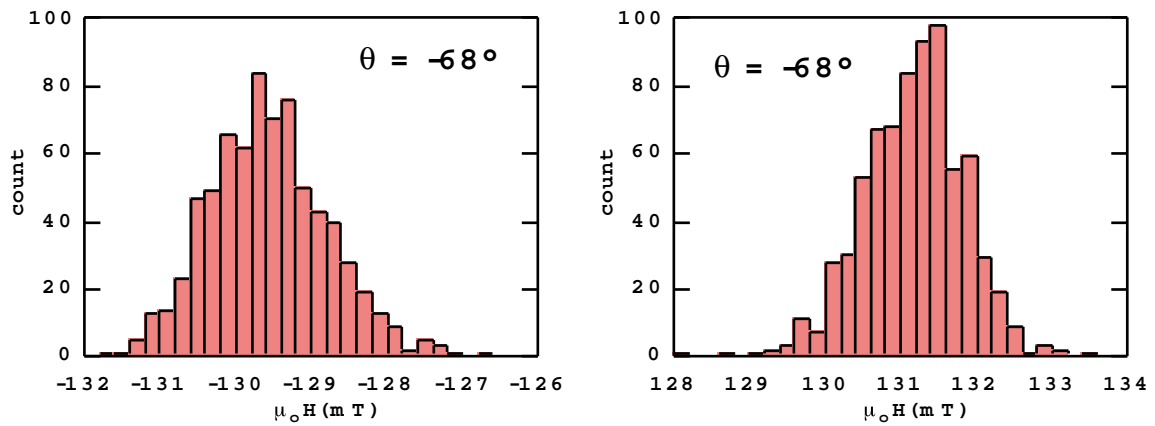


Fig. A.6.4 : Histogrammes du champ de retournement pour le nanofil de FeS.

b) Nanoparticule de Co

Dans ce paragraphe, nous présentons quelques mesures d'une nanoparticule de Co qui est montrée dans la figure A.6.5a-b. La figure A.6.6 montre un cycle d'hystérésis mesuré à l'angle $\theta = -12^\circ$. Les différents sauts de flux mesurés sont dus aux nanoparticules près du micropont (cf. figure A.6.5b). Par la suite, nous présentons seulement les résultats du plus grand saut correspondant au retournement de la "grosse" nanoparticule située sur le micropont (cf. figure A.6.5b).

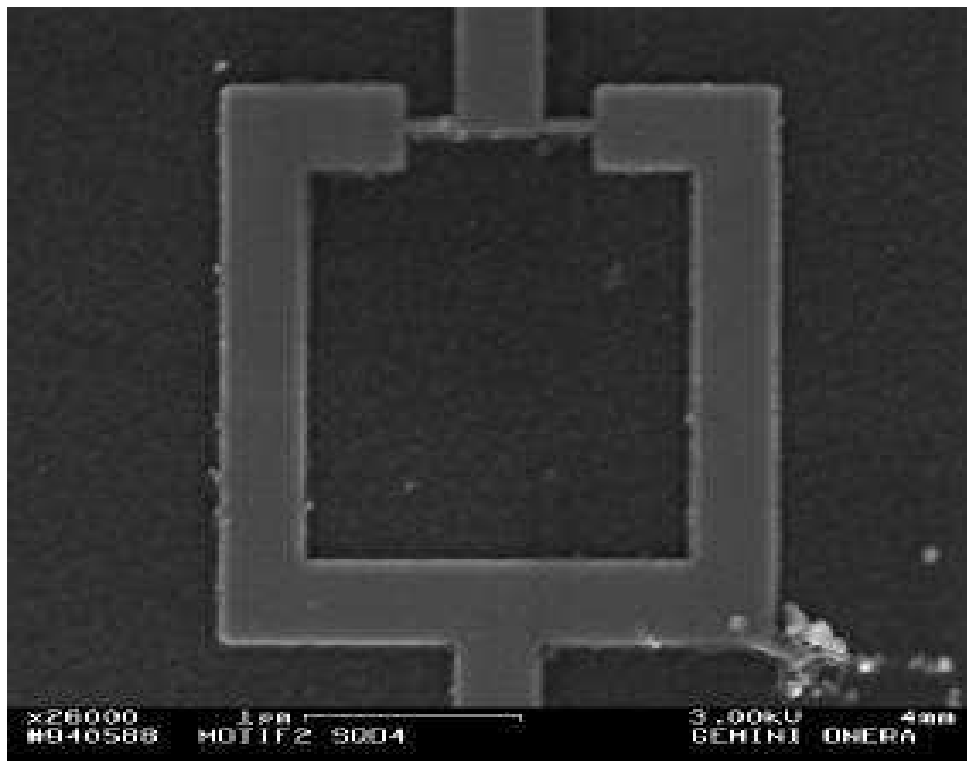


Fig. A.6.5 : (a) Image obtenue par microscopie électronique (D. Boivin, ONERA) montrant un SQUID ($2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$) sur lequel des nanoparticules de Co sont déposées.

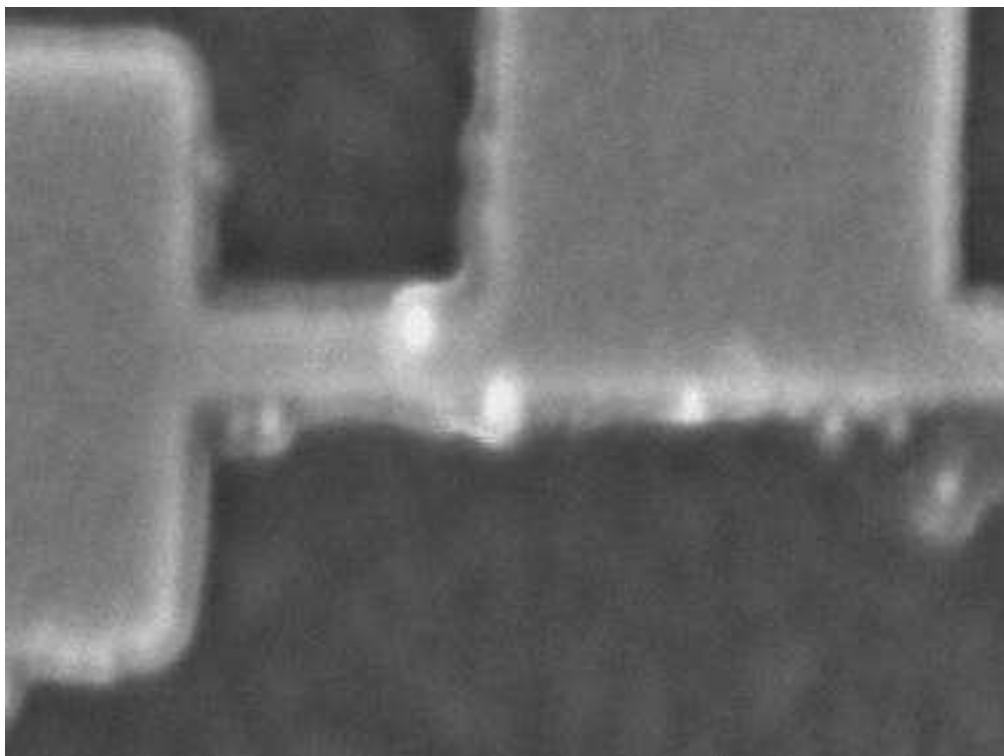


Fig. A.6.5 : (b) Agrandissement sur le micropont du SQUID. On voit plusieurs nanoparticules de Co qui sont encapsulées par du graphite. Les études présentées par la suite concerne la "grosse" particule sur le micropont. Sa taille est d'environ 20 nm.

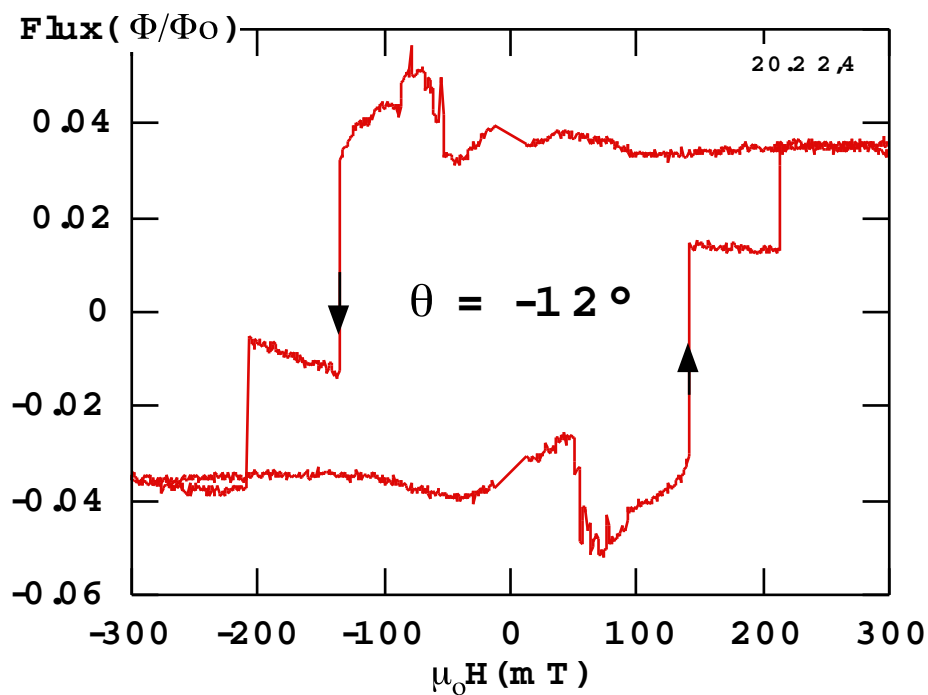


Fig. A.6.6 : Cycle d'hystérésis pour l'angle $\theta = -12^\circ$ du champ appliqué correspondant aux nanoparticules montrées dans la figure A.6.5a-b. Les petits sauts avant les deux grands sauts sont dus aux autres particules moins bien couplées avec le SQUID.

La dépendance angulaire du champ de retournement de cette particule est présentée dans la figure A.6.7. La courbe est complètement continue et presque symétrique mettant en évidence une haute qualité de la surface et de la forme. Cette dépendance angulaire de H_{SW} est probablement due à deux axes cristallins.

Les mesures de la dynamique de retournement de l'aimantation (cf. fig. A.6.8-11) se révèlent particulièrement intéressantes par rapport à celles des autres systèmes (cf. III.3, III.4 et A.5) :

- l'ajustement ne montre aucune courbure résiduelle (pour $\alpha = 1.5$) ;
- le volume d'activation est beaucoup plus grand et proche du volume total de la particule. Nous avons trouvé des valeurs de l'ordre de $V = (20 \text{ nm})^3$;
- vers les basses températures, nous avons trouvé à nouveau une saturation en température avec un T_C compris entre 0.35 et 0.25 K ;
- la largeur σ est très proche à la prédiction de Kurkijärvi (cf. la figure A.6.10) ;
- la probabilité de non retournement est très proche d'une exponentielle (cf. la figure A.6.11).

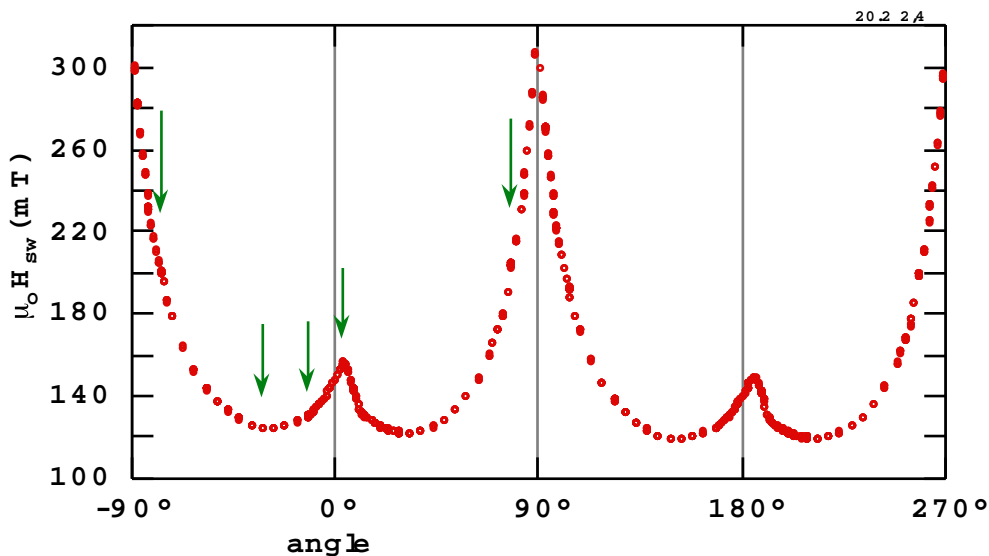


Fig. A.6.7 : Dépendance angulaire du champ de retournement. Les flèches indiquent les angles de la mesure de la dynamique de retournement.

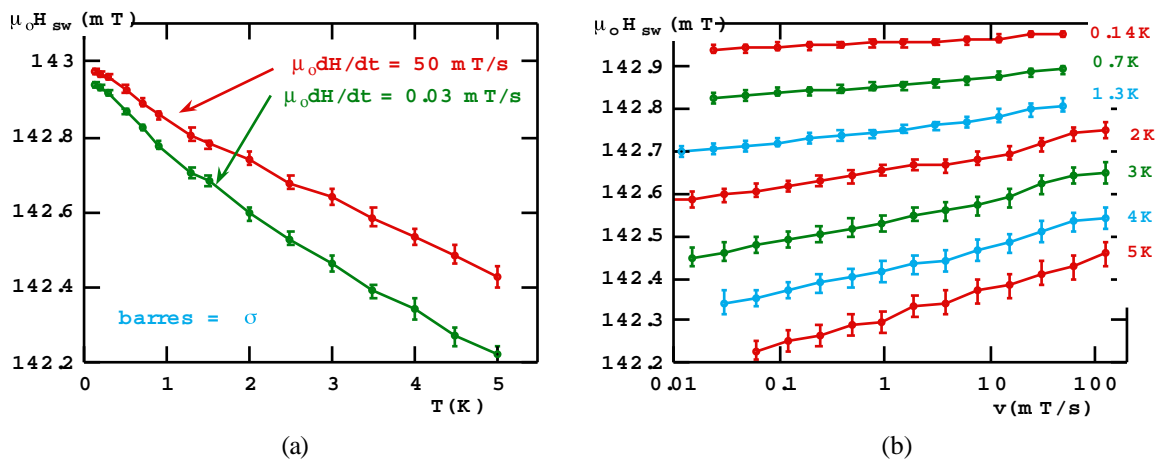


Fig. A.6.8 : (a) Dépendance thermique du champ de retournement d'une particule de Co monocristallisé. (b) Champ de retournement en fonction de la vitesse de balayage du champ.

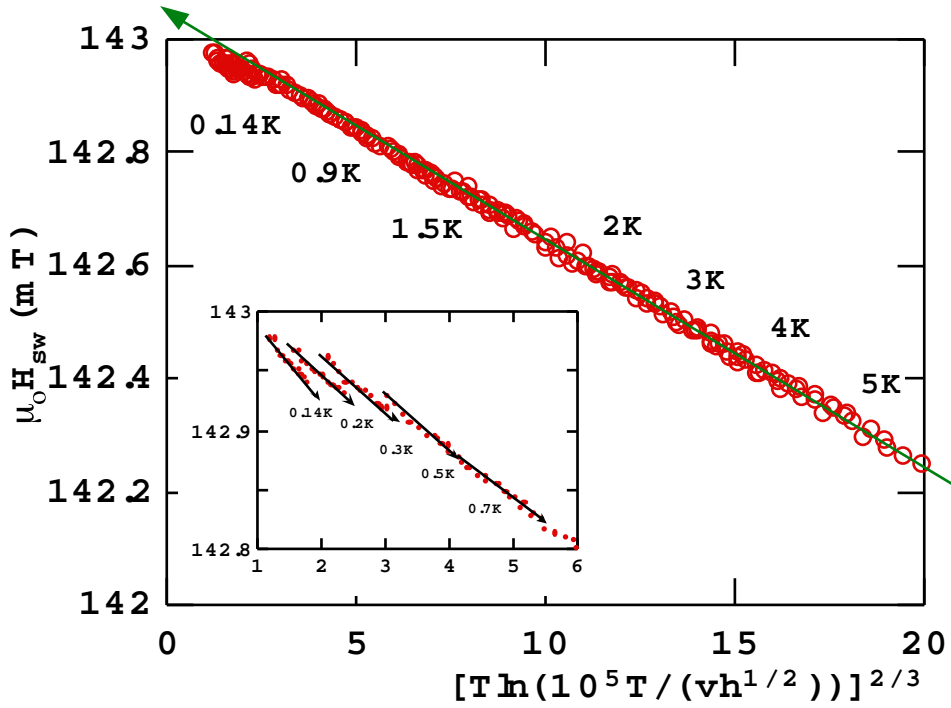


Fig. A.6.9 : Ajustement du modèle de Kurkijärvi aux mesures de $H_{sw}(T, v)$ pour $\theta = -12^\circ$.

angle	H_c^0 (mT)	E_0/k (K)	τ_0 (s 10^{-9})	$\sqrt[3]{V}$ (nm)	T_c (K)
-72°	202.60	111 000	1.2	17.6	0.35
-27°	138.65	158 000	5.9	22.4	0.28
-12°	143.10	214 000	4.5	24.5	0.25
3°	170.70	200 000	5.7	22.6	0.30
78°	230.37	86 000	1.8	15.5	0.35

Tab. A.6.1 : Quelques valeurs de l'ajustement du modèle de Kurkijärvi aux mesures pour différents angles du champ appliqué.

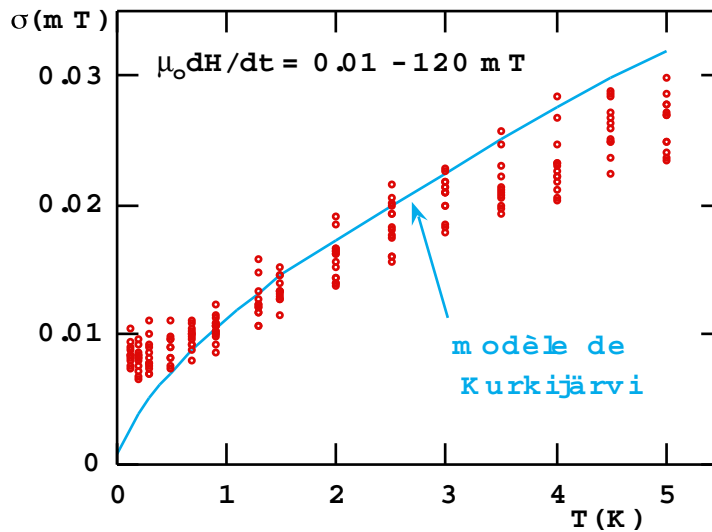


Fig. A.6.10 : Comparaison de la prédiction du modèle de Kurkijärvi (courbe en pointillé) avec les mesures de la largeur σ .

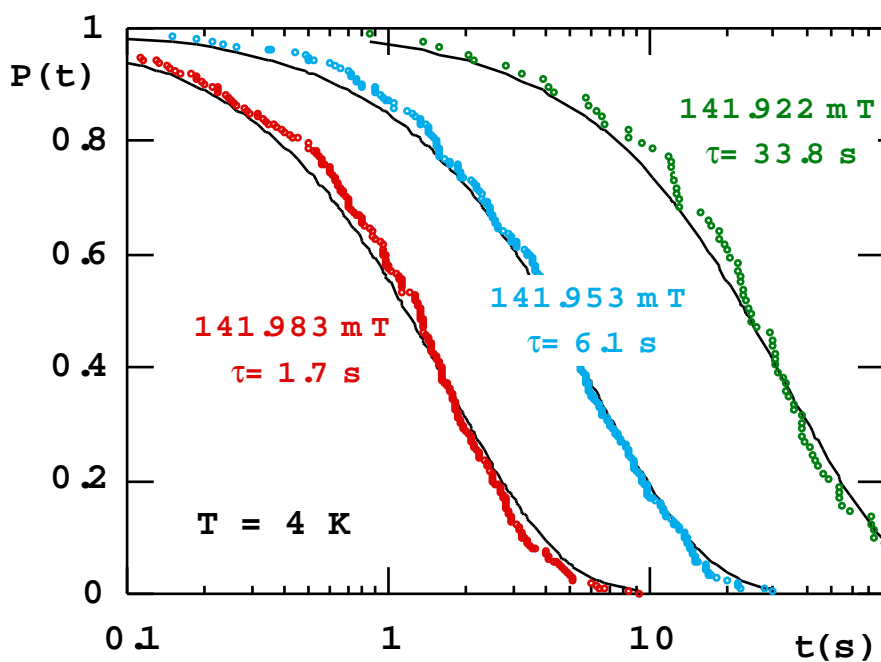
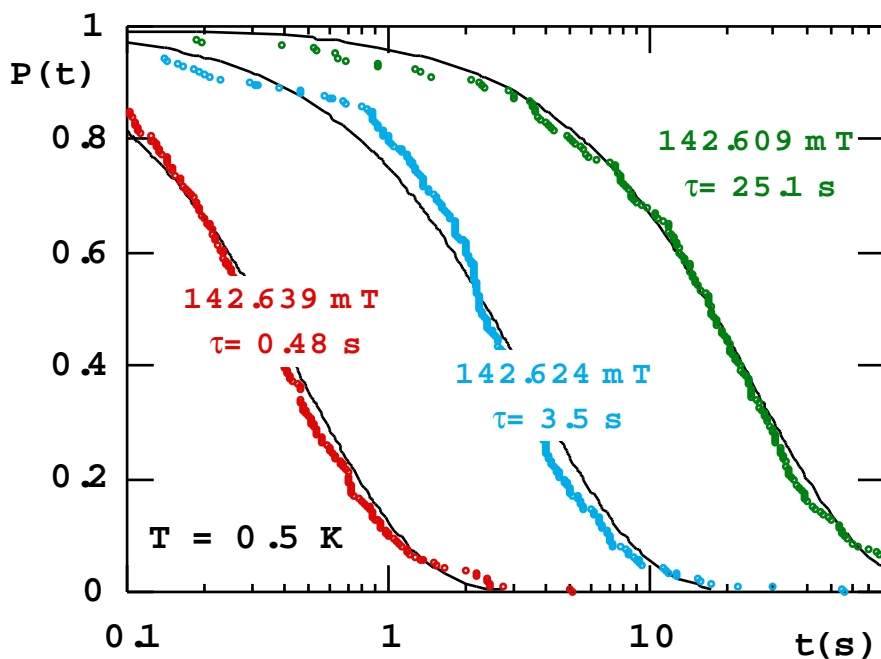


Fig. A.6.11 : Probabilité de non retournement de l'aimantation en fonction du temps pour différents champs appliqués à 0.5 et 4 K, pour la "grosse" nanoparticule de la figure A.6.5a-b, et à $\theta \approx -12^\circ$. Les lignes pleines sont ajustées aux données avec une exponentielle ($\beta = 1$). Le paramètre d'ajustement τ est indiqué dans les graphes.

Annexe 7 : Influence de l'oxydation sur les mesures de la dynamique de retournement de l'aimantation

A titre d'exemple, nous avons mesuré la dynamique de retournement d'un fil de Ni juste après sa fabrication, ensuite après 6 semaines et puis après 3 mois. L'échantillon est resté dans un dessiccateur dans les intervalles de temps entre les trois mesures. Les cycles obtenus après 6 semaines sont pratiquement inchangés, i.e. moins de 1% de l'échantillon s'est oxydé pendant les 6 semaines. Par contre, la largeur de la distribution des champ de retournement a clairement augmenté. Par exemple, la figure A.7.1a montre les mesures du champ de retournement à $T = 0.2$ K et la figure A.7.1b montre les histogrammes correspondants. On voit clairement l'augmentation de la largeur σ . La comparaison des ajustements du modèle de Kurkijärvi aux mesures de $H_{SW}(T, v)$ (cf. fig. A.7.2) et la dépendance thermique de σ (cf. fig. A.7.5-6) montre que le vieillissement du fil affecte beaucoup la largeur σ mais peu la valeur moyenne de H_{SW} . T_C a augmenté légèrement (cf. fig. A.7.3b), le volume d'activation est devenue plus petit (cf. fig. A.7.4) et la probabilité de retournement n'est plus exponentielle (cf. fig. A.7.7).

L'oxydation d'une particule magnétique s'exprime aussi par un effet mémoire du champ de retournement, i.e. il existe une corrélation entre deux mesures de H_{SW} . Ceci se voit bien dans la figure A.7.1a par le regroupement de certains points représentant H_{SW} autour d'une même valeur.

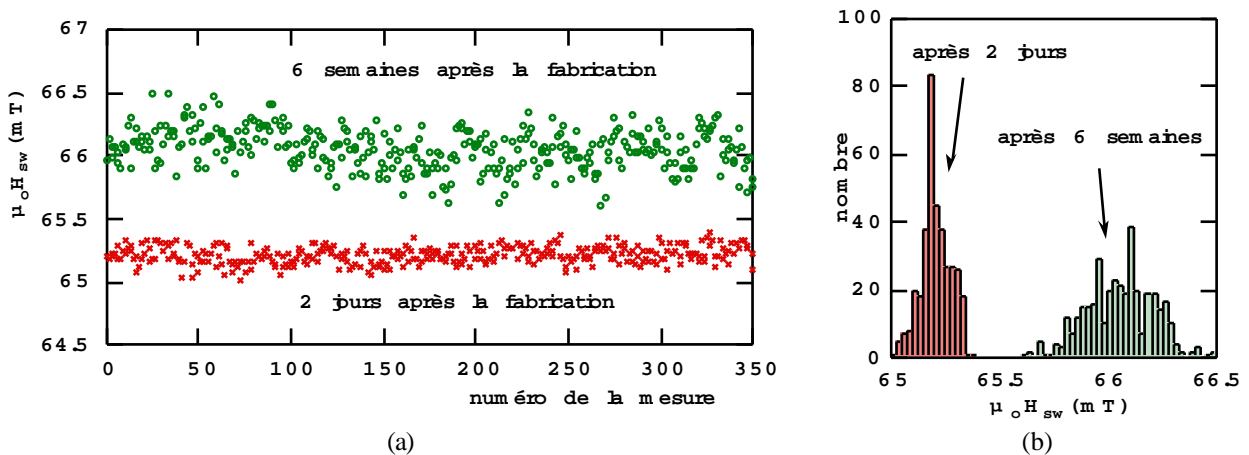


Fig. A.7.1 : (a) Evolution du champ de retournement au cours du temps, à $T = 0.2$ K. (b) Histogrammes correspondants.

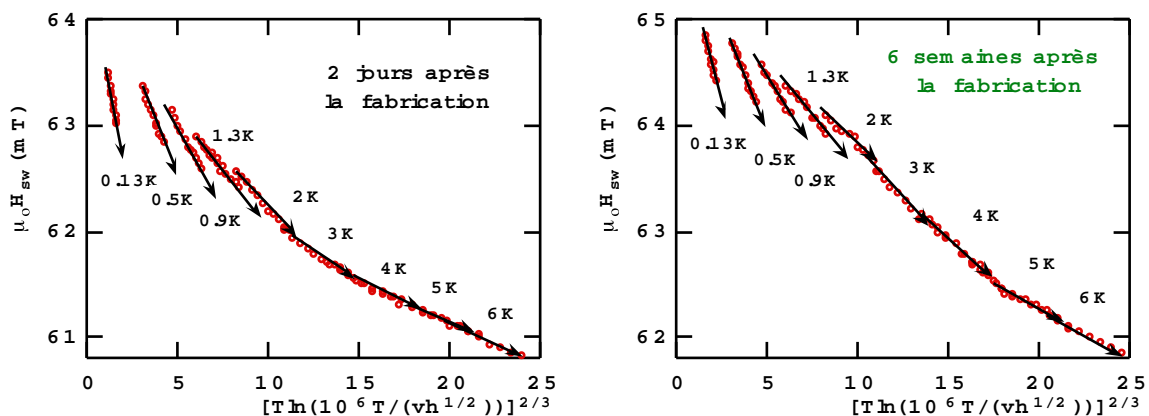


Fig. A.7.2 : Ajustements du modèle de Kurkijärvi aux mesures des $H_{SW}(T, v)$ du fil (21.8 7,4) de Ni mesurés

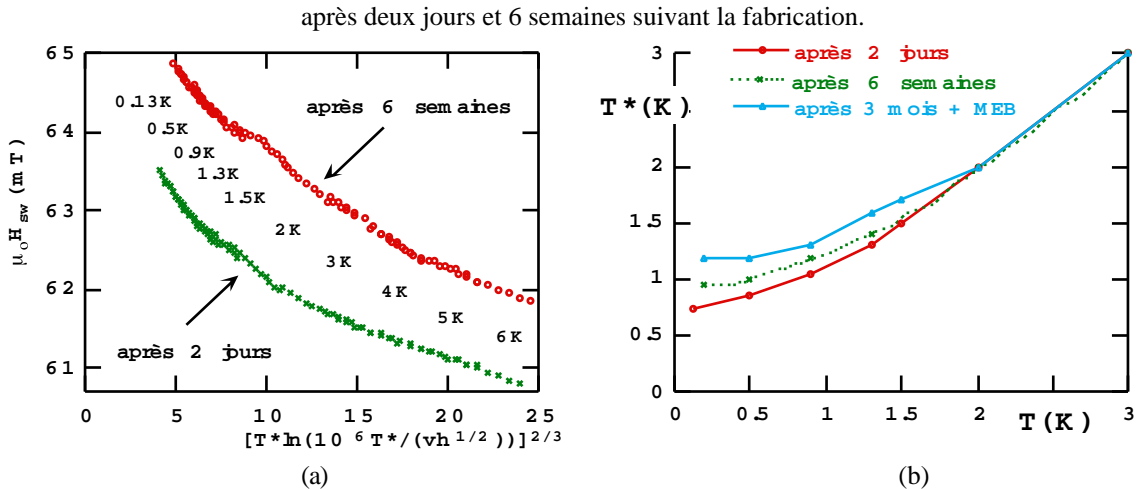


Fig. A.7.3 : (a) $H_{SW}(T,v)$ avec $T = T^*$ pour les mesures de la figure A.7.2.
 (b) Variation de la température effective $T^*(T)$.

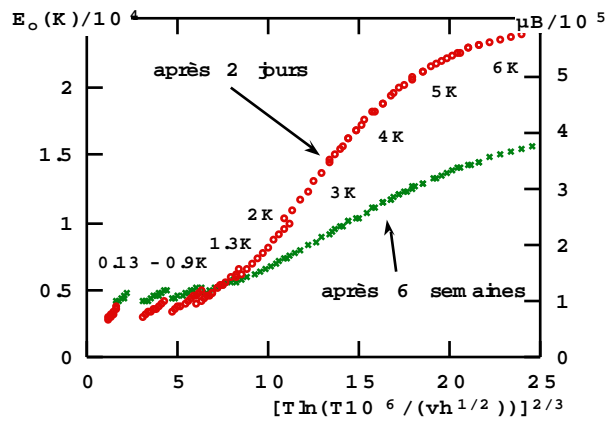


Fig. A.7.4 : Variation de E_0 selon T et v pour les mesures de la figure A.7.2.

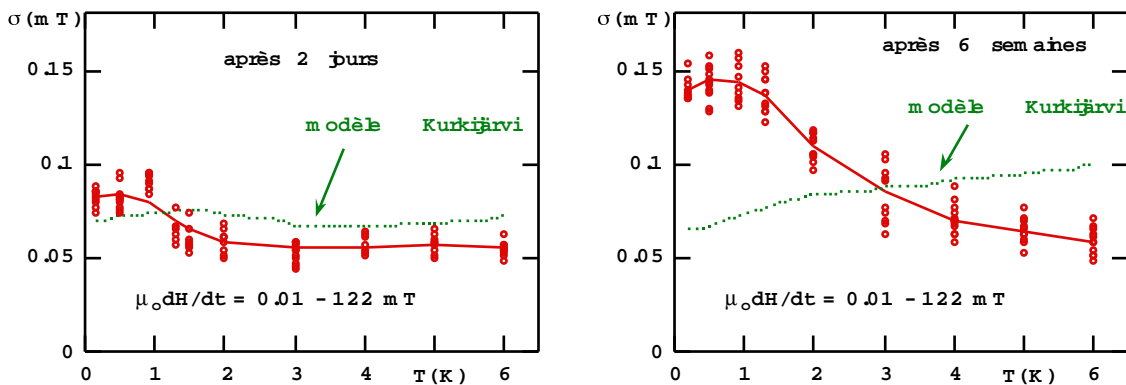


Fig. A.7.5 : Comparaisons de la prédiction du modèle de Kurkijärvi (courbe en pointillé) avec les mesures de σ pour le fil (21.8 7,4).

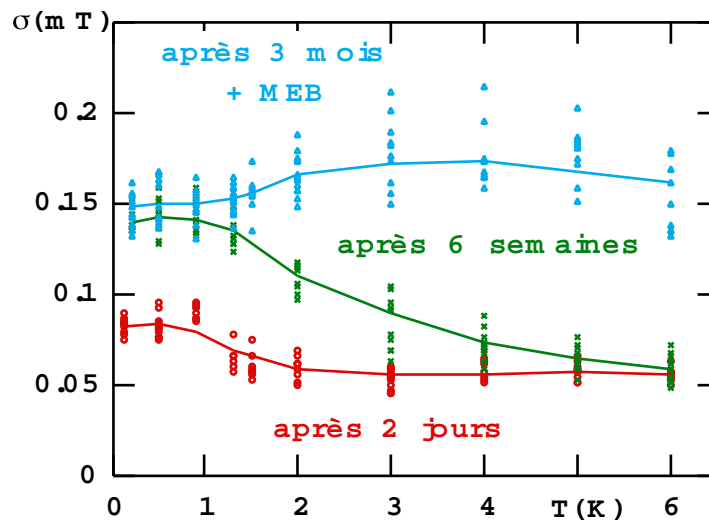


Fig. A.7.6 : Comparisons de σ pour le fil (21.8 7,4) mesurées 2 jours, 6 semaines et 3 mois après la fabrication.

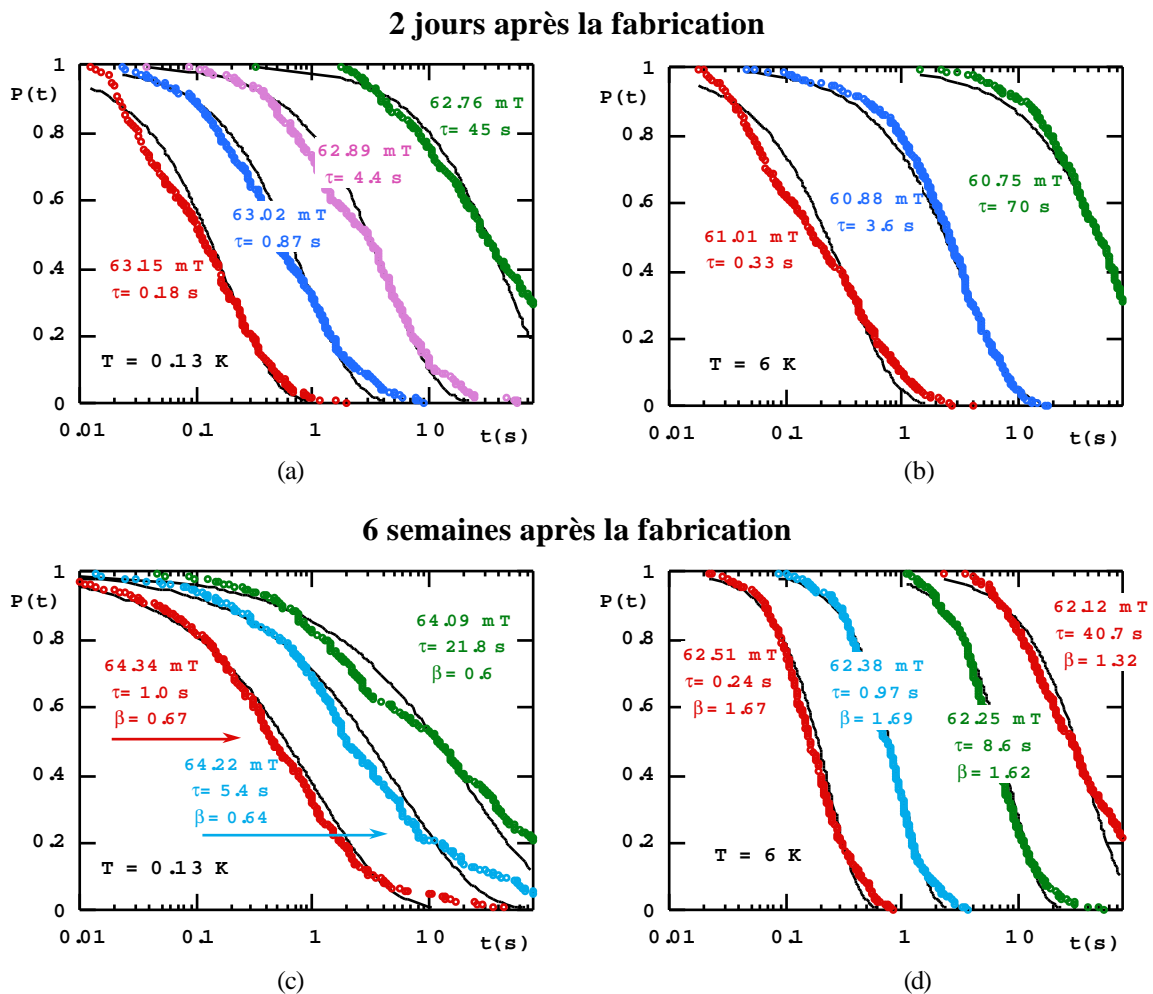


Fig. A.7.7 : Probabilité de non retournement de l'aimantation en fonction du temps pour différents champs appliqués à 0.13 et 6 K, pour un cylindre de Ni (21.8 7,4) de diamètre 45 nm, et à $\theta = 0^\circ$: (a-b) deux jours après la fabrication ; (c-b) 6 semaines après la fabrication. Les lignes pleines sont ajustées aux données avec une exponentielle ($\beta = 1$) pour (a-b) et avec une exponentielle étendue pour (c-b). Les paramètres d'ajustements τ et β sont indiqués dans les graphes.

Références

- [Aharoni 1958] A. Aharoni and S. Shtrikman, *Phys. Rev.*, 109, 1522 (1958).
- [Aharoni 1959] A. Aharoni, *J. Appl. Phys.*, 30 Suppl., 70S (1959).
- [Aharoni 1966] A. Aharoni, *Phys.Stat. Sol.*, 16, 3 (1966).
- [Aharoni 1986] A. Aharoni, *IEEE Trans. Magn.*, MAG-22, 478 (1986).
- [Aharoni 1992] A. Aharoni and W. Baltensperger, *Phys. Rev. B*, 45, 9842 (1992).
- [Aharoni 1993] A. Aharoni and W. Baltensperger, *J. Appl. Phys.*, 74, 1213 (1993).
- [Awschalom 1992] D. D. Awschalom, J. F. Smith, G. Grinstein, D. P. DiVincenzo, and D. Loss, *Phys. Rev. Lett.*, 68, 3092 (1992).
- [Baltensperger 1991] W. Baltensperger, J. S. Broz, J. S. Helman, *Mod. Phys. Lett. B*, 5, 1061 (1991).
- [Brown 1957] W. F. Brown Jr., *Phys. Rev.*, 105, 1479 (1957).
- [Brown 1962] W. F. Brown Jr., *J. Appl. Phys.*, 33, 3022 (1962).
- [Brown 1963] W. F. Brown Jr., "Micromagnetics", Wiley, New York, 38 (1963).
- [Brown 1963] W. F. Brown Jr., *Phys. Rev.*, 130, 1677 (1963).
- [Brown 1994] H-B. Brown, H.N. Bertram, *J. Appl. Phys.*, 75, 4609 (1994).
- [Broz 1990] J. S. Broz, H. B. Braun, O. Brodbeck, W. Baltensperger, J. S. Helman, *Phys. Rev. Lett.*, 65, 787 (1990).
- [Bryant 1989] P. Bryant, H. Suhl, *Appl. Phys. Lett.*, 54, 78 (1989).
- [Castaing 1991] B. Castaing and J. Souletie, *J. Phys. I*, 1 403 (1991).
- [Cernicchiaro 1996] G. Cernicchiaro, thèse, CRTBT - CNRS, Grenoble (à paraître 1996).
- [Chapelier 1993] C. Chapelier, A. Benoit and D. Maily, *Phys. Rev. Lett.*, 70, 2020 (1993).
- [Chudnovsky 1988] E. M. Chudnovsky and L. Gunther, *Phys. Rev. Lett.*, 60, 661 (1988).
- [Clarke 1988] J. Clarke, A. N. Cleland, M. H. Devoret, D. Esteve, J. M. Martinis, *Science* 239, 992 (1988).
- [Chang 1993] T. Chang, J.-G. Zhu and J. H. Judy, *J. Appl. Phys.*, 73, 6716 (1993).
- [Coquaz 1992] C. Coquaz, thèse, LETI, Grenoble (1992).
- [Döring 1968] W. Döring, *J. Appl. Phys.*, 39, 1006 (1968).
- [Durand] E. Durand, "Magnétostatique", Masson Editeurs, Toulouse.
- [El Khatib 1991] El Khatib, thèse, CRTBT - CNRS, Grenoble (1991).
- [Ferré 1995] R. Ferré, thèse, L. Néel - CNRS, Grenoble (1995).
- [Fleisher 1975] R.L. Fleisher, P.B. Price and R.M. Walker, dans "Nuclear tracks in solids", Univ. of California Press, Berkeley (1975).
- [Fredkin 1991] D.R. Fredkin, T. R. Koehler, *J. Appl. Phys.*, 69, 5276 (1991).

- [Frei 1957] E. H. Frei, S. Shtrikman and D. Treves, *Phys. Rev.*, 106, 446 (1957).
- [Fulton 1974] T.A. Fulton and L. N. Dunkelberger, *Phys. Rev. B*, 9, 4760 (1974).
- [Gadbois 1995] J. Gadbois and J. G. Zhu, *IEEE Trans. Magn.*, 31, 3802 (1995).
- [Garg 1995] A. Garg, *Phys. Rev. B*, 51, 15592 (1995).
- [Guerret-Piécourt 1994] C. Guerret-Piécourt, Y. Le Bouar, A. Loiseau and H. Pascard, *Nature*, 372, 761 (1994).
- [Gonzalez 1995] J. M. Gonzalez, R. Ramirez, R. Smirnov-Rueda, J. Gonzalez, *Phys. Rev. B*, 52, 16034 (1995).
- [Gunther 1994] L. Gunther and B. Barbara, *Phys. Rev. B*, 49, 3926 (1994).
- [Hansma 1971] P.K. Hansma, G.I. Rochelin and J.W. Sweet, *Phys. Rev. B*, 4, 3003 (1971).
- [Hänggi 1990] P. Hänggi, P. Talkner, M. Borkovec, *Rev. Mod. Phys.*, 62, 251 (1990).
- [Hefferman 1991] S.J. Hefferman, J. N. Chapman and S. McVitie, *J. Mag. Mag. Mat.*, 95, 76 (1991).
- [Heiden 1982] C. Heiden and H. Rogalla, *J. Mag. Mag. Mat.*, 26, 275 (1982).
- [Hubert 1976] A. Hubert, *J. Mag. Mag. Mat.*, 2, 25 (1976).
- [Jackel 1974] L. D. Jackel, W. W. Webb, J. E. Lukens and S. S. Pei, *Phys. Rev. B*, 9, 115 (1974).
- [Jackson] J. D. Jackson, "Classical Electrodynamics", John Wiley & Sons, Inc., New York.
- [Jaklevic 1965] R. C. Jaklevic, J. Lambe, J. E. Mercereau and A. H. Silver, *Phys. Rev.*, 140, A1628 (1965).
- [Josephson 1962] B. D. Josephson, *Phys. Lett.*, 1, 251 (1962).
- [Klik 1990] I. Klik and L. Gunther, *J. Stat. Phys.*, 60, 473 (1990).
- [Knowles 1978-84] J. E. Knowles, *IEEE Trans. Magn.*, MAG-14, 858 (1978) ; J. E. Knowles, *IEEE Trans. Magn.*, MAG-16, 62 (1980) ; J. E. Knowles, *IEEE Trans. Magn.*, MAG-17, 3008 (1981) ; J. E. Knowles, *IEEE Trans. Magn.*, MAG-19, 90 (1983) ; J. E. Knowles, *IEEE Trans. Magn.*, MAG-20, 84 (1984).
- [Kohlrausch 1847] R. Kohlrausch, *Ann. Phys.(Leipzig)*, 12 393 (1847).
- [Kurkijävic 1972] J. Kurkijärvi, *Phys. Rev. B*, 6, 832 (1972).
- [Labonte 1996] A. E. Labonte, *J. Appl. Phys.*, 2450 (1969).
- [Labrune 1990] M. Labrune, *J. Miltat*, *IEEE Trans. Magn.*, 26, 1521 (1990).
- [Landau 1935] L. Landau et E. Lifshitz, *Physik. Z. Sowjetunion* 8, 153 (1935).
- [Ledermann 1994] M. Ledermann, S. Schultz and M. Ozaki, *Phys. Rev. Lett.*, 73, 1986 (1994).
- [Leggett 1987] A. J. Leggett, S. Chakravarty, A. T. Dorsey, M. P. A. Fisher, A. Garg, W. Zwerger, *Rev. Mod. Phys.*, 59, 1 (1987).
- [Lounasmaa 1974] "Experimental principles and methods below 1 K", O.V.Lounasmaa, 1974 AP.
- [Lis 1980] T. Lis, *Acta Cryst. B* 36, 2042 (1980).

- [Meier 1994] J. Meier, A. Blondel, B. Doudin and J. - Ph. Ansermet, *Helv. Phys. Acta*, 67, 761 (1994).
- [Meiklejohn 1964] W. H. Meiklejohn, voir F. E. Luborsky and C. R. Morelock, *J. Appl. Phys.*, 35, 2055 (1964) ; F. R. Muirhead, *Phil. Mag.*, 8, 1361 (1963).
- [Mélinon 1995] P. Mélinon, V. Paillard, V. Dupuis, A. Perez, P. Jensen, A. Hoareau, J. P. Perez, J. Tuaille, M. Broyer, J. L. Vialle, M. Pellarin, B. Baguenard, J. Lerme, *J. of Modern Phys. B*, 9, 339 (1995).
- [Middlehoek 1963] S. Middlehoek, *J. Appl. Phys.*, 34, 1054 (1963).
- [Miguel 1995] K. Miguel, E. M. Chudnovsky, à paraître.
- [Morrish 1956] A. H. Morrish and S. P. Yu, *Phys. Rev.*, 102, 670 (1956).
- [Morrish] A. H. Morrish, "The Physical Principles of Magnetism".
- [Nakatani 1991] Y. Nakatani, N. Hayashi and Y. Uesaka, *Jap. J. Appl. Phys.*, 30, 2503 (1991).
- [Néel 1947] L. Néel, *C. R. Acad. Science, Paris*, 224, 1550 (1947).
- [Néel 1949] L. Néel, *C. R. Acad. Science, Paris*, 228, 664 (1949).
- [Néel 1949] L. Néel, *Ann. Geophys. (CNRS)*, 5, 99 (1949).
- [Novak 1994] M. A. Novak, R. Sessoli, dans "Quantum tunneling of magnetization - QTM '94", NATO ASI Series, Kluwer academic publishers, London.
- [Paillard 1993] V. Paillard, P. Mélinon, V. Dupuis, J. P. Perez and A. Perez, *Phys. Rev. Lett.*, 25, 4170 (1993).
- [Paillard 1993] V. Paillard, thèse, URA CNRS 172 (1993).
- [Palmer 1984] R. G. Palmer, D. L. Stein, E. Abrahams and P. W. Anderson, *Phys. Rev. Lett.*, 53, 958 (1984).
- [Paulsen 1991] C. Paulsen, C.P. Sampaio, B. Barbara, D. Fruchard, A. Marchand, J. L. Tholence and M. Uehara, *Phys. Lett.*, 161, 319 (1991).
- [Paulsen 1994] C. Paulsen, J.-G. Park, dans "Quantum tunneling of magnetization - QTM '94", NATO ASI Series, Kluwer academic publishers, London.
- [Per Bak 1987] Per Bak, C. Tang and K. Wiesenfeld, *Phys. Rev. Lett.*, 59, 381 (1987).
- [Perez 1994] J. P. Perez, thèse, URA CNRS 172, (1994)
- [Perez 1995] J. P. Perez, V. Dupuis, J. Tuaille, A. Perez, V. Paillard, P. Melinon, M. Treilleux, L. Thomas, B. Barbara, B. Bouchet-Fabre, *J. Mag. Mag. Mat.*, 145, 74 (1995).
- [Poretics] Poretics Corp., 111 Lindbergh Av., Livermore, CA 94550-9520 ; Costar Corp. (Nuclepore), One Alewife Center, Cambridge MA 02140 ; Whatmann SA, 11b Av. Einstein, B-1348 Louvain-la-Neuve, Belgium.
- [Richter 1989] H. J. Richter, *J. Appl. Phys.*, 65, 9 (1989).

- [Richter 1989] H. J. Richter and K. A. Hempel, *IEEE Trans. Mag.*, 25, 3446 (1989).
- [Romijin 1982] J. Romijin, T. M. Klapwijk, M. J. Renne and J. E. Mooij, *Phys. Rev. B*, 26, 3648 (1982).
- [Rührig 1990] M. Rührig, W. Bartsch, M. Vieth, A. Hubert, *IEEE Trans. Mag.*, 26, 2807 (1990).
- [Salling 1991] C. Salling, S. Schultz, I. McFadyen, M. Ozaki, *IEEE Trans. Mag.*, 27, 5185 (1991).
- [Salling 1994] C. Salling, R. O'Barr, S. Schultz, I. McFadyen, M. Ozaki, *J. Appl. Phys.*, 75, 7989 (1994).
- [Sampaio 1994] L. Sampaio, thèse, L. Néel - CNRS, Grenoble (1994).
- [Schabes 1988] M. E. Schabes and H. N. Bertram, *J. Appl. Phys.* 64, 1347 (1988).
- [Schabes 1991] M. E. Schabes, *J. Mag. Mag. Mat.*, 95, 249 (1991).
- [Scholten 1980] P. C. Scholten, *IEEE Trans. Magn.*, MAG-16, 77 (1980).
- [Sessoli 1993], R. Sessoli, D. Gatteschi, A. Caneschi, M. A. Novak, *Nature*, 365, 141 (1993).
- [Shtrikman 1959] S. Shtrikman and D. Treves, *J. Phys. Radium*, 20, 286 (1959).
- [Stamp 1992] P. C. E. Stamp, E. M. Chudnovsky and B. Barbara, *Int. J. Mod. Phys. B6*, 1355-1478 (1992).
- [St.-W. 1948] E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth, *Philos. Trans. London Ser. A*, 240, 599 (1948) ; reprinted in *IEEE Trans. Magn. MAG-27*, 3475 (1991).
- [Street 1949] R. Street and J. C. Wooley, *Proc. Phys. Soc. A62*, 562 (1949).
- [Uesaka 1991] Y. Uesaka, Y. Nakatani, N. Hayashi, *J. Appl. Phys.*, 69, 4847 (1991).
- [Yan 1989] Y. D. Yan and E. D. Torre, *J. Appl. Phys.*, 66, 320 (1989).
- [Tonomura 1986] A. Tonomura, T. Matsuda, J. Endo, T. Arii, K. Mihama, *Phys. Rev. B*, 34, 3397 (1986).
- [Van den Berg 1984] H. A. M. Van den Berg, Thèse, Delft University Press (1984).
- [Van den Berg 1984] H. A. M. Van den Berg, *J. Mag. Mag. Mat.*, 44, 207 (1984).
- [Van den Berg 1986] H. A. M. Van den Berg, *J. Appl. Phys.*, 60, 1104 (1986).
- [Van den Berg 1987] H. A. M. van den Berg, *J. Appl. Phys.*, 61, 4194 (1987).
- [Van Duzer] T. Van Duzer, and C.W. Turner, "Principles of Superconductive Devices and Circuits".
- [Victoria 1989] R. H. Victora, *Phys. Rev. Lett.*, 63, 457 (1989) ; R. H. Victora dans "Springer Proceedings in Physics", 50, 11 (1990).
- [Vincent 1994] E. Vincent, J. Hammann, P. Prené, E. Tronc, *J. Phys. I France*, 4, 273 (1994).
- [Voss 1981] R. F. Voss and R. A. Webb, *Phys. Rev. Lett.*, 47, 265, (1981).
- [Weissbord 1973] H. Weissbord, R. P. Hubener and W. Clauss, *J. Low Temp. Phys.*, 69 (1973).
- [Wegrowe 1996] J. - E. Wegrowe, W. Wernsdorfer, A. Sulpice, L. Thomas, B. Barbara, K. Hasselbach, A. Benoit, D. Mailly, *Phys. Rev. B*, 53, 6536 (1996).

- [Wernsdorfer 1995/1] W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, D. Maily, B. Barbara, A. Benoit, L. Thomas, G. Suran, *J. Mag. Mat.*, 145, 33 (1995) ; W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, D. Maily, B. Barbara, A. Benoit, L. Thomas and G. Suran, *J. Magn. Mat.*, vol. 140-144 (1995) 389.
- [Wernsdorfer 1995/2] W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, A. Benoit, G. Cernicchiaro, D. Maily, B. Barbara, L. Thomas, *J. Magn. Mat.*, 151, 38 (1995).
- [Wernsdorfer 1995/3] W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, A. Sulpice, A. Benoit, J.-E. Wegrowe, L. Thomas, B. Barbara, D. Maily, *Phys. Rev. B*, 53, 3341 (1996).
- [Wernsdorfer 1995/4] W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, A. Benoit, B. Barbara, D. Maily, J. Tuailon, J.P. Perez, V. Dupuis, J.P. Dupin, G. Guiraud, A. Perez, *J. Applied Phys.*, 78, 7192 (1995).
- [Wernsdorfer 1995/5] W. Wernsdorfer, B. Doudin, D. Maily, K. Hasselbach, A. Benoit, J. Meier, J.-Ph. Ansermet, B. Barbara, soumis à *Phys. Rev. Lett.*
- [Williams 1989] W. Williams, D. J. Dunlop, *Nature*, 337, 634 (1989) ; W. Williams, D. J. Dunlop, *J. Geophys. Res.*, 100, 3859 (1995).

Publications

"Mesoscopic quantum tunneling of the magnetization"

B. Barbara, W. Wernsdorfer, L.C. Sampaio, J.G. Park, C. Paulsen, M.A. Novak, R.Ferré, D. Maily, R. Sessoli, A. Caneschi, K. Hasselbach, A. Benoit and L. Thomas
J. Magn. Magn. Mat., vol. 140-144, 1825 (1995).

"Magnetization of single magnetic particles"

W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, D. Maily, B. Barbara, A. Benoit, L. Thomas and G. Suran
J. Magn. Magn. Mat., vol. 140-144, 389 (1995).

"DC-SQUID magnetization measurements of single magnetic particles"

W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, D. Maily, B. Barbara, A. Benoit, L. Thomas and G. Suran
J. Magn. Magn. Mat., vol. 145, 33 (1995).

"Measurement of the Dynamics of the Magnetization Reversal in Individual Single-Domain Co Particles"

W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, A. Benoit, G. Cernicchiaro, D. Maily, B. Barbara, L. Thomas
J. Magn. Magn. Mat., 151, 38 (1995).

"High Sensitivity Magnetization Measurements of Nanoscale Cobalt Clusters"

W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, A. Benoit, B. Barbara, D. Maily, J. Tuaille, J.P. Perez, V. Dupuis, J.P. Dupin, G. Guiraud, A. Perez
J. Applied Phys., 78, 7192 (1995).

"Dynamical measurement of domain wall nucleation and annihilation in individual amorphous Co particles".

W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, A. Sulpice, A. Benoit, J.-E. Wegrowe, L. Thomas, B. Barbara, D. Maily, Phys. Rev. B, 53, 3341 (1996).

"Comparative study of slow magnetic relaxation at two different scales in terms of linear response theory"

J.-E. Wegrowe, W. Wernsdorfer, A. Sulpice, L. Thomas, B. Barbara, K. Hasselbach, A. Benoit, D. Maily, Phys. Rev. B, 53, 6536 (1996).

"Nucleation of the magnetization reversal in individual nanosized nickel wires"

W. Wernsdorfer, B. Doudin, D. Maily, K. Hasselbach, A. Benoit, J. Meier, J.-Ph. Ansermet, B. Barbara
Phys. Rev. Lett., 77, 1873 (1996).

"How to measure persistent currents in a mesoscopic ring",

G. Cernicchiaro, K. Hasselbach, D. Maily, W. Wernsdorfer, A. Benoit,
Quantum Transport in Semiconductor Submicron Structures, edited by Bernard Kramer, NATO ASI series, Series E : Applied Sciences - Vol. 326 (1996)

"Mesoscopic Effects in Magnetism : Single Particle Measurements"

B. Barbara, W. Wernsdorfer, L. Thomas, K. Hasselbach, A. Benoit, D. Maily,
In *Quantum Coherence and Decoherence*, Foundation of Quantum Mechanics at the Light of New Technologies, ed. K. Fujikawa and Y.A. Ono, Elsevier Science B. V., p. 223 (1996).

Proceedings of the 21st International Conference on Low Temperature Physics, Prague, Aug. 8-14, 1996; "Magnetisation reversal in single ferromagnetic Ni and Co particles", K. Hasselbach, W. Wernsdorfer, D. Maily, B. Barbara, A. Benoit,
Czechoslovak J. of Phys., Vol. 46 (1996) Suppl. S4, p.2137-2138.

- "From the superparamagnetic to the magnetically ordered state in systems of transition metal clusters embedded in matrices",
V. Dupuis, J. Tuaillon, B. Prevel, A. Perez, P. Melinon, G. Guiraud, F. Parent, L.B. Steren, R. Morel, A. Barthelemy, A. Fert, S. Mangin, L. Thomas, W. Wernsdorfer, B. Barbara,
J. Mag. Mag. Mat. **165**, 42-45 (1997).
- "Static and dynamical study of the passage of a 180° domain wall over an artificial energy barrier"
S. Mangin, G. Marchal, W. Wernsdorfer, A. Sulpice, D. Mailly, B. Barbara
J. Mag. Mag. Mat. **165**, 13-16 (1997).
- "Mesoscopic effects in magnetism : Submicron to nanometer size single particle measurements",
W. Wernsdorfer, E. Bonet Orozco, B. Barbara, K. Hasselbach, A. Benoit, D. Mailly, B. Doudin, J. Meier, J.E. Wegrowe, J.-Ph. Ansermet, N. Demoncy, H. Pascard, A. Loiseau, L. Francois, N. Duxin, M.P. Pileni
J. Appl. Phys. **81**, 5543 (1997)
- "Angular dependence of magnetization reversal and Neel Brown Theory"
W. Wernsdorfer, E. Bonet Orozco, K. Hasselbach, A. Benoit, B. Barbara, D. Mailly
in *Magnetic Hysteresis in Novel Magnetic Materials*,
NATO ASI, Serie E: Applied Sciences,
Vol. 338, ed. George C. Hadjipanayis, p. 283 (1997).
- "Magnetic relaxation and magnetic fluctuations in nanowires: beyond the Arrhenius-Brown activation process"
J-E Wegrowe, J.P. Meier, B. Doudin, J.-Ph. Ansermet, W. Wernsdorfer, B. Barbara, W.T. Coffey, Y. P Kalmykov, J-L Déjardin
Europhys. Lett., **38**, 329-334 (1997)
- S. Mangin, G. Marchal, W. Wernsdorfer, A. Sulpice, K. Hasselbach, D. Mailly, B. Barbara,
Dynamical measurements of domain wall nucleation and propagation in a domain wall junction of GdFe/TbFe/GdFe at low temperature, *Europhys. Lett.* **39**, p. 675-680 (1997)
- "Quantum tunneling effect in magnetic particles"
B. Barbara and W. Wernsdorfer
Current Opinion in Solid State & Materials Science, **2**, 220-225 (1997)
- "Experimental evidence of the Néel-Brown model of magnetization reversal"
W. Wernsdorfer, E. Bonet Orozco, K. Hasselbach, A. Benoit B. Barbara, N. Demoncy, A. Loiseau, D. Boivin, H. Pascard and D. Mailly
Phys. Rev. Lett., **78**, 1791 (1997).
- "Macroscopic Quantum Tunneling of Magnetization of Single Ferrimagnetic Nanoparticles of Barium Ferrite"
W. Wernsdorfer, E. Bonet Orozco, K. Hasselbach, A. Benoit, D. Mailly, O. Kubo, H. Nakano and B. Barbara, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 4014, (1997).
- "Measurements of magnetization switching in individual nickel nanowires"
W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, A. Benoit, B. Barbara, B. Doudin, J. Meier, J.-Ph. Ansermet, D. Mailly
Phys. Rev. B, **55**, 11552, (1997).
- "Submicron to nanometer size single particle measurements"
B. Barbara, W. Wernsdorfer, E. Bonet Orozco, K. Hasselbach, A. Benoit, D. Mailly, N. Demoncy, H. Pascard, L. Francois, N. Duxin, M.P. Pileni
Mat. Res. Soc. Symp. Proc., vol. 475, p. 265-276 (1997).

Conférences sur invitation

"Milli-Kelvin experiments on single magnetic particles"

NATO workshop on Quantum Tunneling of the Magnetization, Grenoble Chichilianne, 27.6 - 2.7.1994.

"L'aimantation des micro-particules isolées"

4èmes Journées de la Matière Condensée", Rennes-France, 31.8 - 2.9.1994.

"Magnetization Reversal in Single Ferromagnetic Particles"

Symposium: Macroscopic Quantum Phenomena in Magnetic Systems

Conférence du printemps de la Société Américaine de Physique, San Jose (U.S.A.), 19-24.3.1995.

"Magnetization Reversal in Single Ferromagnetic Particles"

1st Gordon Research Conference on Magnetic Nano-Structures, 17-22 Sep. 1995, Irsee, Germany

"Nucléation du retournement de l'aimantation dans un fil magnétique isolé"

Colloque L. Néel "Couches Minces et Multicouches Magnétiques", Strasbourg, 25 - 26.1.1996.

"Nucleation of the magnetisation reversal in single ferromagnetic particles"

CAMST topical meeting' on 2D magnetic nanostructures, Bristol 10-11 Avril 1996.

(CAMST : Concerted Action on Magnetic Storage Technology)

"Angular Dependence of Magnetization Reversal and Néel-Brown Theory"

NATO-Advanced Study Institute, July 1-12 1996 , Mykonos - Greece, organized by George C. Hadjipanayis

"Nucleation of Magnetization Reversal in Individual Nanosized Particles and Wires"

Session E24 - Magnetic Reversal Mechanisms

Conférence du printemps de la Société Américaine de Physique, Kansas City (U.S.A.), 17-21.3.1997.

Exposés sur invitation

"Aimantation d'une particule submicronique ferromagnétique à très basse température"

- LMPSM, Uni. H. Poincaré Nancy 1, Vandoeuvre, 5.9.94
- Group de Recherche (GdR) : "Systèmes nanoscopiques", Strasbourg, 6.9.94
- Dép. de Phy. des Mat., Uni. Claude Bernard - Lyon I, Villeurbanne, 17.2.95
- Group de Recherche (GdR) : "Systèmes nanoscopiques", Grenoble, 8-9 Juin 1995
- CNRS-THOMSON CSF, Orsay, 3 Avril 1996

"Magnetization Reversal in Single Ferromagnetic Particles"

University of California, Dept. of Physics, San Diego (U.S.A.), 15. 3. 1995.

Communications par affiche

"L'aimantation des micro-particules isolées "

W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, D. Mailly, B. Barbara, A. Benoit, A. Perez et al.

Colloque Louis Néel "Couches Minces et Multicouches Magnétiques", Fouesnant-Cap Coz, 20 - 22.4.1994.

"Développement de SQUID-DC en vue de leur application aux systèmes mésoscopiques"

K. Hasselbach, G. Cernicchiaro, W. Wernsdorfer, A. Benoit, D. Mailly

4èmes Journées de la Matière Condensée, Rennes, 31.8 - 2.9.1994.

"Magnetization of single magnetic particles"

W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, A. Benoit, B. Barbara, D. Mailly

International Conference on Magnetism, Varsovie, Pologne, 22 - 26.8.1994.

"Premières mesures directes de retournement de l'aimantation d'une particule ferromagnétique submicronique à très basse température"

W. Wernsdorfer,

Rencontre régionale des thésards, Lyon - Satolas, 22 Sep. 1995.