HAL
open science

Etude par simulations numériques de bicouches FM/AFM à anisotropie d'échange

Adeline Maitre

To cite this version:

Adeline Maitre. Etude par simulations numériques de bicouches FM/AFM à anisotropie d'échange. Science des matériaux [cond-mat.mtrl-sci]. Université de Rouen, 2012. Français. NNT : . tel-00760007

HAL Id: tel-00760007

https://theses.hal.science/tel-00760007v1

Submitted on 3 Dec 2012

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.

UNIVERSITÉ DE ROUEN

U.F.R. des Sciences et Techniques

École doctorale « SPMII »

THÈSE

Discipline : *Physique*

Spécialité : *Sciences des Matériaux*

présentée par

Adeline MAITRE

pour obtenir le titre de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE ROUEN

Etude par simulations numériques de bicouches FM/AFM à anisotropie d'échange

soutenue le 4 octobre 2012 devant le jury composé de

V. DUPUIS	Directeur de Recherche CNRS	Présidente
JC. TOUSSAINT	Professeur	Rapporteur
JF. BOBO	Directeur de Recherche CNRS	Rapporteur
V. BALTZ	Chargé de Recherche CNRS	Examinateur
D. LEDUE	Professeur	Directeur de Thèse

Groupe de Physique des Matériaux, UMR CNRS 6634

Université de Rouen

Résumé

Ce travail de thèse est consacré à l'étude, par simulations numériques, du phénomène d'anisotropie d'échange présent, notamment, dans les éléments sensibles des MRAMs.

La première partie de ce mémoire porte sur l'influence de la rugosité d'interface, combinée à l'effet de la température, sur les propriétés d'anisotropie d'échange, par le biais d'une approche atomique. L'étude a permis de confirmer la forte influence de la configuration interfaciale. Il a notamment été observé que l'interface présentant la plus forte rugosité, donnait lieu à des valeurs plus importantes du champ d'échange. De plus, l'existence de sites FM à fort champ local agissant comme des sites de nucléation lors du retournement d'aimantaion a été observée. Nos résultats montrent également que la frustration magnétique, combinée à l'agitation thermique, pouvait induire une annulation du champ d'échange dans le cas d'une interface suffisamment rugueuse, confirmant ainsi que la frustration magnétique à l'interface FM/AFM peut conduire, lorsque la température augmente, à des régions magnétiquement désordonnées qui ne contribuent pas au champ d'échange.

La seconde partie de ce mémoire est consacrée à l'effet de la température et de la microstructure sur les propriétés d'anisotropie d'échange, ainsi qu'aux distributions de température de blocage via une approche granulaire. Il en ressort que la température à laquelle l'annulation du champ d'échange est observée, communément définie comme une température de blocage des grains AFM (T_B^{AFM}), correspond, d'après nos simulations, à environ 80% de T_B^{AFM} calculée. L'influence de zones "verre de spin", ayant pour origine un affaiblissement du couplage effectif dû à la présence de rugosité, sur la distribution de T_B^{AFM} a également été étudiée. L'introduction d'une "certaine quantité" de grains présentant un état "verre de spin" dans la couche AFM, induit bien un pic à basse température comme observé expérimentalement.

Mots Clefs : Anisotropie d'échange, Simulation Monte Carlo, Rugosité interfaciale, Température de Blocage, Cycle d'hystérésis

Abstract

This thesis is dedicated to the study, by mean of Monte Carlo simulations, of the exchange anisotropy observed in MRAMs.

The first part of the manuscript focuses on the influence of the interfacial roughness and the temperature, on exchange anisotropy properties, *via* an atomic approach. This study confirmed the strong influence of the interfacial configuration. It was observed that a roughest interface gives rise to higher values of the exchange field. Moreover, the presence of FM sites with a strong local field, acting as nucleation sites during the magnetization reversal, has been observed. Our results have shown that magnetic frustration, combined to thermal activation, with a sufficiently rough interface, can lead to a cancelling of the exchange field, confirming that magnetic frustration at FM/AFM interface can lead, when the temperature increases, to magnetically disordered areas which do not contribute to the exchange field.

The second part of the manuscript is dedicated to the effect of temperature and microstructure on exchange anisotropy properties as well as blocking temperature distribution *via* a granular approach. It appears that the temperature corresponding to the disappearing of exchange field, commonly defined as the blocking temperature of AFM grains (T_B^{AFM}), corresponds, according to our simulation, to 80% of calculated T_B^{AFM}. The influence of spin glasses areas, inducing an effective coupling decrease due to the roughness, on the T_B^{AFM} distribution has been studied. The introduction of a quantity of grains with a spin glass behavior in the AFM layer, can lead to the observation of a low temperature peak in the blocking temperature distribution, as experimentally observed.

Keywords : Exchange bias, Monte Carlo simulation, Interfacial roughness, Blocking temperature, Hysteresis loop

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier mon directeur et encadrant de thèse, Denis Ledue. Merci de m'avoir offert cette thèse. Merci pour ta disponibilité tout au long de ces trois années. J'ai disposé d'une grande autonomie, mais tu as toujours été là dès que j'avais une question ou besoin de discuter. Merci aussi d'avoir partagé tes connaissances avec moi.

Je tiens naturellement à remercier les membres du Jury. Mes rapporteurs, Jean-Christophe Toussaint et Jean-François Bobo. Mes examinateurs, Vincent Baltz et Véronique Dupuis qui a également accepté la présidence de ce jury. Je tiens à vous remercier pour votre lecture attentive et vos remarques constructives ainsi que pour les discussions qui en ont découlées.

Je remercie également Didier Blavette et Philippe Pareige de m'avoir accueillie au sein du GPM. Un grand merci à Didier Blavette pour avoir défendu mon dossier m'ayant ainsi permis d'obtenir un financement de thèse.

Je remercie également la région Haute-Normandie pour le financement qui m'a été attribué ainsi que le Centre de Ressource Informatique de HAute-Normandie (CRIHAN) et notamment Patrick Bousquet-Melou et Béatrice Charton pour leur aide et leurs interventions rapides quand cela était nécessaire.

Je tiens également à remercier les personnes avec lesquelles j'ai pu collaborer durant cette thèse. Tout d'abord Luc Lechevallier qui a toujours répondu présent lorsque j'avais des questions, notamment sur le côté expérimental des bicouches à anisotropie d'échange. Je tiens à remercier Renaud Patte pour son aide, surtout au début de ma thèse pour toute la partie technique liée au CRIHAN et à la programmation. Je remercie également Fabrice Barbe avec qui nous avons collaboré sur les tesselations de Voronoi. Merci beaucoup Fabrice tu es vraiment arrivé à ponit nommé. Je tiens encore à remercier Vincent Baltz avec qui nous avons discuté tout au long de cette thèse et qui a orienté celle-ci vers une approche granulaire du système étudié.

Je voudrais également remercier ma super chef d'équipe, Helena. Toujours souriante et agréable, cela a été un vrai plaisir de travailler en ta compagnie.

Je ne saurais oublier mes camarades doctorants avec qui j'ai partagé joies et "peines" durant ces trois ans. La mise en commun de nos connaissances afin de résoudre, ou du moins d'essayer, nos divers problèmes scientifiques devant nos tableau Velleda va me manquer. Je sais qu'il sera difficile, voire impossible, de jamais retrouver une telle cohésion et je suis déjà nostalgique à la seule idée d'y penser (nos phrases du jour, nos montages, nos goûters, nos petits délires de geeks, nos soirées déguisées ...).

Merci Thomas de m'avoir convertie au MMORPG et saches que je n'oublierai jamais ta voix ! Merci Nicolas pour ton éternelle bonne humeur, jamais un moment de répit mais c'est pour ça que l'on t'aime. Merci Juju d'pomme surtout pour tes célèbres montages, Kenny a beaucoup apprécié et nous aussi. Merci Manuel pour tous les fous rires que l'on a partagés et pour ta persévérance à améliorer ma diction. A présent tu sera capable de comprendre n'importe qui ! En tout cas, je n'aurais pu rêver meilleur collègue de bureau et ami. Merci à Marilyne, Maria et Megha pour les séances du dimanche après-midi. Merci à Olena, Slava et Viktor, Hefei, Huiyuan et Wanghua, Megha, Monika, Sandip et Mukesh et Nooshin pour les échanges culturels. Merci également à Constantin la main verte, à Isabelle la reine du rubik's cube et Bonvaman, j'ai été heureuse de vous connaître et il est vraiment dommage que nous n'ayons pas pu passer plus d'une année ensemble.

Je remercie aussi Etienne, Cristelle, Rodrigue, Emmanuel, Gerald et beaucoup d'autres (la liste est longue et je ne voudrais oublier personne) pour les discussions que nous avons pu avoir et pour la bonne ambiance qui règne au GPM.

Remerciement particulier à Amarine. Il n'a pas toujours été facile de comprendre de quoi je parlais mais tu as toujours été là, en allant même jusqu'à relire mon manuscrit, merci. Merci aussi à Dounia. On s'est toujours soutenu l'une l'autre durant nos études et encore plus lors de notre thèse et j'espère que notre duo d'enfer perdurera.

Bien sûr, je remercie ma famille et particulièrement ma mère qui m'a soutenue et aidée depuis toujours, ainsi que mes grand-parents et mes tantes sur lesquels j'ai toujours pu compter. Je mesure toute la chance que j'ai d'avoir une telle famille.

Table des matières

Introduction générale **9**

1 L'anisotropie d'échange **13**

1.1 Phénoménologie de l'anisotropie d'échange 13

1.2 Modèles théoriques 15

1.2.1 Modèle de Meiklejohn et Bean 15

1.2.2 Modèle de Néel et Mauri 18

1.2.3 Modèle de Malozemoff 20

1.2.4 Modèle de Takano *et al.* 21

1.2.5 Modèle de Koon *et al.* 22

1.2.6 Modèle de Nowak 23

1.3 Synthèse 24

1.4 Applications de l'anisotropie d'échange 25

1.4.1 Têtes de lecture de disques durs 25

1.4.2 Mémoires vives 26

1.4.2.1 Les mémoires statiques 27

1.4.2.2 Les mémoires dynamiques 28

1.4.2.3 Les mémoires magnétiques 29

1.4.2.4 Les autres types de mémoires 32

2 Simulation numérique **33**

2.1 Généralités sur la méthode Monte Carlo 33

2.2 Algorithme de Metropolis 34

2.3 Méthode Monte Carlo quantifiée en temps 36

2.4 Simulation de cycles d'hystérésis 37

3 Etude de bicouches FM/AFM : approche atomique **39**

3.1 Introduction 39

3.2 Modèle 40

3.2.1 Structure des bicouches 40

3.2.2 Conditions aux bords 41
3.2.3 Hamiltonien du système 42
3.2.3.1 Modèle de spins 42
3.2.3.2 Énergie d'échange 42
3.2.3.3 Énergie d'anisotropie 43
3.2.3.4 Énergie Zeeman 43
3.2.3.5 Énergie totale 43
3.3 Résultats 44
3.3.1 Couche antiferromagnétique bloquée 44
3.3.1.1 Etat fondamental comme état initial 45
3.3.1.2 État metastable comme état initial 48
3.3.1.3 Conclusion 50
3.3.2 Couche antiferromagnétique libre 53
3.3.2.1 Influence de la constante d'anisotropie de la couche AFM . 53
3.3.2.2 Effet de la température 60
3.3.2.3 Conclusion 64

4 Etude de bicouches FM/AFM : approche granulaire 66
4.1 Introduction 66
4.2 Modèle et simulation 69
4.2.1 Constantes d'anisotropie effectives 70
4.2.2 Intégrales d'échange effectives 71
4.2.3 Barrières d'énergie 71
4.2.4 Paramètres numériques 73
4.3 Calcul des températures de blocage 73
4.3.1 Bicouche sans interaction 74
4.3.2 Bicouche avec interactions 75
4.3.2.1 Grains de la couche FM 75
4.3.2.2 Grains de la couche AFM 76
4.4 Couches monodisperses 76
4.4.1 Constantes d'anisotropie indépendantes de la température 76
4.4.1.1 Aucune interaction 77
4.4.1.2 Interaction à l'interface FM/AFM 81
4.4.1.3 Interaction à l'interface FM/AFM et entre grains FM . . 85
4.4.2 Constantes d'anisotropie dépendantes de la température 90
4.4.2.1 Interaction à l'interface 90
4.4.2.2 Interaction à l'interface FM/AFM et entre grains FM . . 92
4.4.3 Conclusion sur les températures de blocage 95

4.5 Distribution volumique des grains 97
4.5.1 Construction de la structure 97
4.5.2 Aucune interaction 100
4.5.3 Interaction à l'interface FM/AFM 102
4.5.4 Interaction à l'interface FM/AFM et entre grains FM 106
4.5.5 Conclusion sur les températures de blocage 111
4.6 Distribution des températures de blocage 112
4.6.1 Procédure 112
4.6.2 Couche monodisperse versus couche polydisperse 113
4.6.3 Influence du couplage à l'interface FM/AFM 115
4.6.4 Influence de la distribution volumique 116
4.6.4.1 Influence du volume moyen et de l'écart-type 116
4.6.4.2 Influence de l'épaisseur de la couche AFM 118
4.6.5 Distribution bimodale (couche polydisperse) 119

Conclusion **125**

Liste des communications scientifiques **128**

Introduction

Il y a plusieurs millénaires, lorsque l'Homme commença à se civiliser celui-ci ne connaissait pas les chiffres. Il est alors fort probable qu'il utilisa ses mains comme outils de calcul, d'où le système décimal, puis il pensa à les "écrire" sur un support (entailles dans du bois, des os, ...). Possédant un nombre limité de doigts, l'Homme se mis a comptabiliser les choses (animaux, personnes, ...) en entassant des cailloux[1], des coquillages ou des osselets. Vînt ensuite des outils de calcul plus complexes comme l'abaque, qui connut diverses formes jusqu'au boulier. Le plus ancien calculateur connu fût la machine d'Anticythère (datée de 87 av. J.-C.). La première machine arithmétique, la Pascaline, fut quant à elle présentée par Blaise Pascal en 1642. C'est la première machine pouvant effectuer les quatre opérations arithmétiques.

Le premier système de programmation fut inventé en France au début du XVIIIe siècle, il s'agissait alors d'un métier à tisser. Utilisant d'abord un ruban perforé, il fut vite remplacé par des cartes perforées reliées entre elles puis par un cylindre métallique. C'est finalement Joseph Marie Jacquard qui lia le tout dans son métier à tisser qui fut par la suite adopté dans le monde entier. Une autre phase importante fut celle de la mécanographie née en 1890 pour les besoins du recensement américain.

Avant la Seconde Guerre mondiale, des ordinateurs dits analogiques existaient déjà. Ces derniers utilisaient des quantités physiques (tension, courant ou vitesse de rotation des axes) afin de représenter des nombres mais devaient être reprogrammés manuellement à chaque nouveau problème. L'ère des ordinateurs modernes ne commença qu'avec les grands développements liés à la Seconde Guerre mondiale, découlant notamment de la nécessité de déchiffrer les codes des communications militaires et de l'utilisation des premières simulations numériques, en 1943 à Los Alamos dans le cadre du projet Manhattan, qui aboutirent à la création des premières armes nucléaires. Ainsi les circuits électroniques, tubes à vide, condensateurs et relais remplacèrent leurs équivalents mécaniques et le calcul numérique remplaça le calcul analogique. Ce n'est donc qu'à la fin de la Seconde Guerre mondiale que l'informatique fut reconnue comme un domaine scientifique et technologique à part entière.

Avec la fin de la guerre débute une période de forte croissance économique. Durant

1. Le mot "calcul" vient du mot d'origine latine *calculus* qui signifie "petit caillou"

cette période, connues en France sous le nom des « Trente Glorieuses » (1945-1973), s'amorcèrent de grandes transformations scientifiques et techniques. Les progrès scientifiques prirent alors une dimension de plus en plus économique et sociale, et la recherche scientifique devint indissociable de ses applications technologiques. Elle dépendit de plus en plus d'une demande des Etats ou des Industries. De fait, les découvertes furent de plus en plus rapidement examinées à l'aune de leurs applications possibles. Ainsi, les domaines de l'atome et du nucléaire, de l'espace, de l'électronique et du magnétisme connurent d'importants progrès scientifiques et techniques.

La première génération d'ordinateurs (1936-1956) commença pendant la Seconde Guerre mondiale. Début 1946, Presper Eckert et John William Mauchly achevèrent l'ENIAC (Electronic Numerical Integrator And Computer). Premier ordinateur entièrement électronique, il fut commandé en 1942 par l'armée américaine. Néanmoins, celui ci faisait ses calculs en système décimal et non binaire. L'université de Manchester construisit, en 1948, le SSEM (Small-Scale Experimental Machine) qui était le premier ordinateur à programme stocké en mémoire. Il fut suivi, en 1949, par le Manchester Mark I qui inaugura un nouveau type de mémoire composée de tubes cathodiques. En février 1951, le premier modèle du Ferranti Mark I, version commerciale du Manchester Mark I devint le premier ordinateur commercial de l'histoire (il s'en vendra 9 jusqu'en 1957). Vers 1954, les mémoires magnétiques supplantèrent toute autre forme de stockage et devinrent dominantes au milieu des années 1960. La mémoire vive était alors faite de tores de ferrite dans lequel un bit d'information pouvait être codé par l'orientation de l'aimantation du tore. Le réseau de tores était desservi par un maillage de fils conducteurs qui permettaient, par induction magnétique, de lire ou d'écrire l'information stockée dans un tore particulier du réseau. La mémoire de masse consistait alors en des bandes magnétiques, ensuite en des disques amovibles puis fixes. C'est en 1956, qu'IBM sortit le premier disque dur, le Ramac 305 (Random Access Method of Accounting and Control).

C'est l'invention du transistor en 1947 qui fut à l'origine de la deuxième génération d'ordinateurs (1956-1963) et qui permit à l'informatique moderne d'émerger. En 1958, la Compagnie des Machines Bull (France) produisit le Gamma 60, premier ordinateur multitâches au monde et l'un des premiers à comporter plusieurs processeurs. Il fut livré en une quinzaine d'exemplaires à partir de 1960. En 1959, IBM lança l'IBM 1401, ordinateur commercial qui utilisait des cartes perforées (premier ordinateur vendu à plus de 10 000 exemplaires). En 1960, la Société d'Electronique et d'Automatisme (SEA) commercialise la CAB5009 (Calculatrice Automatique Binaire), véritable ordinateur personnel (plus d'une centaine d'exemplaires ont été commercialisés).

La troisième génération d'ordinateurs (1963-1971) est celle des ordinateurs à circuit intégré qui permit de rendre les appareils à la fois plus petits, plus complexes, plus économiques et plus fiables. C'est à cette date que l'utilisation de l'informatique explosa.

La quatrième génération (1971 à la fin des années 1980) vit l'apparition du micro-processeur et la miniaturisation des circuits, déjà amorcée depuis l'invention du circuit intégré. En janvier 1973 fut présenté le premier micro-ordinateur, le Micral conçu par François Gernelle de la société R2E. En 1975 sortit l'IBM 5100, machine totalement intégrée avec son clavier et son écran se contentant d'une prise de courant pour fonctionner. Fin des années soixante-dix, Steve Wozniak conçoit l'Apple I en 1976 puis l'Apple II en 1977 qu'il commercialisa avec Steve Jobs ce qui permit à Apple de dominer l'industrie de l'ordinateur personnel entre 1977 et 1983 (plus de deux millions d'Apple II furent vendus). En août 1981 sortit l'IBM PC (Personnal Computer) et en 1982 le PC devint l'architecture dominante sur le marché des ordinateurs personnels. En 1984, Apple lance le Macintosh, premier micro-ordinateur à succès utilisant une souris et une interface graphique. Les années soixante-dix furent également marquées par l'avènement des mémoires à semi-conducteurs entièrement électriques, plus denses et moins onéreuses que les mémoires à tores de ferrites.

Les avancées technologiques des trente dernières années, à savoir la miniaturisation des composants et l'avènement de la spintronique, née de la combinaison de l'électronique et du magnétisme, permirent la fabrication de nouvelles technologies plus économiques, plus rapides, plus compactes et de plus en plus performantes. La réduction des coûts de production et le besoin de plus en plus pressant de traitement des informations de toutes sortes (scientifiques, financières, commerciales, etc.) ont ainsi entraîné une diffusion de l'informatique dans toutes les couches de l'économie, comme dans la vie quotidienne, et on constate aujourd'hui un accroissement toujours plus important de la densité d'information qu'il faut alors stocker sur des supports devant être de plus en plus réduits.

De nombreux progrès furent effectués depuis les années cinquante en terme de stockage, tels les dispositifs de stockage de masse comme les disques durs où l'introduction des têtes de lecture à technologie GMR [2] basées sur les « vannes de spin » (1997), beaucoup plus sensibles aux champs magnétiques, permit de réduire fortement la dimension des bits, conduisant ainsi à une forte augmentation de la densité de stockage des disques durs. Ceux-ci tendent de nos jours à être remplacée par la technologie TMR [3] à base de jonctions tunnel, dont la magnétorésistance plus élevée permet d'augmenter d'avantage encore la sensibilité des têtes de lectures des disques durs. La capacité de stockage est ainsi passée de 0,023 Gb/pouce^2 juste avant l'apparition des têtes de lectures à "vanne de spin" à 500 Gb/pouce^2 de nos jours. Par ailleurs, un groupe de chercheurs d'IBM a réussi à développer une technique de stockage magnétique de données qui permet d'enregistrer des informations avec seulement 12 atomes alors qu'actuellement des milliers d'atomes sont nécessaires à la formation d'un "bit".

2. Giant Magnetoresistance
3. Tunnel Magnetoresistance

Les mémoires à accès aléatoire (RAM pour Random Acces Memory) aussi appelées mémoires vives (mémoires semi-conductrices) actuellement utilisées sont proches de leurs limites et présentent l'inconvénient d'être volatiles (perte des données en l'absence d'alimentation). C'est pourquoi de nouveaux types de mémoire sont à l'étude depuis plusieurs années tels que les mémoires vives magnétiques (MRAM).

Dans le cadre de cette thèse nous avons étudié, au moyen de simulations numériques, le phénomène d'anisotropie d'échange présent dans les éléments sensibles des MRAMs, mais également des têtes de lecture des disques durs. D'autres applications mettent à profit ce phénomène. Ainsi l'anisotropie d'échange peut être utilisée pour la réalisation d'aimants permanents, ou d'émmeteur-recepteur radiofréquence.

Ce manuscrit de thèse s'articule en quatre chapitres. Dans le premier chapitre, nous présenterons la phénoménologie de l'anisotropie d'échange ainsi que les différents modèles (les plus connus) ayant été élaborés. Le lecteur y trouvera également une description de certaines des applications technologiques mettant à profit l'anisotropie d'échange. Le second chapitre décrira quant à lui la technique de simulation utilisée, à savoir la méthode Monte Carlo.

Les éléments sensibles des MRAMs ne peuvent être élaborés par épitaxie par jet moléculaire dans le cadre d'une production de masse (commercialisation). D'autres méthodes, moins "propres", tel que la pulvérisation cathodique sont utilisées. Les échantillons réalisés peuvent alors présenter des interfaces plus ou moins rugueuses, influençant fortement les propriétés d'anisotropie d'échange. Il est donc très important de comprendre et quantifier ses effets et notamment quand ces derniers se trouvent couplés à celui de la température, pouvant ainsi conduire à des désordres magnétiques. De fait, le troisième chapitre portera sur les résultats obtenus dans le cadre d'une approche atomique. En particulier, cette étude à l'échelle atomique a été réalisée dans le but d'étudier l'influence de la rugosité d'interface, combinée à l'effet de la température, sur les propriétés d'anisotropie d'échange.

Or, ces structures à anisotropie d'échange étant de nature polycristalline, dans un grand nombre de cas, le comportement superparamagnétique des grains les constituant, et donc leur température de blocage, s'avère être d'une importance capitale. C'est pourquoi, nous discuterons dans le quatrième chapitre des résultats obtenus dans le cadre d'une approche granulaire. Cette dernière partie traitera de l'effet de la température et de la microstructure sur les propriétés d'anisotropie d'échange ainsi que des distributions de température de blocage.

Chapitre 1

L'anisotropie d'échange

1.1 Phénoménologie de l'anisotropie d'échange

L'anisotropie d'échange fut découverte au milieu des années cinquante par Meiklejohn et Bean [1], dans des nanoparticules de structure cœur-coquille (Co/CoO). Elle fut ensuite observée dans de nombreux autres systèmes de type cœur-coquille (Ni/NiO, Fe/FeO, Fe/Fe_2N, Fe/FeS ...), puis dans des films minces ferromagnétiques/antiferromagnétiques (FM/AFM) utilisant des couches AFM métalliques (FeMn, NiMn, IrMn, CrMnM, où M=Pt, Rh, Cu, Pd, Ir, Ni, Co, Ti, ...), oxydes (CoO, NiO, FeO) ou autres (FeF_2, MnF_2, CrN, FeS). Les couches FM utilisées peuvent être constituées de Fe, Ni ou Co, mais aussi de leurs alliages comme CoFe, $CoPt_3$, Co_2Mg ou NiFe ou encore de multicouches FM/matériau non magnétique (Co/Pt, Co/Pd ou Co/Au). Elle a également été observée dans des nanofils. L'anisotropie d'échange n'apparaît pas uniquement dans les systèmes FM/AFM, mais aussi dans les systèmes FM/ferrimagnétique (Ferri) [2], Ferri/AFM [3], Ferri/Ferri [4] ou FM/"verre de spin" [5, 6] et récemment dans les systèmes FM/semiconducteur magnétique [7].

Plusieurs modèles tentant d'en rendre compte ont été élaborés. Après description du principe de l'anisotropie d'échange, nous présenterons les modèles les plus pertinents.

Principe de l'anisotropie d'échange

L'anisotropie d'échange apparaît dans les systèmes comportant une interface FM/AFM, qui ont été refroidis sous champ à partir d'une température supérieure à la température de Néel de la couche antiferromagnétique (T_N) et inférieure à la température de Curie de la couche ferromagnétique ($T_C > T_N$), jusqu'à une température inférieure à T_N. Ce phénomène peut être expliqué qualitativement par l'existence d'une interaction d'échange

à l'interface FM/AFM et il se caractérise d'un point de vue macroscopique par un décalage en champ magnétique H_E, appelé champ d'échange, du cycle d'hystérésis. En effet, lorsqu'un champ magnétique est appliqué à une température T telle que $T_N < T < T_C$, les moments magnétiques FM s'alignent suivant le champ. L'AFM étant dans un état paramagnétique, ces moments magnétiques sont orientés aléatoirement (figure 1.1.1).

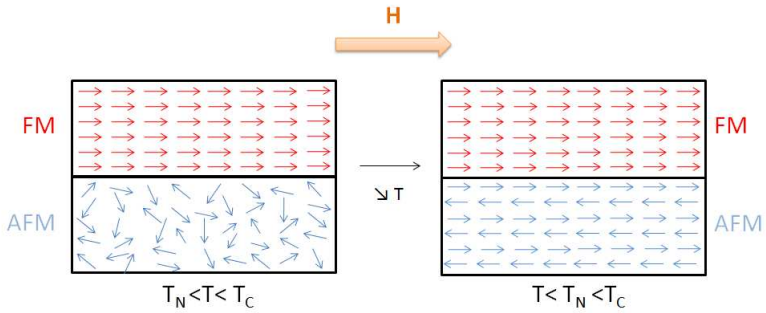


FIGURE 1.1.1 – Configuration magnétique d'une bicouche FM/AFM à la température T sous champ magnétique. Pour $T_N < T < T_C$ (à gauche) et pour $T < T_N < T_C$ (à droite).

Quand la température passe en dessous de T_N, du fait de l'interaction à l'interface FM/AFM, les moments magnétiques AFM près de l'interface s'alignent ferromagnétiquement ou antiferromagnétiquement avec les moments magnétiques FM selon le signe de l'interaction. Les autres moments magnétiques constituant l'AFM s'ordonnent de façon à respecter l'ordre AFM (figure 1.1.1). Partant de cet état, le champ magnétique est diminué. Lorsque le champ appliqué devient négatif, si l'anisotropie de la couche AFM est suffisamment importante, les moments magnétiques AFM restent fixes (figure 1.1.2 (i)) et exercent un couple sur les moments magnétiques FM. Ce couple s'oppose à leur retournement (figure 1.1.2 (ii)) et le champ nécessaire au retournement complet de la couche FM est alors plus important que si cette dernière n'était pas en contact avec une couche AFM (figure 1.1.2 (iii)). A l'inverse, lorsque l'on désire retrouver l'état original de la couche FM, le couple exercé est cette fois ci dans la même direction que celui du champ appliqué et le retournement se produit pour une valeur de champ plus faible (figure 1.1.2 (iv)). Il s'ensuit alors un décalage du cycle d'hystérésis. Dans la pratique, la bicouche est refroidit en dessous de la température de blocage de la couche AFM (T_B). Celle-ci est en générale inférieure à T_N et dépend bien évidemment de la nature de la couche AFM, mais aussi du couplage à l'interface FM/AFM, de l'épaisseur de la couche AFM ou encore du temps de mesure. En effet, la T_N de $Ir_{20}Mn_{80}$ est d'environ 700 K, alors que la T_B d'une bicouche IrMn (7 nm)/Co (3 nm) est d'environ 450 K. De même, la T_N de $Fe_{50}Mn_{50}$ est d'environ 500 K, alors que la T_B d'une bicouche FeMn (5 nm)/Co (3 nm) est d'environ 400 K [8, 9].

L'anisotropie d'échange dépend de plusieurs paramètres, tels que l'anisotropie des couches FM et AFM, la cristallinité et la texture des couches FM et AFM, l'état de l'inter-

face FM/AFM (rugosité, diffusion, etc), la configuration magnétique des spins, l'épaisseur des couches ou la température, dont le rôle n'est pas encore bien compris. Nous verrons l'impact de certains de ces paramètres sur l'anisotropie d'échange dans la suite de ce manuscrit.

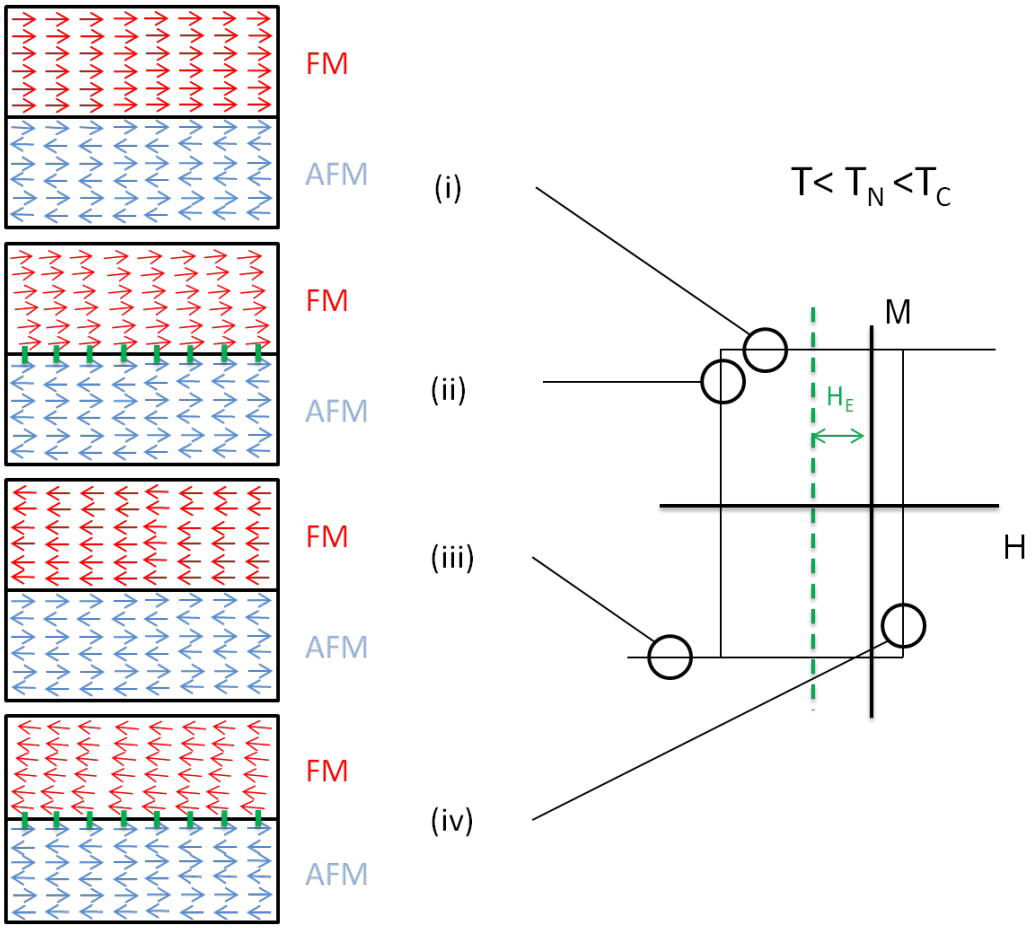


FIGURE 1.1.2 – Configurations magnétiques d'une bicouche FM/AFM, à la température T ($T < T_N$) à différentes étapes d'un cycle d'hystérésis ($J_{int} > 0$).

1.2 Modèles théoriques

1.2.1 Modèle de Meiklejohn et Bean

Meiklejohn et Bean [10] ont montré que l'on pouvait rendre compte du décalage du cycle en considérant une interaction d'échange à l'interface FM/AFM. Lorsque le champ magnétique externe est appliqué selon la direction de l'axe d'anisotropie commun aux couches FM et AFM, l'énergie magnétique par unité de surface s'exprime alors :

$$E = -\mu_0 H M_{FM} e_{FM} \cos(\beta) + K_{FM} e_{FM} \sin^2(\beta) + K_{AFM} e_{AFM} \sin^2(\alpha) - J_{int} \cos(\alpha - \beta)$$

où :

- H est le champ magnétique appliqué ;
- M_{FM}, K_{FM} et e_{FM} sont respectivement l'aimantation, la constante d'anisotropie par unité de volume et l'épaisseur de la couche FM ;
- β est l'angle entre l'aimantation de la couche FM et son axe d'anisotropie (figure 1.2.1) ;
- K_{AFM} et e_{AFM} sont respectivement la constante d'anisotropie par unité de volume et l'épaisseur de la couche AFM ;
- α est l'angle entre "l'aimantation" de la couche AFM et son axe d'anisotropie (figure 1.2.1) ;
- J_{int} est l'intégrale d'échange à l'interface par unité de surface.

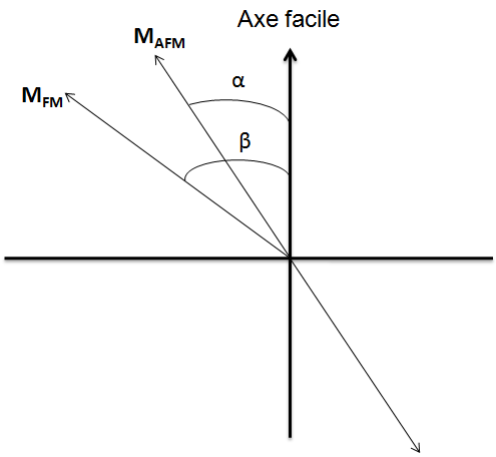


FIGURE 1.2.1 – Schéma introductif des angles α et β.

Ce modèle repose sur un certain nombre d'hypothèses. Le retournement d'aimantation est uniforme. La couche AFM est non compensée (l'aimantation à la surface est non nulle contrairement au cas d'un AFM compensé, *cf.* figure 1.2.2) et bloquée (forte anisotropie, $\alpha = 0$ pour $J_{int} > 0$ et $\alpha = \pi$ pour $J_{int} < 0$). De plus l'interface est considérée comme parfaitement plane.

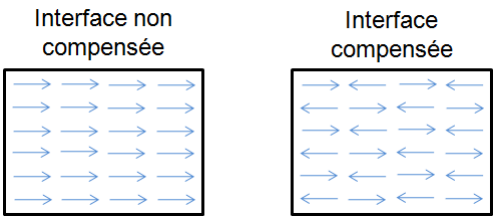


FIGURE 1.2.2 – Schéma de l'arrangement des moments AFM pour une interface non compensée (à gauche) et compensée (à droite).

Les expressions des champs de retournement sont obtenues à partir de la minimisation de l'énergie par rapport à β :

$$\frac{\partial^2 E}{\partial \beta^2} = 2K_{FM}e_{FM}(2cos^2(\beta) - 1) + \mu_0 H M_{FM} e_{FM} cos(\beta) + J_{int} cos(\alpha - \beta) > 0$$

L'énergie possède des extrema correspondant à la saturation dans les directions $\beta = 0$ et $\beta = \pi$ de la couche FM. La direction $\beta = 0$ est stable tant que $2K_{FM}e_{FM} + \mu_0 H M_{FM} e_{FM} + J_{int} cos(\alpha) > 0$ et la direction $\beta = \pi$ est stable tant que $2K_{FM}e_{FM} - \mu_0 H M_{FM} e_{FM} - J_{int} cos(\alpha) > 0$, ce qui donne pour les champs de retournement :

$$\mu_0 H_C^- = -\frac{2K_{FM}e_{FM} + |J_{int}|}{M_{FM}e_{FM}} < 0 \qquad \mu_0 H_C^+ = \frac{2K_{FM}e_{FM} - |J_{int}|}{M_{FM}e_{FM}} \lesseqgtr 0 \tag{1.2.1}$$

Étant donné que les champs de retournement ne sont pas identiques en valeur absolue, cela induit un décalage du cycle d'hystérésis. Le champ d'échange défini par $H_E = \frac{H_C^- + H_C^+}{2}$ est alors proportionnel à $|J_{int}|$:

$$\mu_0 H_E = -\frac{|J_{int}|}{M_{FM}e_{FM}} < 0 \tag{1.2.2}$$

La condition nécessaire à l'observation de l'anisotropie d'échange est :

$$K_{AFM}e_{AFM} > |J_{int}| \tag{1.2.3}$$

En effet, si cette relation n'est pas satisfaite, les moments magnétiques de la couche AFM sont entraînés lors du retournement de l'aimantation de la couche FM conduisant ainsi à une absence d'anisotropie d'échange et à une augmentation de la coercitivité.

Les valeurs des champs d'échange obtenues avec ce modèle sont de 2 à 3 ordres de grandeurs supérieurs aux valeurs expérimentales. En effet, ce modèle ne prend pas en compte certains paramètres tels que la rugosité interfaciale ou la structure en grains des couches, dont l'impact sur les valeurs du champ d'échange est important. C'est pourquoi, d'autres modèles plus "réalistes" ont par la suite été élaborés afin, notamment, de prendre en compte la présence de paroi de domaine et ce d'autant plus si les couches considérées sont épaisses.

1.2.2 Modèle de Néel et Mauri

Afin de corriger l'écart entre les valeurs expérimentales et théoriques, Néel [11], puis Mauri *et al.* [12], ont élaboré un modèle qui conduit à la formation d'une paroi de domaine parallèle à l'interface (paroi de Néel) lors du retournement de la couche FM. Cette paroi peut se développer dans la couche FM ou la couche AFM. Ainsi, l'énergie d'échange interfaciale n'est plus concentrée à l'interface FM/AFM mais sur la largeur de la paroi de domaine $\pi\sqrt{\frac{A_{AFM}}{K_{AFM}}}$, où A_{AFM} est la constante d'échange de la couche AFM (en J/m). Mauri *et al.* examinent le cas où la paroi se développe dans l'AFM (c'est à dire que l'épaisseur de la couche FM est plus faible que l'épaisseur requise pour le développement d'une paroi de Néel dans la couche FM). La couche AFM est considérée comme infiniment épaisse et son axe d'anisotropie est l'axe Oz (identique à celui de la couche FM). L'interface est non compensée (figure 1.2.3).

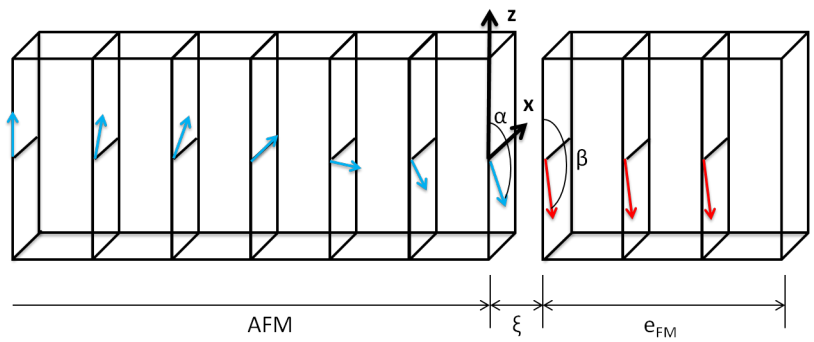


FIGURE 1.2.3 – Représentation schématique de la paroi de domaine créée dans la couche AFM lors du retournement de l'aimantation de la couche FM d'après le modèle de Néel/Mauri (un seul sous réseau AFM est représenté).

A une distance ξ de la couche AFM se trouve une couche FM d'épaisseur e_{FM}. Dans le cas où les deux couches sont de structure cubique simple (CS), de paramètre de maille a, ξ correspond alors à a. Tous les spins de la couche FM font un angle β avec l'axe Oz. Les spins de la couche interfaciale AFM font un angle α avec l'axe Oz. L'énergie magnétique de l'interface est donc :

$$E = 2\sqrt{A_{AFM}K_{AFM}}(1-cos\alpha)+\frac{A_{int}}{\xi}[1-cos(\alpha-\beta)]+K_{FM}e_{FM}cos^2\beta+\mu_0 H M_{FM} e_{FM}(1-cos\beta)$$

où A_{int} est la constante d'échange à l'interface FM/AFM ($\propto J_{int}/a$). Ainsi, l'énergie en unité de $2\sqrt{A_{AFM}K_{AFM}}$ ($2\sqrt{A_{AFM}K_{AFM}}$ est l'énergie par unité de surface d'une paroi de

domaine à 90° dans la couche AFM) est :

$$E^* = \frac{E}{2\sqrt{A_{AFM}K_{AFM}}} = (1 - cos\alpha) + \lambda[1 - cos(\alpha - \beta)] + \mu\, cos^2\beta + \kappa\,(1 - cos\beta) \quad (1.2.4)$$

où $\lambda = \dfrac{A_{int}}{2\xi\sqrt{A_{AFM}K_{AFM}}}$, $\mu = \dfrac{K_{FM}e_{FM}}{2\sqrt{A_{AFM}K_{AFM}}}$ et $\kappa = \dfrac{\mu_0 H M_{FM} e_{FM}}{2\sqrt{A_{AFM}K_{AFM}}}$.

Les cycles d'hystérésis de la couche FM sont calculés à partir de l'équation (1.2.4) en déterminant les angles α_0 et β_0 pour lesquels l'énergie E^* est minimale. $M_{FM}cos\beta_0$ est l'aimantation de la couche FM le long de l'axe Oz.

Pour $\lambda = 0$, la courbe d'aimantation obtenue est de type Stoner-Wohlfarth. Pour $\lambda \neq 0$, les courbes sont modifiées par la présence de la couche AFM. Les cas limites d'un faible couplage ($\lambda \ll 1$) et d'un fort couplage ($\lambda \gg 1$) sont obtenus en considérant que pour $\lambda \ll 1$, α est très petit et que pour $\lambda \gg 1$, $(\alpha - \beta)$ est très petit. Ainsi, en négligeant les termes constants, nous obtenons :

$$E^* = \mu\, cos^2\beta - (\kappa + \lambda)\, cos\beta \text{ pour } \lambda \ll 1 \quad (1.2.5)$$

$$E^* = \mu\, cos^2\beta - (\kappa + 1)\, cos\beta \text{ pour } \lambda \gg 1 \quad (1.2.6)$$

Après minimisation de l'énergie E^*, nous obtenons alors deux expressions du champ d'échange :

$$\mu_0 H_E = -\frac{A_{int}}{\xi M_{FM} e_{FM}} \text{ pour } \lambda \ll 1 \quad (1.2.7)$$

$$\mu_0 H_E = -2\frac{\sqrt{A_{AFM}K_{AFM}}}{M_{FM}e_{FM}} \text{ pour } \lambda \gg 1 \quad (1.2.8)$$

Il est important de noter qu'en répartissant l'énergie sur une paroi de largeur $\delta = \pi\sqrt{\frac{A_{AFM}}{K_{AFM}}}$ au lieu de l'interface, l'énergie d'échange est diminuée d'un facteur $\delta/a \approx 100$ ce qui permet d'obtenir des valeurs de champ d'échange beaucoup plus conformes à la réalité.

1.2.3 Modèle de Malozemoff

Bien que le modèle de Néel/Mauri permette d'obtenir des valeurs du champ d'échange réalistes, celui-ci ne peut expliquer la présence d'anisotropie d'échange lorsque l'épaisseur de la couche AFM est plus faible que la largeur d'une paroi de domaine ($<$ 2,5 nm). De plus, il considère un AFM non-compensé, alors que l'on observe parfois de l'anisotropie d'échange dans des systèmes dont l'AFM est compensé [9], et une interface parfaitement plane.

Dans son modèle, inspiré des travaux de Irmy et Ma [13], Malozemoff [14] considère une interface FM/AFM compensée et rugueuse ou présentant des inhomogénéités chimiques à l'échelle atomique. Le système est de structure CS de paramètre a. Ces défauts de surface créent des sites localisés d'énergie interfaciale unidirectionnelle, de part le couplage des moments AFM non compensés avec les moments de la couche FM. Considérant que la rugosité est aléatoire, l'énergie de couplage d'interface locale σ_l est également aléatoire et est donnée par :

$$\sigma_l = \pm \frac{zJ_{int}}{a^2} \tag{1.2.9}$$

où J_{int} est l'intégrale d'échange à l'interface et z la coordinence des atomes de la couche AFM à l'interface FM/AFM (il caractérise la rugosité de la surface de la couche AFM).

La théorie du champ aléatoire considère que la moyenne de l'énergie interfaciale est non nulle, particulièrement quand cette moyenne est faite sur un faible nombre de sites. Ainsi sa moyenne, dans une région de surface L^2, est $\sigma \sim \sigma_l/\sqrt{N}$ ($N = L^2/a^2$ est le nombre de sites contenus dans cette région). Étant donné le caractère aléatoire du champ et supposant un film FM monodomaine, la couche AFM se divise alors en domaines afin de minimiser l'anisotropie unidirectionnelle aléatoire (figure 1.2.4).

L'équilibre est atteint lorsque $L \approx \pi\sqrt{\frac{A_{AFM}}{K_{AFM}}}$. De fait, la densité d'énergie d'échange interfaciale moyenne $\Delta\sigma$ est :

$$\triangle\sigma = 4\frac{zJ_{int}}{\pi a L} \tag{1.2.10}$$

Ceci nous donne pour l'expression du champ d'échange H_E :

$$H_E = \frac{\triangle\sigma}{2M_{FM}e_{FM}} = 2z\frac{\sqrt{A_{AFM}K_{AFM}}}{\pi^2 M_{FM}e_{FM}} \tag{1.2.11}$$

Cette expression est très similaire à celle obtenue par Mauri et *al.* pour le cas d'un fort couplage à l'interface, mais contrairement au modèle de Néel/Mauri, la paroi de domaine est perpendiculaire à l'interface. Notons que ce modèle suppose que les domaines de l'AFM ne subissent pas de réarrangement lors de l'application d'un champ magnétique et n'est valable que pour une couche AFM monocristalline ou pour un grain.

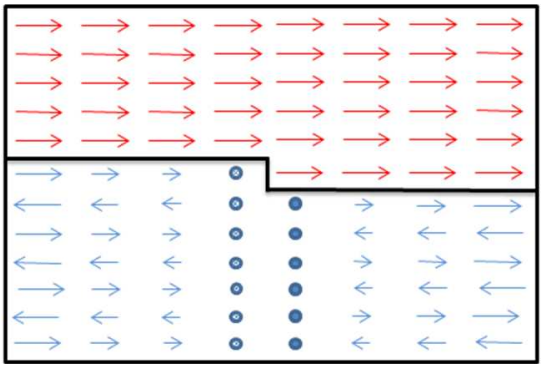


FIGURE 1.2.4 – Paroi de domaine perpendiculaire à l'interface créée dans la couche AFM au niveau d'une marche atomique.

1.2.4 Modèle de Takano *et al.*

Par des mesures d'aimantation effectuées sur une multicouche $[CoO_{10.3\ nm}/MgO_{3\ nm}]_{15}$ sous champ et hors champ (FC et ZFC) refroidi entre 350 et 10 K, Takano et *al.* mettent en évidence deux contributions magnétiques, l'une à haute température proche de la température de Néel relative au volume et l'autre à basse température, très en deçà de la température de Néel, qu'ils attribuent à l'interface [15]. Les auteurs montrent par des mesures de diffraction de neutrons que les moments non compensés représentent 1% des spins contenus dans une monocouche de CoO. Cette petite fraction de spins correspond ainsi à la partie frustrée des spins de l'interface. La variation thermique du champ d'échange (H_E), de bicouches $[\text{permalloy}_{30\ nm}/CoO_{x\ nm}]$ ($10 < x < 300$) montre une très forte similitude avec les courbes précédentes (FC) et notamment l'existence d'une composante magnétique à basse température, permettant aux auteurs de suggérer que les spins non compensés de l'AFM situés à l'interface FM/AFM jouent un rôle majeur dans le mécanisme responsable de l'anisotropie d'échange. La corrélation entre ces deux séries de courbes suggère ainsi une relation directe entre la densité de spins non compensés situés à l'interface FM/AFM et la valeur du champ d'échange. De plus, Takano *et al.* ont mis en évidence l'existence d'une relation linéaire entre la valeur du champ d'échange et l'inverse

du diamètre des grains de CoO ($H_E \propto L^{-1}$). Le modèle de Takano qui résulte de cette observation permet de confirmer cette hypothèse.

Dans leur modèle, Takano et *al.* prennent en compte un AFM compensé et mettent en évidence un décalage du cycle, que l'on n'obtient pas lorsque l'on considère les modèles de Meiklejohn/Bean et Néel/Mauri. Dans ce modèle, basé sur le calcul de la densité de spins interfaciaux non compensés, les auteurs supposent que l'orientation des moments magnétiques change de 180° à chaque marche atomique, créant ainsi des non compensations locales (figure 1.2.5). De fait, il existe un moment magnétique non nul à l'interface dans l'AFM qui peut alors exercer un couple sur l'aimantation de la couche FM adjacente. Les résultats obtenus montrent que le nombre de spins non compensé ($\langle \Delta N \rangle$) est proportionnel à la racine carré du diamètre des grains ($\langle \Delta N \rangle \propto L^{0,5}$) pour le cas d'une interface parfaitement régulière sans rugosité, alors que si l'on ajoute de rugosité, le nombre de spins non compensé est proportionnel au diamètre des grains ($\langle \Delta N \rangle \propto L^{0,90 \sim 1,04}$). Or le champ d'échange étant proportionnel à $\langle \Delta N \rangle / L^2$, le cas d'une interface rugueuse conduit bien à $H_E \propto L^{-1}$en accord avec les observations expérimentales. Ainsi, dans ce modèle, le décalage du cycle d'hystérésis est dû aux moments magnétiques interfaciaux non compensés induits par la dimension des grains et par la rugosité. Cette faible densité de moments magnétiques interfaciaux donne ainsi des valeurs du champ d'échange en accord avec les valeurs expérimentales.

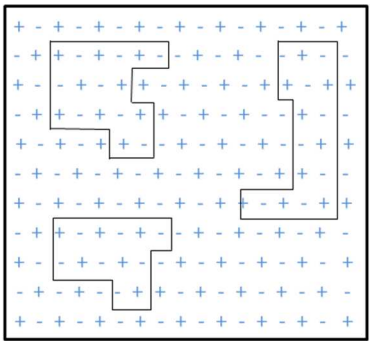


FIGURE 1.2.5 – Représentation schématique de l'effet de la rugosité sur l'orientation des spins interfaciaux AFM (les symboles + et − représentent les deux directions opposées des spins). Les traits continus représentent les marches (la hauteur des marches est d'un plan atomique).

1.2.5 Modèle de Koon *et al.*

Koon [16] a réalisé des simulations numériques micromagnétiques sur un modèle simple de bicouche FM/AFM. Dans ce modèle, la couche AFM, complètement compensée, présente une anisotropie uniaxiale selon [001]. La couche FM quant à elle est isotrope et l'interface est considérée comme plane.

Les calculs de densité d'énergie en fonction de l'angle entre l'aimantation de la couche FM et l'axe facile de la couche AFM présentent un minimum pour un angle de 90°, c'est-à-dire pour un couplage perpendiculaire (figure 1.2.6).

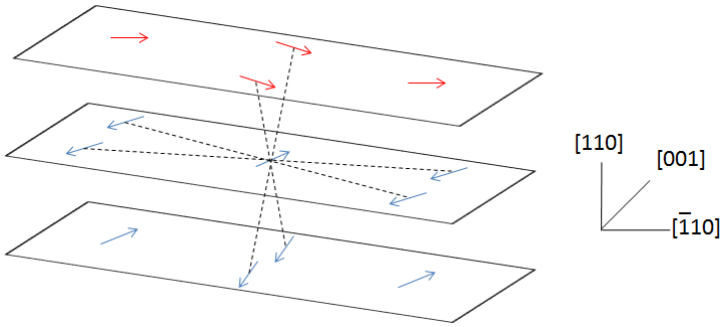


FIGURE 1.2.6 – Représentation schématique du couplage à 90° prédit par le modèle de Koon.

Du fait de ce couplage, les spins de la couche AFM sont déviés dans la direction de la couche FM, cette déviation décroissant rapidement avec les plans AFM plus profonds (la déviation devient quasi nulle au delà de 5 - 6 plans atomiques). Le moment magnétique interfacial est donc non nul selon l'axe de la couche FM bien que l'interface soit compensée. Ainsi, la frustration d'une interface FM/AFM complètement compensée ne conduit pas à une absence d'anisotropie d'échange comme cela fut suggéré dans les modèles précédents.

Ce modèle fut contredit par les travaux de Schultess et Butler [17] qui montrèrent que la couche AFM ne pouvait être rigide pour des valeurs d'anisotropie réaliste. Ainsi les sous réseaux de la couche AFM sont entraînés lors du retournement de la couche FM impliquant une absence d'échange et un renforcement de la coercitivité.

1.2.6 Modèle de Nowak

En 2002, Nowak *et al.* [18] proposèrent un autre modèle, appelé "Domain State Model". Les auteurs considèrent une couche AFM "diluée" dans un champ externe, c'est-à-dire que certains atomes magnétiques sont remplacés par des atomes non magnétiques ou par des défauts dans la couche AFM (et pas uniquement à l'interface), répartis aléatoirement. Ce modèle est basé sur la méthode Monte Carlo.

Dans ce modèle, l'anisotropie d'échange provient de la formation de domaines dans la couche AFM. Cette configuration en domaines se développant au cours du processus de refroidissement (parfois sous champ) de la bicouche, est favorisée par cette "dilution" de la couche AFM. En effet, les parois de domaines passent préférentiellement par les atomes

non magnétiques, réduisant considérablement l'énergie nécessaire à la création d'une paroi (figure 1.2.7). Les résultats obtenus sont en accord avec les résultats expérimentaux pour le système Co/CoO [18].

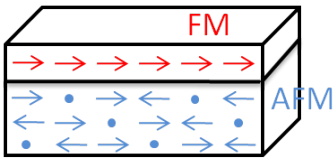


FIGURE 1.2.7 – Schéma de la bicouche FM/AFM dans le modèle de Nowak (les points représentent les atomes non magnétiques).

1.3 Synthèse

Comme nous venons de le voir dans les modèles de Meiklejohn/Bean, Néel/Mauri et Malozemoff, le champ d'échange est inversement proportionnel à l'épaisseur de la couche FM ce qui a également été montré expérimentalement [19, 20].

En ce qui concerne la dépendance du champ d'échange avec l'épaisseur de la couche AFM, les phénomènes sont beaucoup plus complexes. Le champ d'échange est nul pour les faibles épaisseurs. En effet, en dessous d'une certaine épaisseur e_{AFM}, la couche perd son caractère AFM et voit sa température de Néel diminuer [21, 22], de plus la condition (1.2.3) peut ne plus être satisfaite. Puis, lorsque e_{AFM} augmente, le champ d'échange augmente assez rapidement et atteint un plateau [23, 24, 25].

La configuration à l'interface a également une forte influence sur le champ d'échange, comme nous venons de le voir au travers des différents modèles. Le champ d'échange peut être dû à des réarrangements interfaciaux ayant pour origine le désaccord de maille entre la couche FM et AFM, ou la formation de domaines (modèle de Malozemoff), ou des couplages non colinéaires entre la couche FM et la couche AFM (modèle de Koon). L'orientation des spins AFM à l'interface peut être planaire (*e.g.* : Co/IrMn) ou perpendiculaire (*e.g.* : $[Pt/Co]_n$/IrMn) donnant lieu à des valeurs du champ d'échange différentes selon le système étudié. La rugosité à également un fort impact sur l'anisotropie d'échange comme nous l'avons vu dans les modèles de Malozemoff et de Takano. Nous étudierons sont impact sur les propriétés d'anisotropie d'échange dans le chapitre 3.

La texture de l'AFM peut également impacter l'anisotropie d'échange [22, 26, 27, 28]. Cette texture pouvant, pour un même matériau, être différente selon les conditions d'élaboration [29]. La taille de grains des systèmes polycristallins a également une influence sur les propriétés d'anisotropie d'échange comme nous le verrons dans le chapitre 4.

1.4 Applications de l'anisotropie d'échange

L'anisotropie d'échange trouve principalement ses applications dans le domaine de la spintronique, plus précisément dans les dispositifs magnétorésistifs. Nous présentons ici deux exemples d'application, les têtes de lecture des disques durs et les mémoires vives magnétiques.

1.4.1 Têtes de lecture de disques durs

Le premier disque dur, le RAMAC 305 (Random Access Method of Accounting and Control), commercialisé en 1956, dont la capacité était environ de 5 Mo pesait une tonne, prenait la place de deux réfrigérateurs et coûtait la modique somme de 50 000 dollars. De nos jours les disques durs atteignent des capacités de 0,5 Tb/pouce^2 avec des taille, poids et prix beaucoup plus faibles que leur ancêtre et de récentes études, menées à Singapour [30], laissent espérer des capacités de stockage de l'ordre de 3,3 Tb/pouce^2.

L'augmentation de la capacité des disques durs fut progressive. Au début des années 90 apparurent les têtes de lecture à magnétorésistance anisotrope, puis la découverte de la magnétorésistance géante en 1988, par A. Fert [31] et P. Grunberg [32] (prix Nobel de physique en 2007), permit de développer des têtes de lecture magnétorésistives à "vanne de spin" qui furent commercialisées en 1997. Une "vanne de spin" est constituée de deux couches magnétiques séparées par une couche métallique non magnétique (figure 1.4.1).

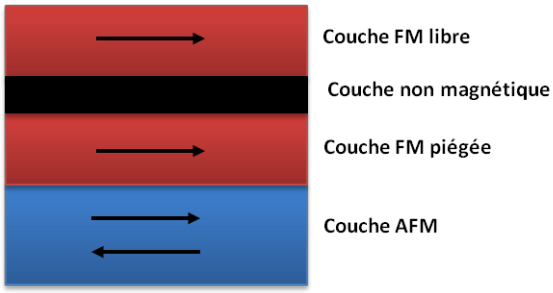


FIGURE 1.4.1 – Structure d'une "Vanne de spin".

L'une des couches, dite libre, porte une aimantation susceptible de se réorienter sous l'application d'un champ magnétique externe. La seconde, dite piégée, porte une aimantation fixe. Le piégeage de cette couche est obtenu par le couplage de celle-ci avec une couche AFM. C'est donc ce couplage qui fait intervenir le phénomène d'anisotropie d'échange dans les têtes de lectures. La configuration idéale consiste à choisir des matériaux FM et AFM permettant d'avoir un champ d'échange supérieur au champ coercitif afin de n'obtenir qu'un seul état rémanent (figure 1.4.2).

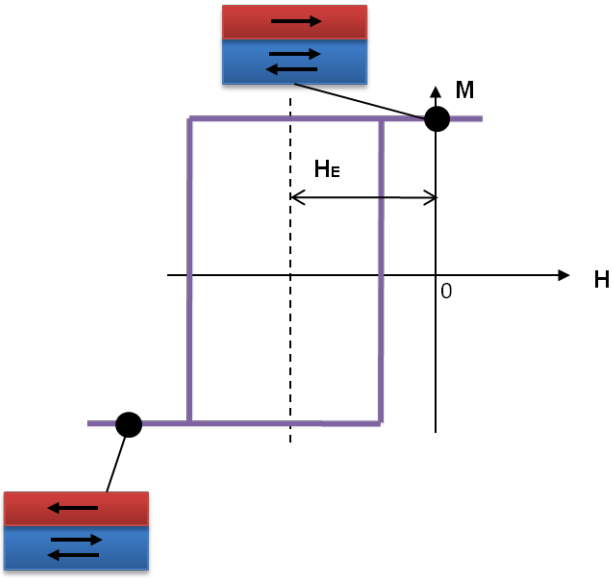


FIGURE 1.4.2 – Cycle d'hystérésis ne présentant qu'un seul état rémanent.

L'application d'un champ magnétique fait basculer l'aimantation de la couche libre d'une configuration antiparallèle à une configuration parallèle conduisant à une diminution importante de la résistance de la multicouche. Les deux valeurs de résistance correspondant à ces deux configurations magnétiques sont ensuite traduites par un 0 ou un 1. Les "vannes de spin" peuvent donc fonctionner comme capteurs magnétorésistifs et sont les éléments sensibles des têtes de lecture des disques durs [33, 34, 35].

1.4.2 Mémoires vives

A l'heure actuelle la mémoire vive [1] des ordinateurs, nommée RAM (Random Access Memory), présente l'inconvénient d'être volatile. On distingue généralement deux grandes catégories de mémoires vives : les mémoires dites statiques, SRAMs (Static Random Access Memory) et les mémoires dites dynamiques, DRAMs (Dynamic Random Access Memory). Rapides mais onéreuses, les SRAMs sont notamment utilisées pour les mémoires caches du processeur. Peu coûteuses, les DRAMs sont principalement utilisées pour la mémoire centrale de l'ordinateur. Nous allons présenter le fonctionnement de ces différentes mémoires ainsi que celui d'une nouvelle génération de RAM, les mémoires vives magnétiques, MRAM (Magnetic Random Access Memory). Ces mémoires associent les caractéristiques principales de la SRAM et de la DRAM, à savoir la vitesse et l'endurance avec la non-volatilité de la Flash [2].

1. C'est la mémoire dans laquelle un ordinateur place les données lors de leur traitement
2. les mémoires Flash sont intrinsèquement non volatiles et de capacité très élevée ($< 3F^2$), mais très lentes ($\sim$ 100 µs) et d'endurance limitée ($\sim 10^5$ cycles en raison du vieillissement de l'oxyde de grille)

1.4.2.1 Les mémoires statiques

Le “bit” mémoire d’une SRAM est composé d’une bascule. Chaque bascule contient 6 transistors (on parle alors de 6T-SRAM) (figure 1.4.3).

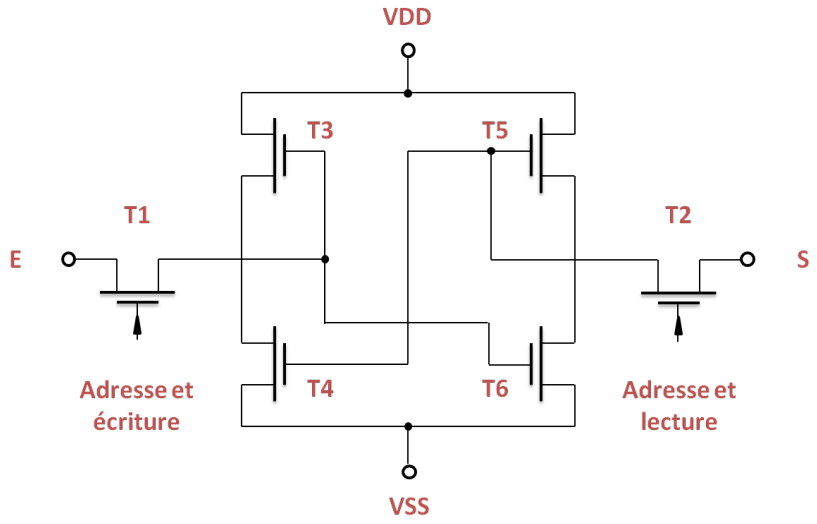


FIGURE 1.4.3 – Point mémoire d’une mémoire vive statique (SRAM).

Les transistors T3, T4, T5 et T6 constituent la cellule mémoire SRAM proprement dite : c’est là qu’est conservé le bit (0 ou 1). Ce montage est composé de deux sous-circuits composés de deux transistors permettant d’inverser la tension placée en entrée (E) : si cette tension représente un 1, alors la sortie (S) vaut zéro. Et inversement, si l’entrée vaut zéro, la sortie vaut 1. Ce montage est ce que l’on appelle un circuit inverseur ou une porte NON. Avec ce circuit, la sortie sera connectée soit à la tension d’alimentation (VDD) et fournira un 1 en sortie, soit à la masse (VSS) de façon à fournir un zéro en sortie. Cependant, ce circuit ne fait qu’inverser le bit passé en entrée. Afin de conserver ce bit, il faut alors l’inverser une seconde fois grâce au deuxième sous-circuit (la sortie du premier est reliée à l’entrée du second). Ainsi, le premier inverseur lit le bit et fournit l’inverse sur sa sortie. Le second inverseur va alors prendre cet inverse et le ré-inverser, on va donc retrouver le bit de départ sur en sortie. Le transistor T1 sert à sélectionner la mémoire pour y écrire une donnée, alors que le transistor T2 sert à sélectionner la cellule pour lire son contenu.

La mémoire statique est volatile et nécessite en permanence une alimentation (polarisation du circuit) sous peine de voir les informations perdues. La mémoire statique est onéreuse, mais rapide que la mémoire dynamique (temps d’écriture de 8 ns contre 60 ns pour une DRAM) et moins consommatrice d’énergie que la mémoire dynamique (7×10^{-16} J/bit pour les SRAM contre 5×10^{-15} J/bit pour les DRAM).

1.4.2.2 Les mémoires dynamiques

La DRAM est constituée de centaines de milliers de petits condensateurs. Lorsque le condensateur est chargé, son état logique est égal à 1, sinon il est égal à 0. Ainsi à chaque condensateur est associé un “bit”. Le problème de ces mémoires réside dans le fait que les condensateurs se déchargent. Il faut donc constamment relire chaque cellule puis recharger le condensateur s’il s’agit d’un état logique 1 afin de ne pas perdre l’information. C’est ce que l’on appelle le « rafraîchissement ». Il se fait à intervalle de temps régulier ($\sim$ 15 ns). Chaque condensateur est couplé à un transistor (de type MOS) permettant d’accéder et/ou de modifier l’état du condensateur. Ces transistors sont rangés sous forme de tableau (matrice). Chaque point mémoire est donc caractérisé par une adresse, correspondant à un numéro de ligne et un numéro de colonne (figure 1.4.4). L’accès à un point mémoire n’est pas instantané mais nécessite un certain temps, appelé temps de latence. Par conséquent l’accès à un “bit”, nécessite un temps égal au temps de cycle auquel il faut ajouter le temps de latence soit environ 60 ns.

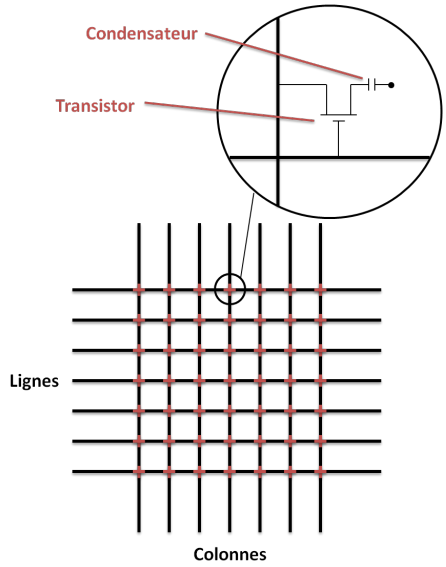


FIGURE 1.4.4 – Géométrie d’une mémoire vive dynamique (DRAM).

Malgré ces contraintes de rafraîchissement, ces mémoires sont très utilisées car elles sont nettement moins coûteuses que les mémoires statiques. En effet, la cellule mémoire élémentaire de la DRAM étant très simple (un transistor couplé à son nano-condensateur), elle ne nécessite que peu de silicium. De plus, la taille de ces cellules est de l’ordre de 40 nm contre 500 nm pour les SRAM, les DRAM peuvent ainsi stocker beaucoup plus de bits que la SRAM.

1.4.2.3 Les mémoires magnétiques

Une MRAM (Magnetic Random Access Memory) est constituée d'un réseau de jonctions tunnel magnétiques (JTM) reliées par des lignes d'écriture et de lecture. La structure des JTMs est similaire à celle des "vannes de spin", mais la couche métallique non magnétique est remplacée par une couche isolante (figure 1.4.5).

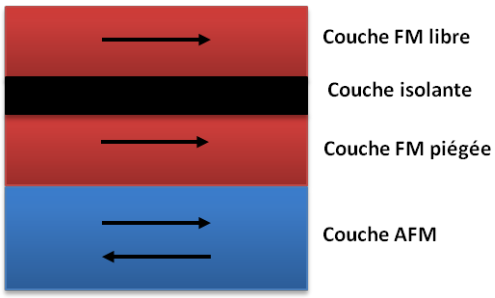


FIGURE 1.4.5 – Structure d'une jonction tunnel magnétique.

Comme les "vannes de spin", les JTMs présentent de la magnétorésistance, la magnétorésistance tunnel [36]. Contrairement aux mémoires précédentes, l'information n'est plus stockée sous forme de charge électrique mais sous forme d'aimantation. Selon les configurations parallèle ou antiparallèle de l'aimantation des couches FM, on obtient deux valeurs de résistance tunnel différentes auxquelles on associe les deux états logiques 0 et 1. Ainsi, même en l'absence d'alimentation, les données perdurent. Il n'est alors plus nécessaire de stocker les données sur le disque dur à l'arrêt de l'ordinateur et de les recharger à la mise sous tension, éliminant ainsi la lenteur au démarrage. De plus et contrairement aux mémoires semiconductrice qui consomment de l'énergie en période de veille de l'ordinateur, les MRAMs ne consomment de l'énergie que pendant le travail effectif. Cela conduit à un allongement significatif de la durée de vie de la batterie d'un ordinateur.

Plusieurs types de MRAMs existent. Les plus anciennes sont les MRAMs avec retournement d'aimantation induit par champ (MRAM-FIMS [3]) dites de première génération, les MRAMs avec retournement d'aimantation activé thermiquement (MRAM-TAS [2]) et les MRAMs à transfert de spin (MRAM-STT [2]) [35, 37, 38].

MRAM de première génération (MRAM-FIMS)

Dans ce type de MRAM, l'écriture se fait par un champ induit (Field-Induced Magnetic Switching). Les JTMs sont reliées par des lignes de courant ("Word lines" et "Bit lines"), croisées (une au-dessus et une en dessous de la JTM), dans lesquelles sont envoyées, simultanément, des impulsions de courant (figure 1.4.6).

3. Notations propre à SPINTEC

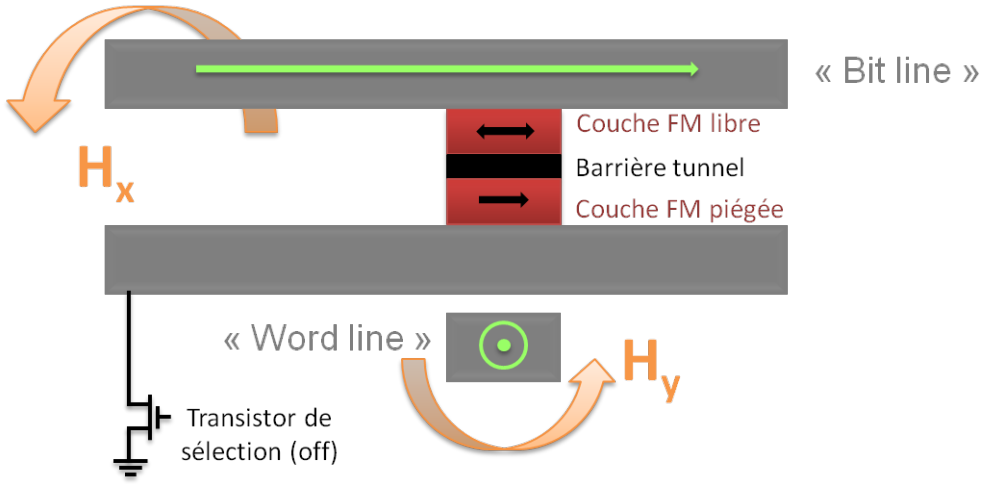


FIGURE 1.4.6 – Principe d'écriture d'une MRAM-FIMS.

Celles-ci génèrent un champ magnétique permettant l'écriture du "bit". Seule la JTM se trouvant au croisement des deux lignes sélectionnées est théoriquement concernée lors de l'écriture. Dans la pratique, ce type de MRAM rencontre deux problèmes essentiels. D'une part, les courants nécessaires à l'écriture s'avèrent être trop importants et d'autre part, la commutation n'affecte pas toujours la cellule de base sélectionnée conduisant à des erreurs de donnée.

A la lecture le transistor MOS est à l'état passant (on), permettant le passage d'un courant à travers la JTM. La résistance de la jonction, différant selon l'orientation de l'aimantation de la couche libre, est alors traduite par un 0 ou un 1.

Pour les deux types de mémoire présentées ci-après, le processus de lecture est identique, seul le processus d'écriture est différent.

MRAM-TAS

Dans ce type de MRAM, le processus d'écriture est assisté par la température (Thermally Assisted Switching). Contrairement au dispositif précédent, un courant traverse la JTM simultanément à l'application d'un champ magnétique, grâce à la mise en conduction du MOSFET (figure 1.4.7). Lors de son passage par la barrière tunnel, ce courant induit un chauffage qui permet d'abaisser le champ magnétique nécessaire au retournement de l'aimantation. Ce procédé permet de diminuer les erreurs d'adressage grâce à la sélection du MOSFET et est moins consommateur d'énergie.

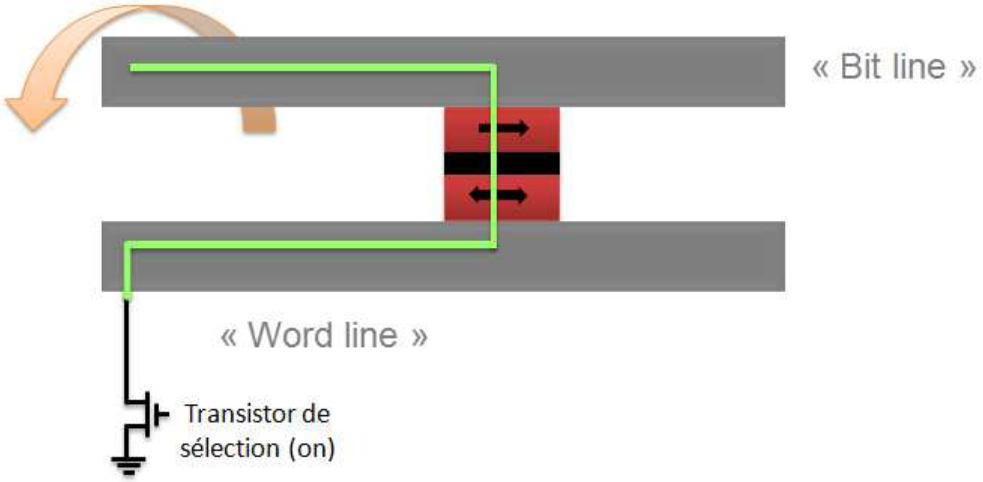


FIGURE 1.4.7 – Principe d'écriture d'une MRAM-TAS.

MRAM-STT

Dans ce type de MRAM, l'écriture se fait par un courant polarisé en spin (Spin Transfert Torque). Quand le courant ($I < 100$ µA) passe à travers un matériau FM, il devient polarisé en spin. Quand ce courant polarisé passe au travers d'une autre couche magnétique, ce courant permet le retournement de l'aimantation de la couche par transfert de spin et ceci en l'absence de champ magnétique (figure 1.4.8). De telles architectures présentent plusieurs avantages. En effet, ces dispositifs éliminent les erreurs d'adressage grâce à la sélectivité assurée à l'écriture par le MOSFET augmentant ainsi les vitesses d'accès et permettent de doubler la densité de mémoire en éliminant une des lignes d'écriture (pas de champ magnétique induit). Cependant, le courant polarisé à l'écriture nécessaire semble encore trop important limitant ainsi la densité de stockage.

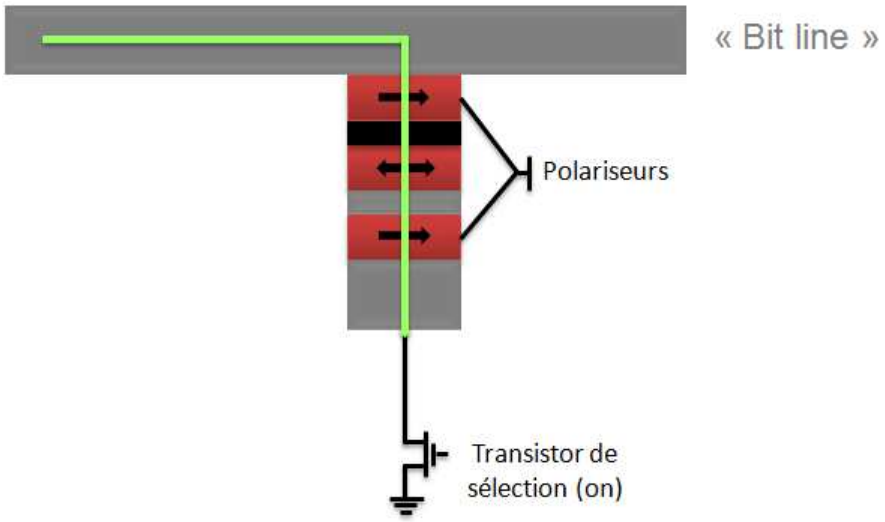


FIGURE 1.4.8 – Principe d'écriture d'une MRAM-STT.

1.4.2.4 Les autres types de mémoires

Les MRAM ne sont pas les seules alternatives envisagé pour le remplacement des RAM actuelles. En effet, d'autres procédé sont à l'étude tels les transistors à effet de champ à grille ferroélectrique (FeFET), les mémoires nanoélectromécaniques (NEMS), les mémoires Réd-Ox (RédOxRAM), les mémoires à changement de phase (PCRAM), les mémoires moléculaires (molRAM), les mémoires macromoléculaires (MmolRAM) ou encore les mémoires à effet électronique (EERAM). Les performances de ces mémoires sont présentées dans le tableau 1.4.1 [39].

	NAND FLASH	FeFET	NEMS	STT-MRAM	Redox RRAM	PCM RRAM	Electronic Effects RRAM	Macromol RRAM	Molecular RRAM
Minimum F -Scaling	16nm	22nm	5-10nm	7-10nm	5-10nm	5-10nm	5-10nm	5-10nm	5-10nm
Cell Size	$2.5F^2$	$8\text{-}4F^2$	$6\text{-}12F^2$	20-40 F^2	$8/5F^2$	$6F^2$	$8/5F^2$	$8/5F^2$	$5F^2$
MultiLevel	3-bits/cell	NA	Yes	MLC 2bits/cell	Yes	4 bit/cell	Yes	NA	NA
Write/Erase Voltage	18-20V	0.6/-0.2V	1.5V	< 1.8V	<0.5V	<3V	<3V	1V	80mV
Read Voltage	0.1-0.5V	NA	3V	0.5V	<0.2V	<3V	0.7V	0.7V	0.3V
Write Erase Current	Low	NA	NA	<100µA	0.4µA	>100µA	NA	NA	NA
Write Erase Time	>10µs	20ns	0.9ns/0.3ns	<100ns	<5ns	<50ns 120ns	<20ns	<10ns	<40ns
Read Speed	15-50 ¬s	20ns	>1.5ns	10-20ns	<10ns	<60ns	<10ns	<10ns	<10ns
Retention Time	10yrs	~33ds	10yrs	10yrs	10yrs	10yrs	10yrs	10yrs	10yrs
Endurance Cycles	$10^4\text{-}10^5$	10^{12}	NA	2E12@10ns 2E6@10ns	10^{16}	10^{15}	10^{16}	10^{16}	10^{16}
Write Energy per Bit	>1fJ	2fJ	0.03fJ	<4pJ	1fJ	<2pJ	<100pJ	NA	0.2aJ
Ease of Integration	10 Masks	NA	NA	3-4 Masks BEOL	1fJ	2-3 Masks to BEOL	NA	NA	NA

TABLE 1.4.1 – Performances ultimes des différentes technologies de mémoires émergentes d'après [39] (dans ce tableau, F correspond à la taille de grille du transistor).

Chapitre 2

Simulation numérique

2.1 Généralités sur la méthode Monte Carlo

La méthode Monte Carlo (MC) est une méthode stochastique. Elle porte d'ailleurs ce nom car elle est basée sur l'utilisation de nombres aléatoires. Lors d'une simulation MC, on génère une séquence de n configurations (X_1 , ..., X_n) (chaîne de Markov) dans l'espace des phases (Ω). Chaque configuration X correspond dans notre cas à un ensemble de spins (S_1, ..., S_i , ..., S_N). La densité de probabilité $P_n(X)$ doit converger vers la densité de probabilité d'équilibre $P(X)$ quand le nombre de configurations générées n tend vers l'infini. Pour cela, la matrice de transition $\overleftrightarrow{\mathrm{W}}$ qui donne, par définition, les probabilités de transition d'une configuration X à une configuration X' doit remplir certains critères. Cette matrice doit être stochastique :

$$\sum_{X'} W(X, X') = 1 \tag{2.1.1}$$

La matrice de transition ne doit pas détruire l'équilibre lorsqu'il est établi. On dit que la chaîne de Markov doit être ergodique : *le nombre de transitions acceptées quittant l'état X doit être exactement égal au nombre de transitions conduisant à l'état X à partir de tous les autres états X'* :

$$\forall X, X' \in \Omega, \sum_{X'} W(X, X')P(X) = \sum_{X'} W(X', X)P(X') \tag{2.1.2}$$

$$P(X) \sum_{X'} W(X, X') = \sum_{X'} W(X', X)P\left(X'\right) \tag{2.1.3}$$

$$P(X) = \sum_{X'} W(X', X)P(X') \tag{2.1.4}$$

Il est usuel d'imposer une condition plus forte que la précédente : *le nombre de transitions acceptées à partir d'un état quelconque X vers n'importe quel état X' est égal au nombre de transitions inverses ($X' \to X$).* C'est la condition de microréversibilité :

$$W(X, X')P(X) = W(X', X)P(X') \tag{2.1.5}$$

Cette condition est suffisante mais non nécessaire pour qu'il y ait convergence vers la distribution d'équilibre $P(X)$.

2.2 Algorithme de Metropolis

L'algorithme de Metropolis est un algorithme MC dans l'ensemble canonique [40] qui a pour but de reproduire le comportement d'un système à l'équilibre thermodynamique à température constante. Dans l'ensemble canonique, la distribution de probabilité à la température T est :

$$P_T(X) = \frac{e^{(\frac{-E(X)}{k_B T})}}{\sum_X e^{(\frac{-E(X)}{k_B T})}} \tag{2.2.1}$$

Ainsi la condition de microréversibilité devient :

$$\frac{W(X, X')}{W(X', X)} = e^{(\frac{-\triangle E}{k_B T})} \tag{2.2.2}$$

où $\Delta E = E(X') - E(X)$ est la variation d'énergie lors de la transition $X \to X'$. Il existe alors de nombreux choix possibles des probabilités de transition. Chaque choix correspond à un algorithme différent. Le choix de Metropolis consiste à prendre :

$$W(X, X') = min\left\{1, e^{(\frac{-\triangle E}{k_B T})}\right\} \tag{2.2.3}$$

Ainsi :
- lorsque $\Delta E \leq 0$, $W(X, X') = 1$ et la transition $X \to X'$ est acceptée car elle donne lieu à une diminution de l'énergie (figure 2.2.1) ;
- lorsque $\Delta E > 0$, la transition $X \to X'$ peut être acceptée avec une probabilité $W(X, X') = e^{(\frac{-\triangle E}{k_B T})} < 1$, afin de tenir compte de l'agitation thermique.

Dans cet algorithme, le passage d'une configuration X à une autre X' se fait par la réactualisation, *i.e.* la rotation, d'un seul spin à la fois.

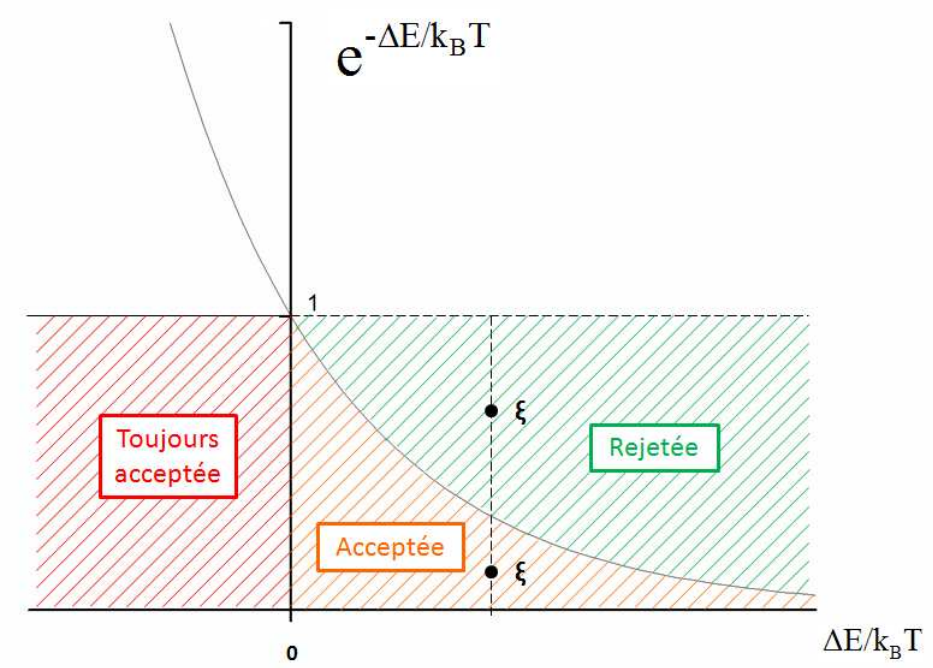


FIGURE 2.2.1 – Variation de la probabilité de transition en fonction de la barrière d'énergie ΔE divisée par $k_B T$.

Description de l'algorithme de Metropolis :

1. Choix d'une configuration initiale $X_0 = (\mathbf{S}_1^0, ..., \mathbf{S}_i^0, ..., \mathbf{S}_N^0)$;
2. Choix d'un site i au hasard et d'une nouvelle direction $\mathbf{S}_\mathbf{i}^{'}$ du spin dans tout l'espace ;
3. Calcul de la variation d'énergie ΔE associée à la transition $(\mathbf{S_i} \rightarrow \mathbf{S_i^{'}})$;
4. Calcul de la probabilité de transition $W(\mathbf{S_i} \rightarrow \mathbf{S_i^{'}}) = min\left\{1, e^{(\frac{-\Delta E}{k_B T})}\right\}$;
5. Tirage d'un nombre aléatoire ξ compris entre 0 et 1 ;
6. Si $\xi \leq W(\mathbf{S_i} \rightarrow \mathbf{S_i^{'}})$: la transition est acceptée.
   Si $\xi > W(\mathbf{S_i} \rightarrow \mathbf{S_i^{'}})$: la transition est refusée ;
7. Retour à l'étape 2.

Cette description correspond au modèle d'Heisenberg. La répétition N fois (N étant le nombre de spins) des étapes 2 à 6 constitue une itération ou encore un pas MC. Ainsi on examine en moyenne chacun des spins du système une fois lors d'un pas MC. L'un des problèmes fondamentaux des simulations MC est la correspondance entre le nombre de pas MC réalisés au cours de la simulation et le temps physique associé. Ce temps physique dépend des détails de l'algorithme comme nous allons le voir dans le paragraphe suivant.

2.3 Méthode Monte Carlo quantifiée en temps

Cette méthode à été introduite afin de trouver une correspondance entre un pas MC et le temps physique. Dans cet algorithme, la nouvelle direction possible $\mathbf{S_i'}$ du spin du site i est choisie dans un cône de taille donnée R (figure 2.3.1).

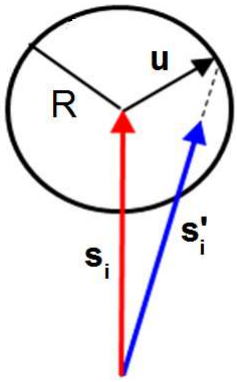


FIGURE 2.3.1 – Principe de la méthode Monte Carlo quantifiée en temps.

Pour réaliser cette procédure, on choisit au hasard, avec une distribution de probabilité uniforme, un vecteur $\overrightarrow{u}$ de norme $R < 1$. La nouvelle orientation du spin est donnée par le vecteur unitaire $\mathbf{s_i'} = \frac{\mathbf{s_i}+\mathbf{u}}{\|\mathbf{s_i}+\mathbf{u}\|}$ où $\mathbf{s_i}$ est un vecteur unitaire donnant l'orientation initiale. Comme pour la méthode MC standard, si la variation d'énergie ΔE entre la nouvelle orientation $\mathbf{s_i'}$ et l'orientation initiale $\mathbf{s_i}$ est négative, la transition est acceptée car elle abaisse l'énergie. Sinon, la transition est acceptée avec une probabilité proportionnelle à $\exp(-\Delta E/k_B T)$. La variation de R permet de faire varier le taux d'acceptation en vue d'optimiser l'efficacité de l'algorithme [41]. Cette technique permet alors de simuler l'effet de la température sur des cycles d'hystéresis avec des temps de calculs raisonnables [42]. De plus, elle est plus réaliste que l'algorithme de Metropolis standard car elle permet de prendre en compte la barrière d'énergie. Un autre intérêt de cet algorithme est la correspondance entre le temps physique et un pas MC. En effet, le temps physique δt associé à un pas MC est :

$$\delta t = \frac{(1+\alpha^2)\mu_s}{20\alpha\gamma k_B T} R^2 \tag{2.3.1}$$

où α est le coefficient d'amortissement, μ_s est le moment magnétique à saturation et γ le rapport gyromagnétique.

Pour un rayon de cône $R = 0,1$, un coefficient d'amortissement $\alpha = 0,1$, un moment magnétique à saturation $\mu_s = 1,12 \times 10^{-17}$ J/T et un rapport gyromagnétique $\gamma = 1,76 \times 10^{11}$ on obtient alors $\delta t = \frac{0,23\times10^{-7}}{T}$ s, soit pour $T = 100$ K $\delta t = 2,3 \times 10^{-10}$ s.

Description de l'algorithme MC quantifié en temps :

1. Détermination de la configuration initiale ;
2. Choix d'un site i au hasard ;
3. Tirage aléatoire d'un vecteur $\mathbf{u}$ ($\|\mathbf{u}\| = R$ fixé) ;
4. Calcul de la nouvelle orientation $\mathbf{s_i'} = \frac{\mathbf{s_i}+\mathbf{u}}{\|\mathbf{s_i}+\mathbf{u}\|}$;
5. Calcul de la variation d'énergie ΔE associée à la transition ;
6. Calcul de la probabilité de transition $W(\mathbf{S_i} \rightarrow \mathbf{S_i'}) = min\left\{1, e^{(\frac{-\triangle E}{k_B T})}\right\}$;
7. Tirage d'un nombre aléatoire ξ compris entre 0 et 1 ;
8. Si $\xi \leq W(\mathbf{S_i} \rightarrow \mathbf{S_i'})$: la transition est acceptée.
   Si $\xi > W(\mathbf{S_i} \rightarrow \mathbf{S_i'})$: la transition est refusée ;
9. Retour à l'étape 2.

2.4 Simulation de cycles d'hystérésis

Un organigramme schématique est présenté figure 2.4.1. Le choix du nombre de pas MC, à chaque valeur du champ, doit permettre aux moments magnétiques d'avoir suffisamment de temps pour passer d'un état métastable à un autre.

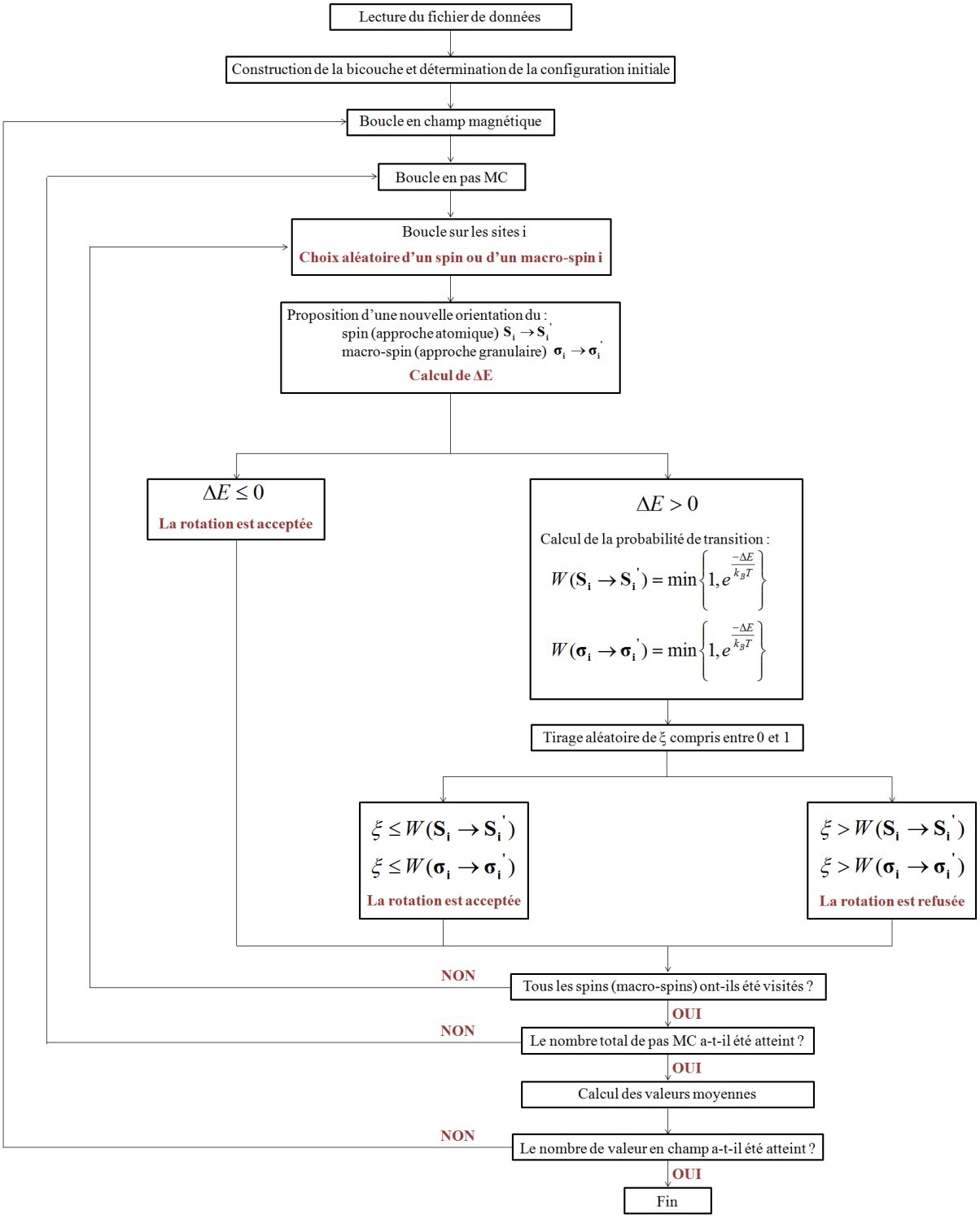


FIGURE 2.4.1 – Organigramme de la simulation d'un cycle d'hystérésis.

Chapitre 3

Etude de bicouches FM/AFM : approche atomique

3.1 Introduction

Il est bien connu que l'anisotropie d'échange est fortement liée à la nature de l'interface FM/AFM, de fait plusieurs études traitant de l'influence de l'interface FM/AFM ont été réalisées. Cependant, l'effet de la rugosité interfaciale n'est pas encore clairement compris car des comportements variés ont été observés expérimentalement. En effet, certaines études indiquent que l'anisotropie d'échange augmente quand la rugosité interfaciale augmente [43, 44, 45], tandis que d'autres études montrent une tendance inverse [46, 47, 48, 49, 50, 51]. Une dépendance non monotone du champ d'échange avec la rugosité a également été observé dans le système MnF_2/Fe [52]. Concernant le système NiFe/NiO, il a été reporté que le champ d'échange pouvait soit augmenter [44, 45], soit diminuer [47] ou rester constant [53] lorsque l'on fait varier la rugosité. D'un point de vue théorique, le premier modèle proposé par Meiklejohn et Bean [10], suppose une interface plane et non-compensée. Parce qu'une telle interface n'est pas réaliste, d'autres modèles considérant soit des interfaces compensées ou non-compensées [11, 12, 14, 15, 16], soit de la rugosité à l'interface [14, 15] ont été élaborés, comme nous avons pu le voir lors du chapitre 1. Utilisant un modèle de champ aléatoire à l'interface rugueuse, Malozemoff a montré que l'AFM se brise en domaine dont la taille est inversement proportionnelle au champ d'échange [14]. Takano *et al.* ont prédit l'amplitude du champ d'échange d'un modèle basé sur le calcul de la densité de spins non compensés à l'interface [15]. Mentionnons que des spins non compensés à l'interface ont été observés expérimentalement par le biais de plusieurs mesures magnétiques [54, 55]. A l'aide de simulations numériques, Nowak *et al.* ont proposé un modèle, appelé le "Domain State model", où rugosité et atomes substitutionnels sont pris en compte [18]. Utilisant ce modèle, l'influence d'une interface imparfaite sur les champs d'échange et coercitif a été étudiée. L'étude a montré que ces

champs dépendaient fortement de la structure de l'interface [56]. En outre, un couplage intercouche perpendiculaire dans les tricouches NiFe/NiO/Co a été mis en évidence expérimentalement et reproduit par simulations numériques prenant en compte la rugosité interfaciale [57]. Plusieurs paramètres, tels que les substitutions d'espèces chimiques, l'état de l'interface FM/AFM (rugosité, diffusion, etc), la configuration magnétique des spins, l'interaction d'échange, les constantes d'anisotropie, la taille des grains, ou l'influence des joints de grain ont un impact sur l'anisotropie d'échange, mais ces paramètres sont susceptibles d'être modifiés d'une étude à l'autre.

Le but de ce chapitre est d'étudier les effets combinés de la frustration, induite par l'introduction de rugosité d'interface, ainsi que de la température sur l'anisotropie d'échange. Ainsi, après description de notre modèle et notamment des différentes interfaces considérées, nous présenterons nos résultats sur :

- Une bicouche FM/AFM avec une couche AFM bloquée ($T = 0$ K)
  - Etat initial de la bicouche correspondant à l'état fondamental
  - Etat initial de la bicouche correspondant à l'état métastable
- Une bicouche FM/AFM avec une couche AFM libre
  - Influence de la constante d'anisotropie de la couche AFM ($T = 0$ K)
  - Influence de la température

Ces travaux ont été réalisés au moyen de simulations numérique utilisant la méthode MC quantifiée en temps, dont le principe a été expliqué dans le chapitre 2. L'avantage de l'étude par simulation est que l'on peut facilement faire varier les différents paramètres indépendamment les uns des autres et ainsi voir l'influence de chacun d'entre eux. De plus, la méthode MC permet d'introduire aisément l'effet de la température dans les simulations.

3.2 Modèle

3.2.1 Structure des bicouches

Notre modèle est une bicouche de structure cubique simple (CS) constituée d'une couche FM couplée à une couche AFM. Afin d'étudier l'effet de l'interface, nous avons considéré quatre interfaces FM/AFM différentes : une interface plane et trois interfaces rugueuses. Deux de ces interfaces rugueuses sont périodiques (figure 3.2.1) et la troisième est aléatoire. La première interface rugueuse périodique consiste en des bandes parallèles à Ox, uniformément espacées. La largeur, la hauteur d'une bande et l'espace entre deux bandes sont égales au paramètre de maille. La seconde interface rugueuse périodique cor-

respond à une structure en damier avec alternance de spins FM et AFM. Il est à noter que pour l'interface plane, la monocouche interfaciale de l'AFM est non compensée.

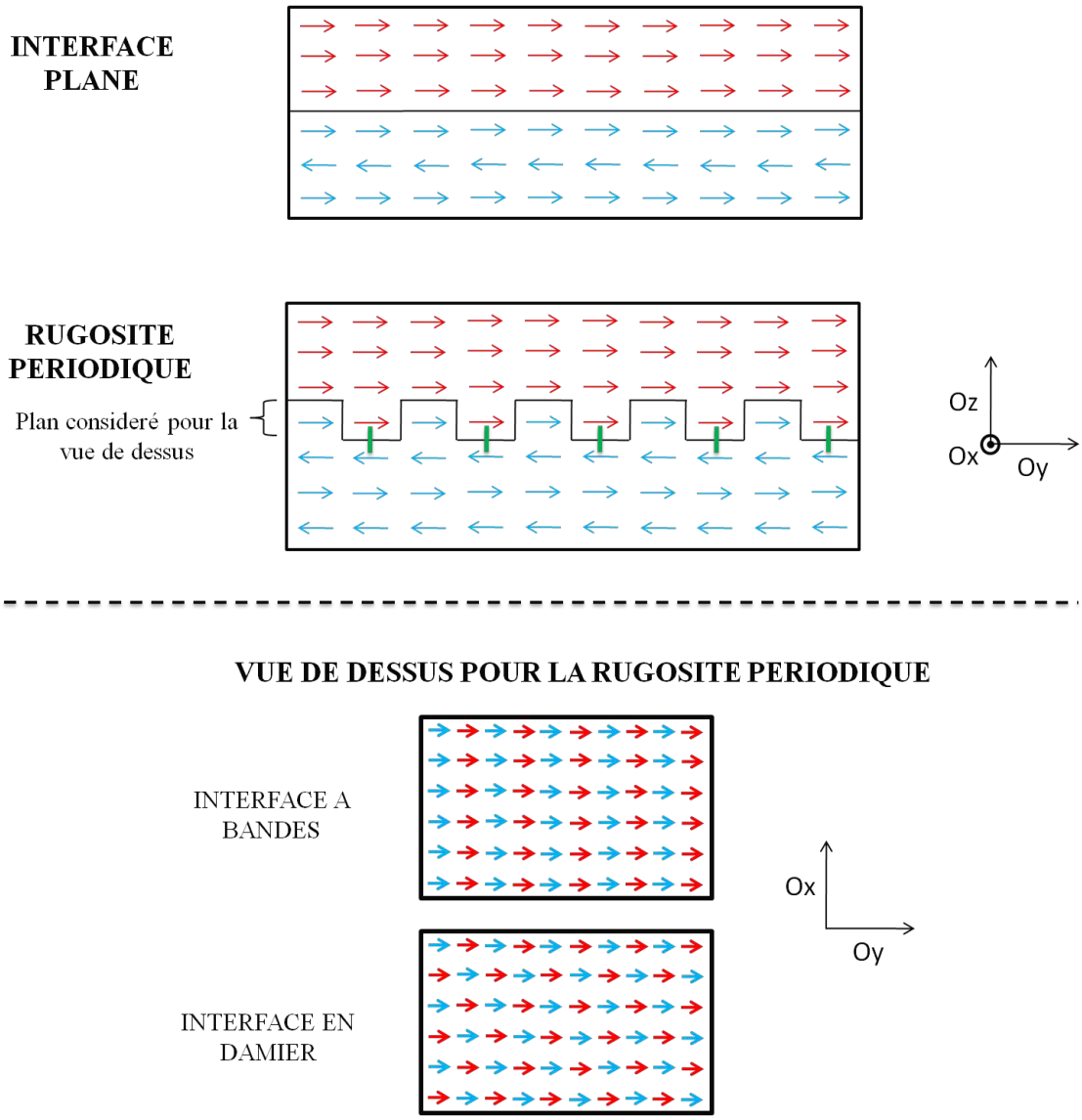


FIGURE 3.2.1 – Différents types d'interface (flèches bleues : moments AFM, flèches rouges : moments FM).

3.2.2 Conditions aux bords

Les systèmes étudiés par simulations numériques étant nécessairement de taille finie, il faut choisir des conditions de bords. Si l'on applique des conditions de bords libres (CBL), les spins se trouvant en bordure du système ont un environnement différent de ceux se trouvant dans le volume car il leur manque des voisins. Ainsi la direction des moments magnétiques au voisinage des surfaces du système peut-être modifiée en raison de la frustration magnétique et de l'agitation thermique. Dans notre cas, nous avons

utilisé les conditions de bords périodiques (CBP) dans les plans (xOy) et les CBL pour la direction d'empilement (Oz) conformément à la réalité.

3.2.3 Hamiltonien du système

Le Hamiltonien de notre système comporte trois termes : un terme d'échange, un terme d'anisotropie et un terme Zeeman qui tient compte de l'interaction avec un champ extérieur. Avant d'expliciter ces différents termes, nous présentons le modèle de spins utilisé.

3.2.3.1 Modèle de spins

Il existe plusieurs modèles de spins, comme par exemple le modèle d'Ising dans lequel les spins ne peuvent prendre que 2 orientations ("up" ou "down") ou le modèle XY dans lequel les spins peuvent prendre n'importe quelle orientation dans le plan (xOy). Le modèle utilisé lors de notre étude est le modèle de spins de Heisenberg dans lequel les spins peuvent prendre n'importe quelle orientation dans tout l'espace, ainsi chaque spin est un vecteur à trois composantes ($\mathrm{S_x}$, $\mathrm{S_y}$, S_z). Dans un métal de transition, les spins $\mathbf{S}_i$ sont reliés au moment magnétique $\mathbf{m}_i$ par :

$$\mathbf{m}_i = -g_i \mu_B \mathbf{S}_i \tag{3.2.1}$$

où g_i ($\simeq 2$) est le facteur gyromagnétique et μ_B le magnétron de Bohr (9,274015$\times 10^{-24}$J/T).

3.2.3.2 Énergie d'échange

L'énergie d'échange du modèle de Heisenberg est de la forme :

$$E_{ech} = -\sum_{<i,j>} J_{ij}\, \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \tag{3.2.2}$$

où J_{ij} représente l'intégrale d'échange entre le spin i et le spin j. Soit ici :

$$E_{ech} = -J_{FM} \sum_{<i,j>\in FM} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - J_{AFM} \sum_{<i,j>\in AFM} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - J_{int} \sum_{i\in FM,\, j\in AFM} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \tag{3.2.3}$$

où J_{FM}, J_{AFM} et J_{int} représentent les intégrales d'échange atomique dans la couche FM, dans la couche AFM et à l'interface FM/AFM, respectivement. Les interactions sont

limitées aux premiers voisins. L'intégrale d'échange à l'interface J_{int}, qui est responsable du décalage du cycle d'hystérésis, a été prise positive.

3.2.3.3 Énergie d'anisotropie

L'énergie d'anisotropie est de la forme :

$$E_a = -\sum_i D_i^u S_{iu}^2 \tag{3.2.4}$$

où D_i^u représente le constante d'anisotropie selon l'axe Ou de l'atome i. Si $D_i^u > 0$, l'axe Ou est un axe facile et Ou est un axe difficile dans le cas contraire ($D_i^u < 0$). Dans notre étude :

$$E_a = -D_{FM}^y \sum_{i \in FM} (S_{iy})^2 - D_{FM}^z \sum_{i \in FM} (S_{iz})^2 - D_{AFM}^y \sum_{i \in AFM} (S_{iy})^2 \tag{3.2.5}$$

où $D_{FM}^y > 0$, $D_{FM}^z < 0$ et $D_{AFM}^y > 0$ représentent les constantes d'anisotropie par atome dans la couche FM et dans la couche AFM, respectivement. Chaque moment magnétique de la couche FM possède donc un axe de facile aimantation selon Oy et un axe difficile selon Oz. Les moments AFM possèdent un axe de facile aimantation selon Oy.

3.2.3.4 Énergie Zeeman

L'énergie Zeeman est de la forme :

$$E_Z = \mu_0 \mu_B \mathbf{H} \sum_i g_i \mathbf{S}_i \tag{3.2.6}$$

où $\mathbf{H}$ est le champ magnétique extérieur, appliqué selon l'axe de facile aimantation, Oy. Ce terme tend à aligner les moments magnétiques suivant le champ appliqué.

3.2.3.5 Énergie totale

L'énergie magnétique totale du système est la somme des termes exprimés précédemment, soit :

$$E_{tot} = -\sum_{<i,j>} J_{ij}\, \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - \sum_i (D_i^y S_{iy}^2 + D_i^z S_{iz}^2) + \mu_0 \mu_B \mathbf{H} \sum_i g_i \mathbf{S}_i \tag{3.2.7}$$

3.3 Résultats

Dans cette section nous présentons nos résultats dans le cadre de l'approche atomique. Nous nous sommes intéressés à l'effet de la frustration, due à la rugosité interfaciale. Dans un premier temps, nous avons considéré une couche AFM bloquée. Bien qu'une couche AFM rigide conduit, comme nous l'avons vu dans le chapitre 1 (modèle de MB), à des valeurs d'échanges bien plus importantes que celles observées expérimentalement, cette partie nous permet de comparer nos résultats au modèle de MB et ainsi de valider nos simulations, étape insdispensable au passage à un modèle plus complexe. Par la suite, une couche AFM libre sera considérée. Nous étudierons alors l'impact de l'anisotropie de la couche AFM ainsi que celui de la température, sur l'anisotropie d'échange, combinée à la frustration.

3.3.1 Couche antiferromagnétique bloquée

Nous avons étudié l'influence de l'interface FM/AFM sur le champ d'échange et les champs de retournement à 0 K dans deux cas :

• Pour le premier cas, les cycles d'hystérésis sont réalisés en partant de l'état fondamental (EF), c'est-à-dire que les liaisons frustrées sont à l'interface FM/AFM (figure 3.3.1)

• pour le deuxième cas, l'état initial est un état métastable (EM) dans lequel les liaisons frustrées se trouvent dans la couche AFM (figure 3.3.1).

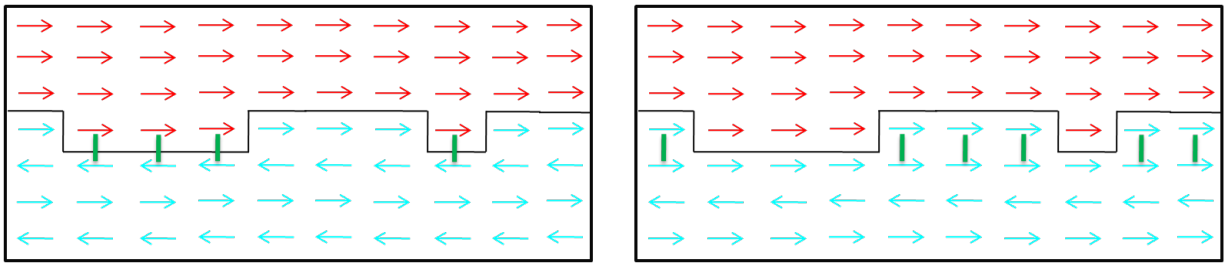


FIGURE 3.3.1 – Configurations magnétiques initiales : état fondamental (à gauche) et état métastable (à droite).

Afin de valider notre technique de simulation, nous avons tout d'abord vérifié que nos résultats de simulations numériques tendaient, aux erreurs statistiques près, vers ceux du modèle de Meiklejohn et Bean (MB) quand le retournement d'aimantation de la couche FM est quasiment uniforme, *i.e.* J_{FM} suffisamment grand.

Le tableau 3.3.1 présente les valeurs des différents paramètres utilisés dans les simulations. Dix monocouches correspondent approximativement à $e_{FM} \approx 2$ nm et $e_{AFM} \approx 2$ nm si nous considérons une couche FM constituée de cobalt (Co) et une couche AFM consti-

tuée d'iridium-manganèse (IrMn). Il est à noter que ces épaisseurs, faibles en comparaison de celles utilisées dans les études expérimentales, ont été choisit pour des questions de temps de calcul. Ainsi, l'augmentation de l'épaisseur de la couche FM donnera lieu à une diminution du champ d'échange et l'augmentation de l'épaisseur de la couche AFM aura pour conséquence une stabilité plus importante de la couche AFM (considérant, dans cette partie, une couche AFM bloquée cela n'aura pas d'impact).

e_{FM}	10	J_{FM}/k_B (K)	1055
e_{AFM}	10	J_{int}/J_{FM}	0,19
L	24	D_{FM}/J_{FM}	0,15
N	11520	D_{AFM}	∞
S_{FM}	0,85	S_{AFM}	1

TABLE 3.3.1 – Valeurs numériques des paramètres de simulations. e_{FM} et e_{AFM} sont exprimés en nombre de plans atomiques et L est la dimension latérale d'un plan atomique ($N = (e_{FM} + e_{AFM}) \times L^2$).

D'un point de vue expérimental, l'état métastable peut être obtenu quand l'échantillon subit un recuit sous champ. S'il est refroidi à partir d'une température T comprise entre la température de Néel (T_N) de la couche AFM et la température de Curie (T_C), la couche FM est alors saturée selon la direction du champ. Lorsque la température passe en dessous de T_N les moments magnétiques de l'AFM situés à l'interface s'ordonnent dans la même direction que les moments magnétiques du FM (via J_{int}). Par la suite les autres moments AFM s'orientent de façon à respecter l'ordre AFM. C'est ce que nous obtenons pour une interface plane. Lorsque l'interface est rugueuse, les moments AFM de l'interface rugueuse s'ordonnent dans la même direction que les moments FM. Or ces moments AFM se trouvent sur deux plans, une partie dans le plan mixte et l'autre dans le "premier plan" AFM. Les autres moments AFM vont ensuite s'orienter selon les interactions présentes dans la couche AFM. Il est à noter que la variation relative d'énergie entre l'EF et l'EM peut être très petite (0,3% pour $J_{int}/J_{AFM} \sim 0,7$). Cependant cet état initial a une influence importante sur le champ d'échange comme nous allons le voir par la suite.

3.3.1.1 Etat fondamental comme état initial

Sur la figure 3.3.2, nous avons tracé les cycles d'hystérésis de la bicouche pour les quatre interfaces FM/AFM ($J_{int} > 0$) en partant de l'EF. On observe que les cycles d'hystérésis de l'interface plane et à bande sont identiques. Le champ d'échange ($\mu_B B_E/J_{int} = -0,062 \pm 0,006$) est proche de la valeur prédite par le modèle de MB ($\mu_B B_E^{MB}/J_{int} = -0,05$ SOIT 115 T). Pour l'interface en damier et l'interface aléatoire, le champ de retournement négatif est identique à celui des interfaces plane et à bandes, mais le champ de retournement positif est plus faible ce qui conduit à une augmentation du champ d'échange (en norme)

par rapport à celui observé pour le cas des interfaces plane et à bandes.

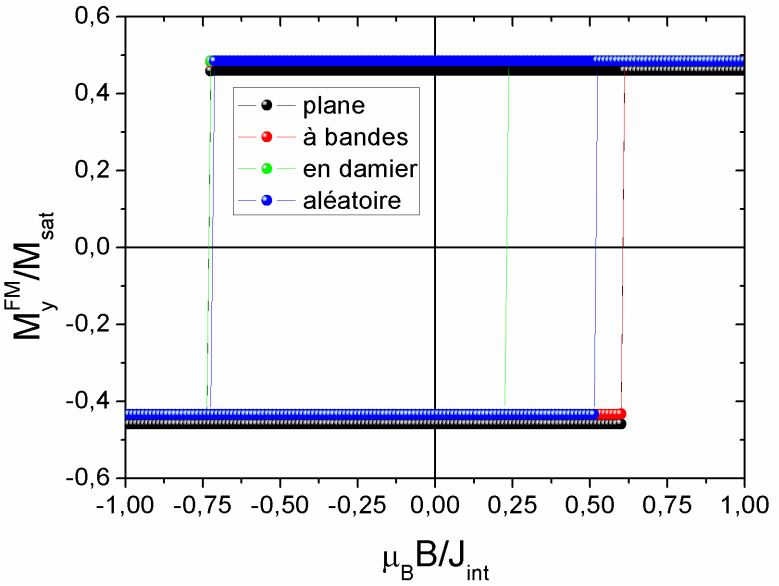


FIGURE 3.3.2 – Cycles d'hystérésis simulés pour les quatre interfaces avec l'état fondamental comme état initial. Le décalage vertical des interfaces rugueuses est dû au plan interfacial mixte qui peut être soit saturé, soit antiferromagnétique.

En fait, B_C^- ne dépend pas de l'interface car le retournement d'aimantation se déclenche à l'interface supérieure libre de la couche FM (figure 3.3.3).

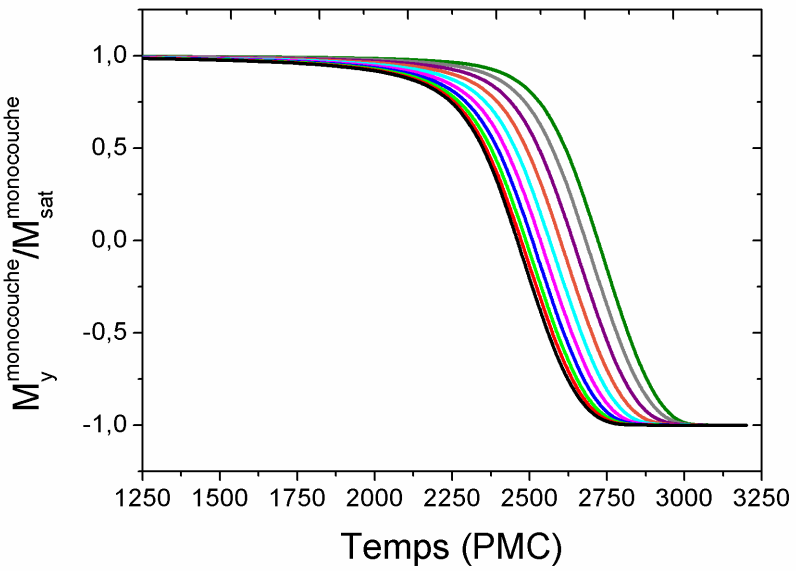


FIGURE 3.3.3 – Dépendance en temps de la composante suivant Oy de l'aimantation réduite des monocouches durant le premier retournement pour l'interface plane (de gauche à droite : interface libre à interface FM/AFM).

On peut aussi voir que la monocouche située à l'interface FM/AFM est la dernière à se retourner, le retournement n'est donc pas complètement uniforme ($\Delta M/M \approx 0,1$) ce qui peut expliquer le léger décalage entre B_E simulé et B_E^{MB}. Le même comportement a été observé pour les trois autres interfaces (non montré ici). Le premier renversement (à B_C^-) se déclenche à l'interface libre car le champ local (dû à l'interaction d'échange J_{int}) agissant sur les moments FM à l'interface FM/AFM est dans la direction opposée au champ extérieur, rendant plus difficile le retournement de ces moments magnétiques. Ceci explique donc pourquoi l'interface FM/AFM n'a pas d'effet sur la valeur de B_C^-.

A l'inverse, le retournement d'aimantation à B_C^+ se déclenche à l'interface FM/AFM (figure 3.3.4) ce qui est en accord avec le fait que B_C^+ dépend de la nature de l'interface. En effet, pour le second retournement, le champ local sur un site FM de l'interface FM/AFM est orienté dans la direction du champ appliqué, ce qui facilite le retournement par rapport à l'interface libre. Il est à noter que ce comportement ne peut être observé en utilisant le modèle MB où la couche FM est modélisée par un macro-moment. Afin d'expliquer les différences entre les valeurs des champs de retournement positifs, nous avons calculé la contribution du couplage interfacial au champ local sur un moment FM d'interface i, $\mathbf{B}_{loc,i} = -\frac{J_{int}}{2\mu_B g_{FM}} \sum_j \mathbf{S}_j$, pour les différentes interfaces (figure 3.3.5). Juste avant le renversement, $\mu_B B_{loc}/J_{int} = 0{,}25$ (pour tous les sites) pour les interfaces plane et à bandes ce qui explique pourquoi les champs B_C^+ sont identiques. Pour l'interface en damier, $\mu_B B_{loc}/J_{int}$ prend deux valeurs, 0,25 et 0,75, et $\mu_B B_{loc}/J_{int}$ prend cinq valeurs pour l'interface aléatoire -0,25, 0, 0,25, 0,5 et 0,75.

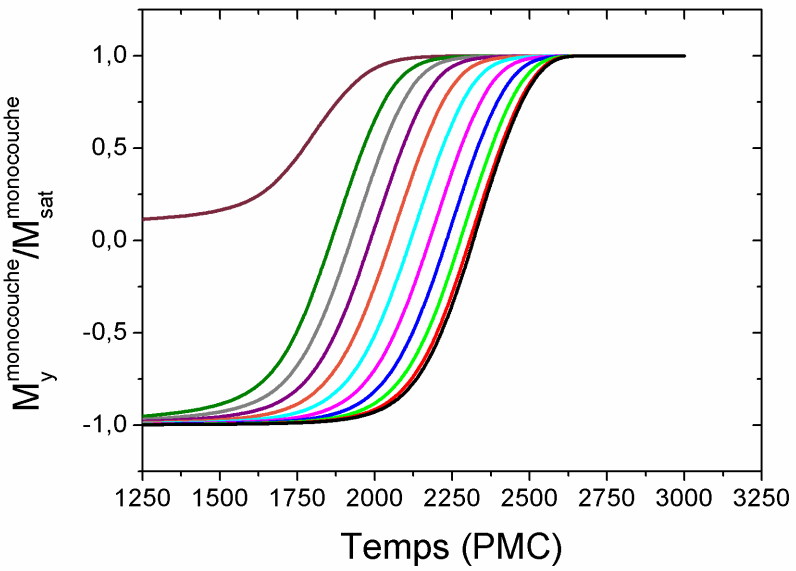


FIGURE 3.3.4 – Dépendance en temps de la composante suivant Oy de l'aimantation réduite des monocouches durant le second retournement pour l'interface à bandes (de gauche à droite : interface FM/AFM à interface libre).

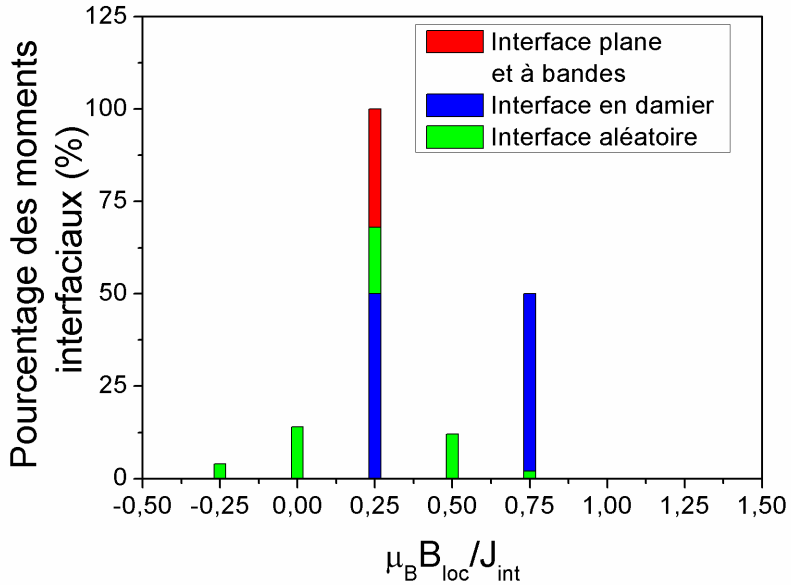


FIGURE 3.3.5 – Distribution du champ local sur un site FM à l'interface FM/AFM avant le second retournement pour les différents types d'interface étudiés.

La valeur importante du champ local moyen pour l'interface en damier (0,5) est à l'origine de la faible valeur du champ de retournement positif. Ainsi, nos simulations indiquent que le champ d'échange est fortement sensible au champ local moyen qui est proportionnel au couplage interfacial. Comme nous le verrons au § 3.3.1.3, le champ local moyen à l'interface FM/AFM n'est toutefois pas le seul paramètre influant sur H_E.

3.3.1.2 État metastable comme état initial

La figure 3.3.6, représente les cycles d'hystérésis de la bicouche quand l'état initial est l'état métastable (EM). Il est à noter que pour l'interface plane, l'EM correspond à l'EF. Comme attendu, la valeur de B_C^- est commune à tous les types d'interface FM/AFM et est la même que celle obtenue avec l'EF : $\dfrac{\mu_B B_C^-}{J_{int}} = -0,75$.

D'autre part, les champs de retournement positifs B_C^+ sont significativement plus faibles qu'avec l'EF et les champs d'échange sont donc plus grands. Ces valeurs plus faibles de B_C^+ sont attribuées à des champs locaux plus importants à l'interface FM/AFM (figure 3.3.7). En effet, pour l'EM, avant le second retournement, $\mu_B B_{loc}/J_{int}$ prend deux valeurs, 0,25 et 0,75 pour l'interface à bandes, et 0,25 et 1,25 pour l'interface en damier. Pour l'interface à rugosité aléatoire, $\mu_B B_{loc}/J_{int}$ prend cinq valeurs, 0,25, 0,5, 0,75, 1 et 1,25.

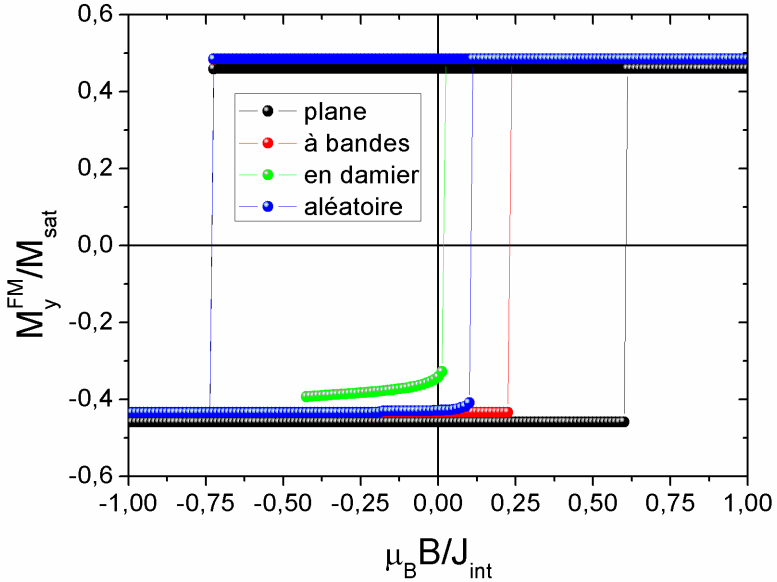


FIGURE 3.3.6 – Cycles d'hystérésis simulés pour les quatre interfaces avec l'état métastable comme état initial.

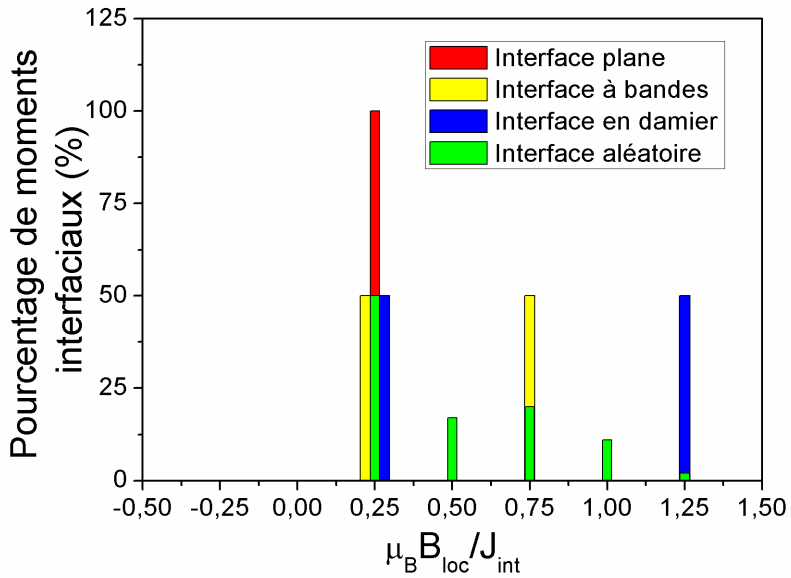


FIGURE 3.3.7 – Distribution du champ local sur un site FM à l'interface FM/AFM, avant le second retournement, pour les différents types d'interface étudiés.

Sur la figure 3.3.6, on peut voir, pour l'interface à damier, un premier saut de l'aimantation à $\mu_B B/J_{int} = -0,43$. Ce saut est causé par le retournement de la moitié des moments interfaciaux pour lesquels $\mu_B B_{loc}/J_{int} = 1,25$. Quand le champ appliqué augmente, les moments adjacents se renversent continûment de par le couplage dans la couche FM ce qui explique l'augmentation de M_y^{FM}/M_{sat} jusqu'à $-0,33$ pour $B \simeq 0$. Ensuite,

les autres moments de la couche FM se retournent à $\mu_B B/J_{int} = 0,025$. Le renversement est donc clairement non uniforme dans ce cas (figure 3.3.8).

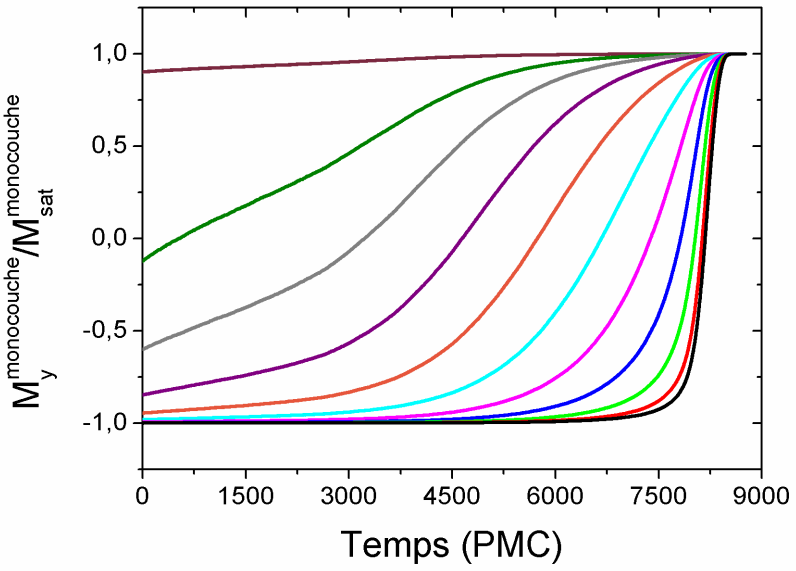


FIGURE 3.3.8 – Dépendance en temps de la composante suivant Oy de l'aimantation réduite des monocouches pendant le second retournement ($\frac{\mu_B B}{J_{int}} = 0,025$) pour l'interface en damier (de gauche à droite : interface FM/AFM à l'interface libre).

3.3.1.3 Conclusion

Le tableau 3.3.2, présente les valeurs du champ d'échange et du champ local moyen sur les sites FM de l'interface FM/AFM en fonction de l'interface et de l'état initial. La variation du champ d'échange en fonction du champ local moyen, pour différentes interfaces est représentée figure 3.3.9.

		Interface plane	Interface à bandes	Interface aléatoire	Interface en damier
EF	$\frac{\mu_B B_E}{J_{int}}$	$-0,062 \pm 0,006$	$-0,062 \pm 0,006$	$-0,10 \pm 0,02$	$-0,250 \pm 0,006$
	$\left\langle \frac{\mu_B B_{loc}}{J_{int}} \right\rangle$	$0,25$	$0,25$	$0,24$	$0,50$
EM	$\frac{\mu_B B_E}{J_{int}}$	$-0,062 \pm 0,006$	$-0,257 \pm 0,006$	$-0,31 \pm 0,01$	$-0,349 \pm 0,006$
	$\left\langle \frac{\mu_B B_{loc}}{J_{int}} \right\rangle$	$0,25$	$0,50$	$0,49$	$0,75$

TABLE 3.3.2 – Valeurs de $\mu_B B_E/J_{int}$, de $\langle \mu_B B_{loc}/J_{int} \rangle$ lorsque l'état initial est l'EF ou l'EM.

Rappelons tout d'abord que puisque le premier renversement s'opère à l'interface libre de la couche FM, le champ de retournement négatif est identique pour l'EF et l'EM,

quelque soit le type d'interface. C'est donc la diminution du champ de retournement positif qui conduit à un champ d'échange plus important.

On observe que l'interface en damier donne lieu à des valeurs plus importantes du champ d'échange quelque soit l'état initial. La valeur du champ d'échange est liée à celle du champ local moyen à l'interface FM/AFM (figure 3.3.9), mais pas seulement. En effet, les détails de la distribution de champ local à l'interface FM/AFM jouent un rôle important et notamment l'existence de sites FM à fort champ local se comportant comme des sites de nucléation lors du retournement.

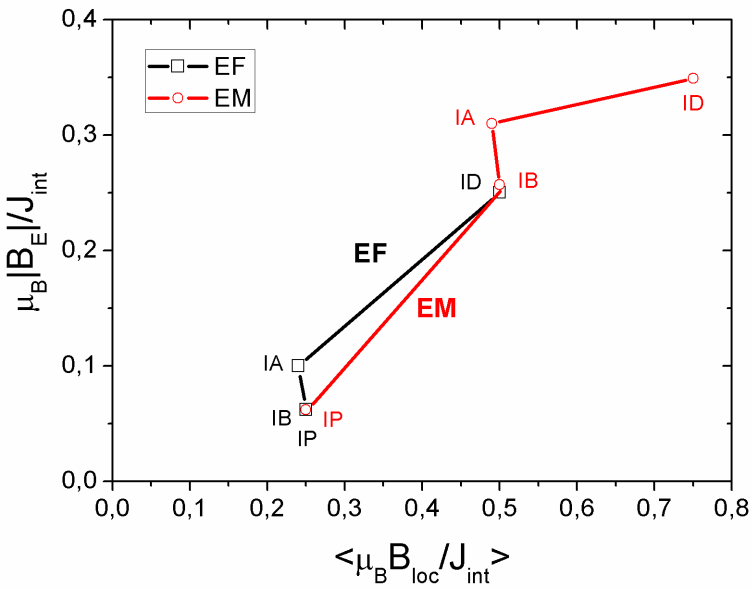


FIGURE 3.3.9 – Variation du champ d'échange en fonction du champ local moyen à l'interface pour les cas de l'EF et de l'EM comme état initial (IP=Interface Plane, IB=Interface à Bandes, IA=Interface Aléatoire et ID=Interface en Damier).

Pour l'EF, l'interface plane et l'interface à bandes d'une part, et l'interface aléatoire d'autre part, ont sensiblement le même champ local moyen mais H_E est supérieur pour l'interface aléatoire (figure 3.3.9). H_E est plus important du fait de la distribution de champs locaux pour l'interface aléatoire, en particulier l'existence de sites FM à champ local important ($\mu_B B_{loc}/J_{int} = 0,5$ et $0,75$). Si l'on considère l'interface en damier, le champ local moyen est supérieur à celui de l'interface aléatoire (facteur 2), mais surtout la moitié des sites FM a un fort champ local ($\mu_B B_{loc}/J_{int} = 0,75$) ce qui entraîne une diminution de B_C^+ et de fait une augmentation significative de H_E.

Pour l'EM, la moitié des sites FM de l'interface à bandes ont le même champ local que celui des sites de l'interface plane ($\mu_B B_{loc}/J_{int} = 0,25$), mais la seconde moitié a un champ

local trois fois plus grand ($\mu_B B_{loc}/J_{int} = 0,75$), il en découle donc une augmentation importante de H_E par rapport à l'interface plane (facteur 5). Pour l'interface aléatoire, le champ local moyen est légèrement plus faible que celui de l'interface à bandes, cependant la présence de champs locaux plus fort ($\mu_B B_{loc}/J_{int} = 1$ et $1,25$) sur certains sites FM conduit à un H_E plus important. En ce qui concerne l'interface en damier, comme pour l'EF, le champ local moyen est plus important en raison de sites FM à fort champ local ce qui conduit à un H_E plus important que pour les autres interfaces.

Par ailleurs, on peut voir que le champ d'échange est plus important quand l'état initial est l'EM, quelque soit le type d'interface (sauf pour l'interface plane car EF=EM). L'augmentation la plus importante du champ d'échange (facteur 5) lors du passage de l'EF à l'EM comme état initial est observée pour l'interface à bandes.

Afin d'expliquer cela, nous avons représenté figure 3.3.10 les liaisons frustrées, avant le second retournement, dans le cas de l'interface à bandes suivant que l'on considère l'EF ou l'EM. Pour l'EF, on vérifie bien à partir de la figure que tous les sites FM ont la même contribution due à J_{int} au champ local. Pour l'EM, les sites FM des "creux" ont un champ local important qui favorise le retournement à cause des 3 liaisons J_{int} frustrées (sites de nucléation). Ainsi, le champ B_C^+ à appliquer pour renverser les moments de la couche FM est diminué dans le cas de l'EM par rapport à celui nécessaire dans le cas de l'EF. Ceci conduit donc à un champ d'échange plus important pour l'EM. C'est pourquoi, pour une multicouche donnée, un recuit approprié peut être utilisé afin d'augmenter le champ d'échange. Il est également à noter que la présence d'une interface libre peut avoir un effet non négligeable sur le champ d'échange.

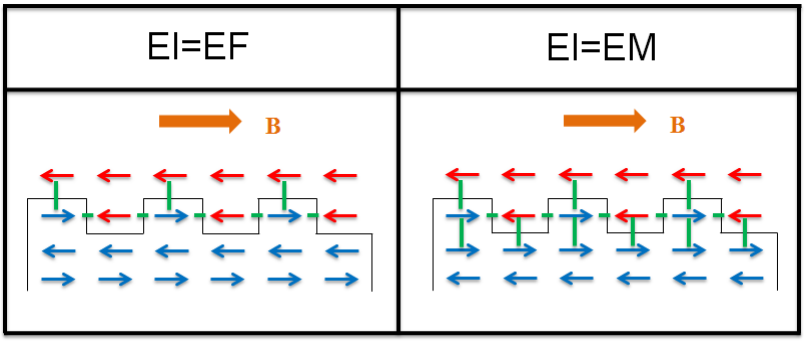


FIGURE 3.3.10 – Représentation schématique des moments FM et AFM à l'interface à bandes d'une bicouche FM/AFM avant le second retournement. Pour l'EF (gauche) et l'EM (droite), les liaisons frustrées sont représentées par les traits verts.

Les résultats de l'étude d'une bicouche FM/AFM présentant une couche AFM rigide par notre modèle, basé sur la méthode de simulation MC, sont en assez bon accord avec les valeurs attendues par le modèle de MB. La valeur obtenue par simulation du champ

d'échange, pour une interface plane, est légèrement supérieur à la valeur prédite par le modèle de MB. Cette différence à pour origine une valeur du champ de retournement positif simulé B_C^+ plus faible, due à un retournement non complètement uniforme de la couche FM (le modèle de MB considère un retournement uniforme). Comme attendu, les valeurs des champs de retournement et d'échange sont beaucoup trop importantes ($B_C^- = -215\,\mathrm{T}$, $B_C^+ = 185\,\mathrm{T}$ et $B_E = 15\,\mathrm{T}$) en comparaison de celles obtenues expérimentalement (3 odres de grandeurs [58]).

3.3.2 Couche antiferromagnétique libre

L'étude précédente, réalisée pour une couche AFM rigide (très forte anisotropie), nous a permit de valider notre modèle. Or la rugosité peut conduire à la présence de parois de domaine dans les couches ainsi qu'à des zones magnétiquement désordonnées. C'est pourquoi nous considérons maintenant une couche AFM libre, bien plus réaliste. Nous ne considérons ici que les interfaces plane, en bandes et à damier avec l'EF pour état initial. Dans ce cadre nous avons étudié :

- L'influence de la constante d'anisotropie de la couche AFM à $T \simeq 0\,\mathrm{K}$;
- L'effet de la température, sur les champs de retournement et d'échange.

Le tableau 3.3.3 présente les valeurs des paramètres utilisés.

e_{FM}	5	N	5760	$\lvert J_{AFM}\rvert / J_{FM}$	0,50
e_{AFM}	5	S_{FM}	0,85	J_{int}/J_{FM}	0,19
L	12	S_{AFM}	1	D_{FM}/J_{FM}	0,10

TABLE 3.3.3 – Valeurs numériques des paramètres de simulations. e_{FM} et e_{AFM} sont exprimés en nombre de plans atomiques et L est la dimension latérale d'un plan atomique ($N = (e_{FM} + e_{AFM}) \times L^2$).

3.3.2.1 Influence de la constante d'anisotropie de la couche AFM

Nous avons étudié l'effet de la constante d'anisotropie de la couche AFM (D^y_{AFM}) sur les propriétés d'anisotropie d'échange pour les trois interfaces nommées précédemment. Pour cette étude, les simulations ont été réalisées à très basse température. A titre d'exemple, nous avons représenté figure 3.3.11 les cycles d'hystérésis pour $D^y_{AFM}/J_{FM} = 0,06$.

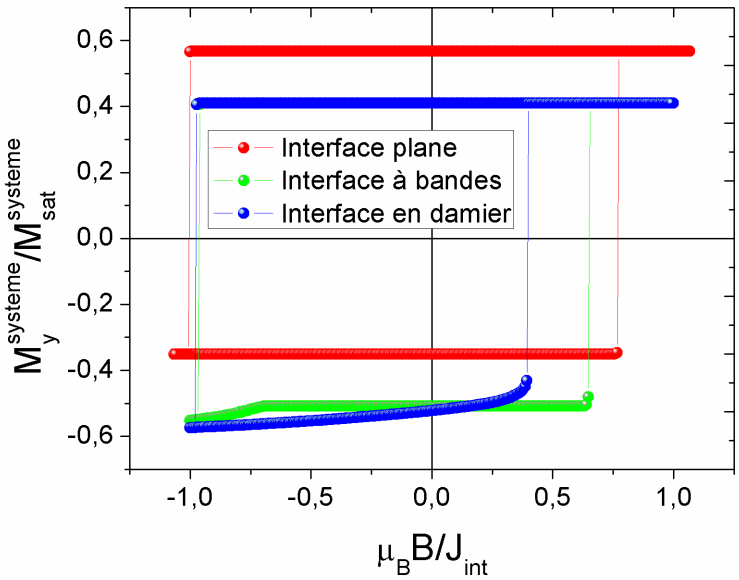


FIGURE 3.3.11 – Cycles d'hystérésis simulés à 0 K pour les trois interfaces avec $D^y_{AFM}/J_{FM} = 0,06$.

Les champs de retournement négatifs B_C^- sont approximativement identiques pour les trois interfaces car le retournement en champ négatif se déclenche à l'interface libre de la couche FM comme vu précédemment (§ 3.3.1). De même que pour le cas d'une couche AFM bloquée, le renversement en champ positif s'amorce à l'interface FM/AFM en raison du champ local dû aux voisins AFM.

La forme du cycle d'hystérésis pour l'interface plane indique que seule la couche FM se retourne. Aucune paroi de domaine n'apparaît à l'interface FM/AFM comme cela est prédit par le modèle de Néel et Mauri. En effet, nous sommes dans le cas d'un faible couplage interfacial, de fait l'énergie d'interface ($\propto J_{int} S_{FM} S_{AFM}$) après le retournement de la couche FM est plus faible que l'énergie d'une paroi de domaine ($\propto \sqrt{J_{AFM} D_{AFM}}$). D'après le modèle de Néel et Mauri la paroi se développe dans le cas d'un fort couplage. Si le couplage est faible, l'expression du champ d'échange est alors très similaire à celle du modèle de MB. A l'inverse, les cycles d'hysteresis pour les interfaces rugueuses ne sont pas carrés. Une paroi de domaine apparaît dans la couche AFM après le premier retournement (en champ négatif). Pour l'interface à bandes, la paroi de domaine disparaît vers $\mu_B B/J_{int} \approx -0,7$ alors que pour l'interface en damier, la paroi ne disparaît pas totalement quand le second retournement intervient (à B_C^+). La variation de B_C^+ avec la constante d'anisotropie de la couche AFM est présentée figure 3.3.12. Ainsi, bien que le couplage interfacial soit toujours "faible", la frustration due à la rugosité induit la formation d'une paroi de domaine dans la couche AFM contrairement au cas d'une interface plane.

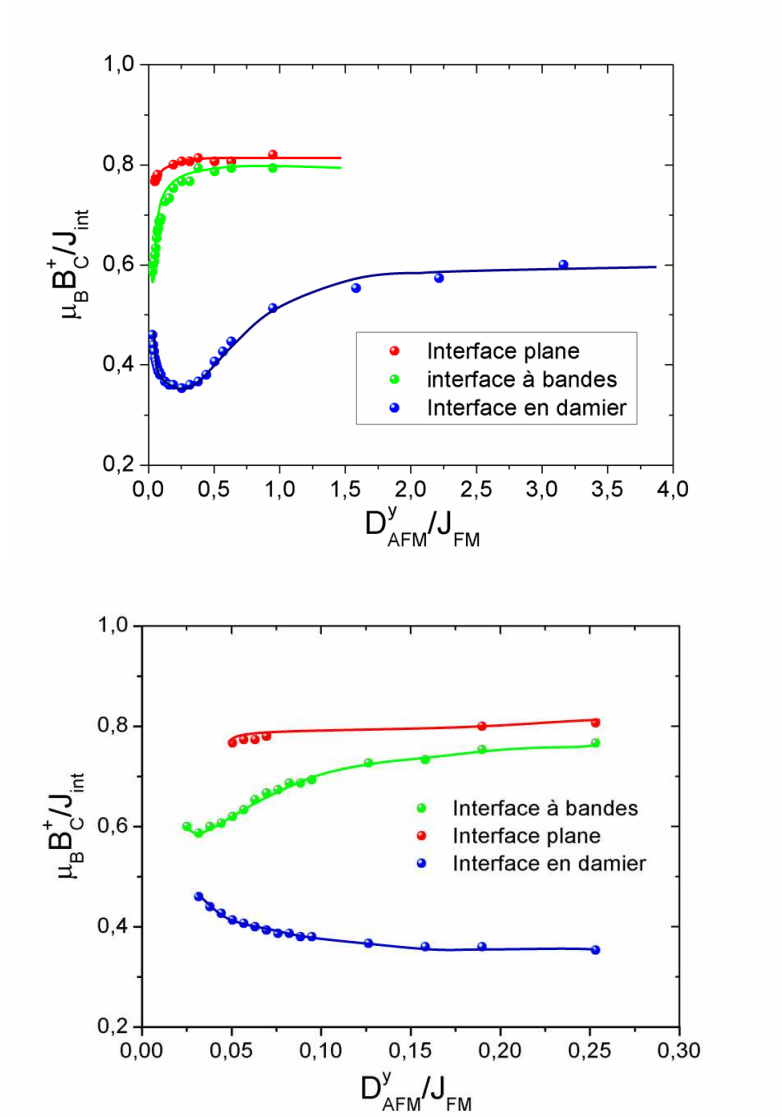


FIGURE 3.3.12 – Variation de B_C^+ en fonction de l'anisotropie de la couche AFM pour les trois interfaces (à gauche). Agrandissement de la région D^y_{AFM} faible (à droite) (les barres d'erreurs estimées sont plus petites que les symboles et les lignes continues sont des guides pour les yeux).

Interface plane

Pour l'interface plane et D^y_{AFM} faible, B_C^+ augmente et atteint la valeur asymptotique $\mu_B B_C^+/J_{int} = 0,82 \pm 0,01$ en accord avec la valeur prédite par le modèle de MB ($\mu_B B_+^{MB}/J_{int} = 0,8$).Nous avons représenté, figures 3.3.13 et 3.3.14, les composantes selon Ox et Oy de l'aimantation réduite de chaque monocouche en fonction du temps durant le retournement. Comme on peut le voir, l'aimantation des monocouches dans l'AFM surtout celles à l'interface (courbes bleues claire, figure 3.3.13) s'écarte de l'axe Oy pendant le retournement de la couche FM (figure 3.3.14).

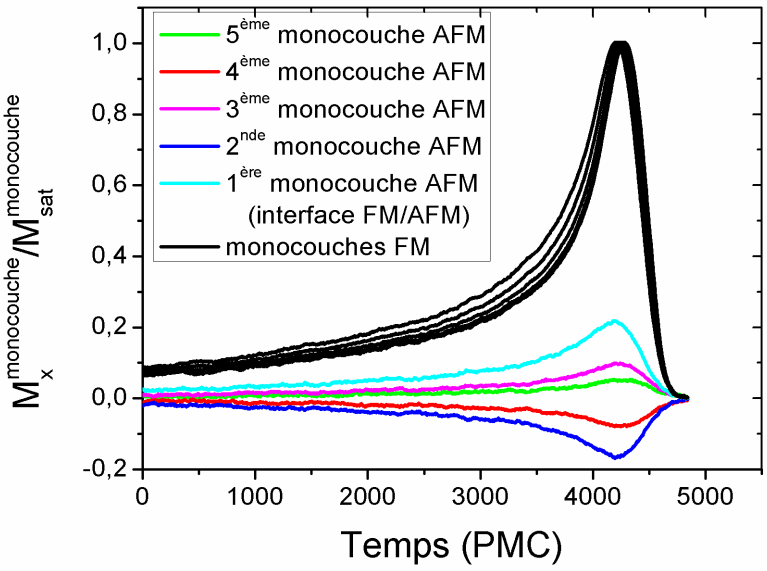


FIGURE 3.3.13 – Dépendance en temps de la composante suivant Ox de l'aimantation réduite des monocouches à B_C^+ pour l'interface plane ($D_y^{AFM}/J_{FM} = 0,06$).

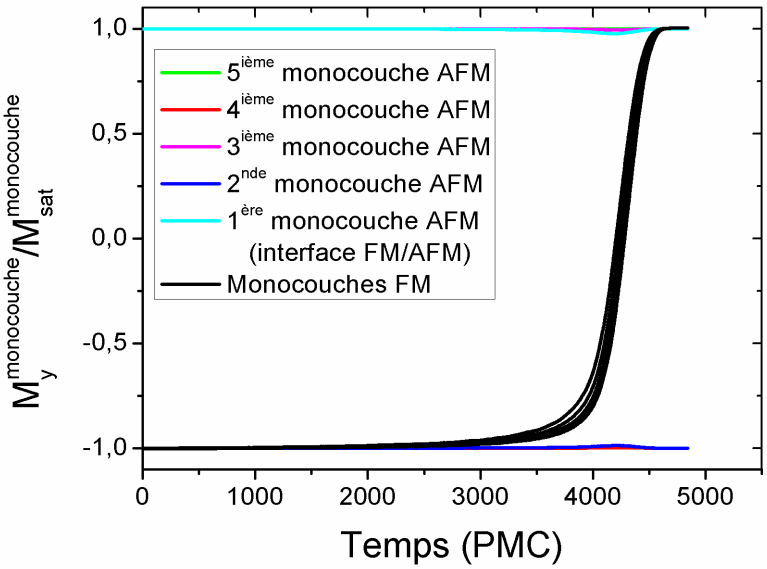


FIGURE 3.3.14 – Dépendance en temps de la composante suivant Oy de l'aimantation réduite des monocouches à B_C^+ pour l'interface plane ($D_y^{AFM}/J_{FM} = 0,06$).

Cette déviation, schématisée figure 3.3.15, intervient car elle correspond à un retournement via une barrière d'énergie plus faible. Elle est le résultat de la compétition entre l'énergie d'échange à l'interface FM/AFM, l'anisotropie de la couche AFM et l'énergie Zeeman (diminution de la première et augmentation de la seconde et de la troisième).

Nous remarquons que cette déviation se produit lorsque $\boldsymbol{M}_{FM} \perp \boldsymbol{M}_{AFM}$ car c'est pour un angle $\pi/2$ entre deux moments que la diminution de l'énergie d'échange à l'interface, associé à une variation d'angle $\delta\theta$, est maximale (ici $\delta\theta \simeq 13°$).

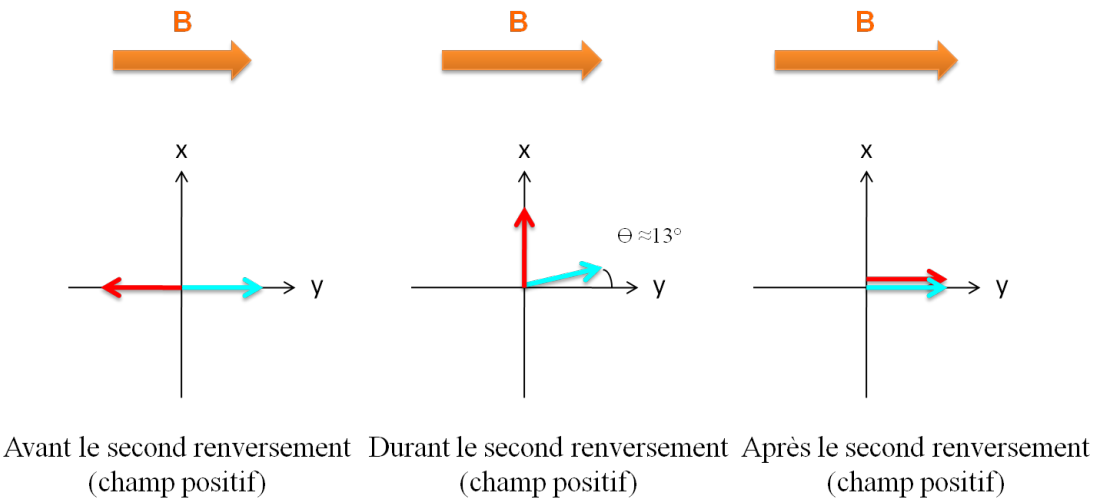


FIGURE 3.3.15 – Représentation schématique des moments FM et AFM à l'interface FM/AFM au cours du second retournement pour l'interface plane ($D^y_{AFM}/J_{FM} = 0,06$).

Interface à bandes

La variation de B_C^+ est qualitativement la même que pour l'interface plane. Cependant B_C^+ est plus faible pour l'interface à bandes lorsque D^y_{AFM} est faible, contrairement au cas de la couche AFM bloquée figure 3.3.2 (§ 3.3.1). Ceci s'explique par le désalignement des moments AFM par rapport à leur axe facile, après le premier retournement de la couche FM (à B_C^-). En effet, suite à ces désalignements le champ local sur les sites FM de l'interface FM/AFM n'est plus le même pour les interfaces plane et à bandes avant le second retournement. Ces résultats mettent en évidence que le champ local est alors plus important dans le cas de l'interface à bandes conduisant ainsi à un amorcement du retournement de la couche FM pour un champ B_C^+ plus faible.

Interface en damier

La variation de B_C^+ est non monotone et B_C^+ atteint un minimum vers $D^y_{AFM}/J_{FM} \approx 0,25$ (figure 3.3.12).

- $D^y_{AFM}/J_{FM} < 0,25$

Le plan mixte interfacial présente une configuration magnétique non colinéaire entre le premier et le second renversement ($B_C^- > B$ et $B < B_C^+$). Ceci est dû à la compétition entre l'anisotropie des moments AFM et les interactions d'échange (forte rugosité

donc de nombreuses liaisons à l'interface). Lorsque l'anisotropie est faible, les moments AFM sont désalignés de leur axe facile (diminution du coût en énergie d'échange). Pour $D^y_{AFM}/J_{FM} = 0,03$ les moments AFM sont même perpendiculaires à leur axe facile et les moments FM sont également déviés de leur axe facile (figure 3.3.16). Plus D^y_{AFM} augmente, plus le coût en énergie d'anisotropie de la couche AFM augmente. Les moments de la couche AFM sont alors de moins en moins déviés de leur axe facile et les moments de la couche FM de plus en plus de façon à quasiment conserver l'angle entre moments FM et AFM à l'interface ($D^y_{AFM}/J_{FM} = 0,13$). Ce mécanisme semble permettre une diminution de la barrière d'énergie des moments FM et donc une diminution de B^+_C.

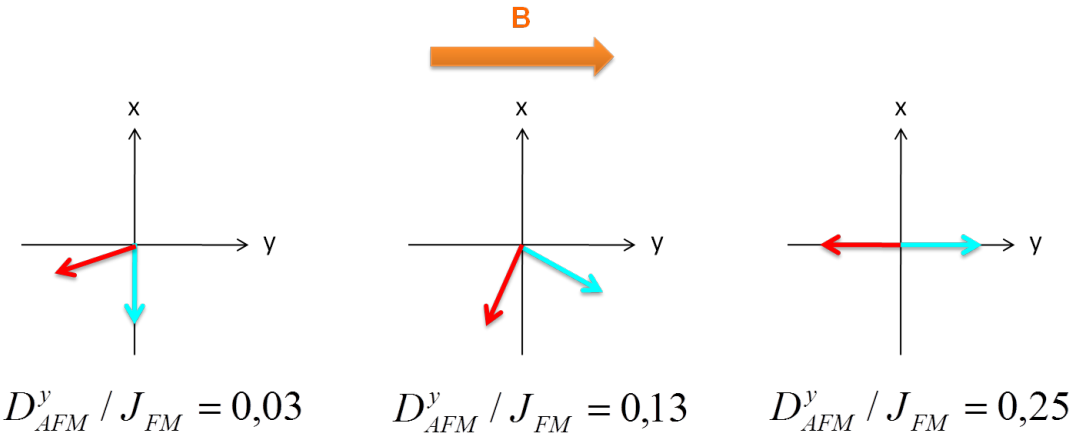


FIGURE 3.3.16 – Représentation schématique des moments FM et AFM du plan mixte à l'interface FM/AFM avant le second retournement (B>0) pour l'interface en damier à différentes valeurs de D^y_{AFM}.

- $D^y_{AFM}/J_{FM} \geq 0,25$

Pour $D^y_{AFM}/J_{FM} \approx 0,25$, les moments AFM et FM sont parfaitement alignés avec leur axe d'anisotropie mais sont antiparallèles (figure 3.3.16). De fait, l'énergie d'échange à l'interface se trouve à son maximum (les liaisons sont complètement frustrées). On retrouve alors le comportement observé pour l'interface plane lors du retournement de la couche FM, conduisant à la même dépendance en D^y_{AFM} de B^+_C. Cette déviation des moments AFM lors du retournement de la couche FM, devient de plus en plus faible puis disparaît lorsque l'on augmente D^y_{AFM}. Ceci conduit donc à une augmentation de B^+_C lorsque $D^y_{AFM} > 0,25$. Le champ de retournement B^+_C atteint ensuite la valeur asymptotique $\mu_B B^+_C/J_{int} = 0,63 \pm 0,01$ (figure 3.3.17) correspondant à la valeur obtenue par simulation dans le cas d'une couche AFM bloquée. On remarque que cette valeur est celle du modèle de MB avec un nombre de liaisons J_{int} frustrées à l'interface égal à trois ($B^{MB}_+ = \frac{2K_{FM}e_{FM}-3|J_{int}|}{M_{FM}e_{FM}}$). Dans notre cas, la moitié des moments FM présentent une liaison J_{int} frustrée à l'interface et l'autre moitié présente quatre liaisons J_{int} frustrées et une

liaison J_{int} non frustrées, ce qui équivaut à trois liaisons J_{int} frustrées. Cela fait donc deux liaisons J_{int} frustrées en moyenne sur l'interface. On observe donc que la valeur obtenue par simulation est égale à celle du modèle de MB non pas avec la valeur moyenne du nombre de liaisons J_{int} frustrées ($\mu_B B_+^{MB}/J_{int} = 0,72$) mais avec la valeur la plus grande ($\mu_B B_+^{MB}/J_{int} = 0,62$). Cela confirme que les sites FM à plus fort champ local gouvernent le retournement (sites de nucléation).

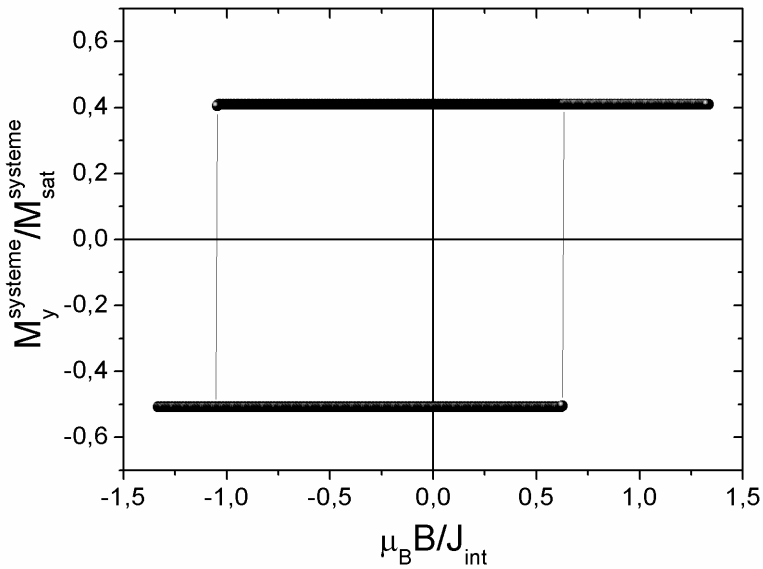


FIGURE 3.3.17 – Cycle d'hystérésis simulé de la bicouche pour une couche AFM bloquée.

La figure 3.3.18, représente la variation du champ d'échange en fonction de D_{AFM}^y. La variation de $|B_E|$ est approximativement la même pour les interfaces plane et à bandes sauf pour les faibles valeurs de D_{AFM}^y. La valeur de $|B_E|$ pour les fortes valeurs de D_{AFM}^y (cas limite d'une couche AFM rigide) est en bon accord avec la valeur attendue par le modèle de MB ($\mu_B B_E^{MB}/J_{int} = 0,1$). Pour l'interface en damier, $|B_E|$ est significativement plus important et présente un maximum pour $D_{AFM}^y/J_{FM} \approx 0,25$. Ainsi, pour $D_{AFM}^y/J_{FM} \leq 0,25$, nous observons bien une augmentation du champ d'échange en accord avec les prédictions théoriques [12, 14]. Cependant, la diminution de l'amplitude du champ d'échange lorsque $D_{AFM}^y/J_{FM} > 0,25$ n'a pas été prédite. Nous souhaitons donc mettre l'accent sur le fait que $|B_E|$ dépend fortement du type de l'interface et de la constante d'anisotropie de la couche AFM.

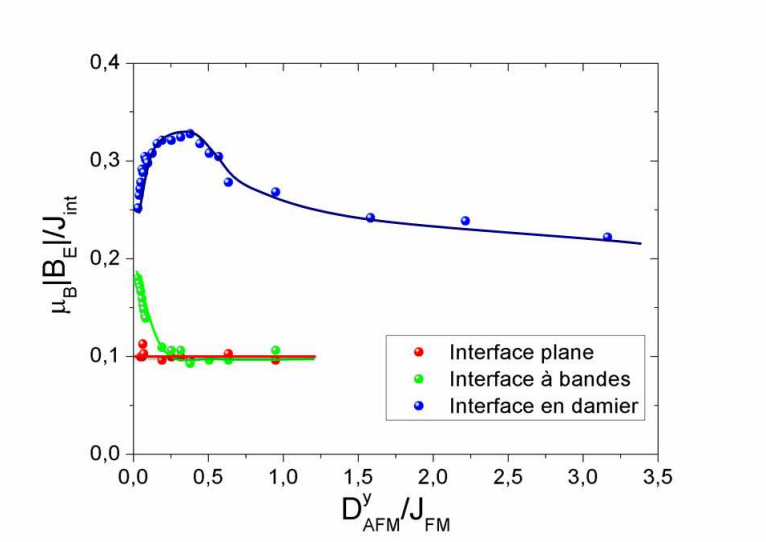


FIGURE 3.3.18 – Variation du champ d'échange en fonction de D^y_{AFM} pour les trois interfaces (les barres d'erreurs estimées sont plus petites que les symboles et les lignes continues sont des guides pour les yeux).

3.3.2.2 Effet de la température

L'étude présentée § 3.3.1 a été faite à très basse température. Or, quand la température augmente, les zones magnétiquement frustrées suite à la rugosité risquent de se désordonner et pourraient ainsi ne plus contribuer au couplage d'échange. Nous avons donc étudié l'effet de la température sur le champ d'échange pour les trois interfaces décrites précédemment (plane, à bandes et en damier). Les températures considérées sont inférieures à la température de Néel de l'AFM qui est donnée par $\frac{k_B T_N}{J_{AFM} S^2_{AFM}} = 1,443$ pour un réseau CS [59]. Nous avons considéré le cas sans paroi de domaine, c'est à dire avec une anisotropie de la couche AFM importante.

La variation thermique des champs de retournement ($|B_C^-|$, B_C^+) et d'échange ($|B_E|$) pour les trois interfaces est représentée figures 3.3.19, 3.3.20 et 3.3.21. En premier lieu, nous remarquons que la décroissance de $|B_C^-|$ est identique, aux erreurs statistiques près, pour les trois interfaces puisque le retournement s'amorce à l'interface libre de la couche FM comme mentionné précédemment § 3.3.1. Pour l'interface plane, nous observons sensiblement la même diminution pour $|B_C^-|$ et B_C^+ quand la température augmente, donc B_E est quasiment constant. La même décroissance de $|B_C^-|$, en l'absence de couplage à l'interface ($|B_C^-| = B_C^+$), (figure 3.3.22) a également été observée. Cela signifie que la diminution des champs de retournement pour l'interface plane n'est due qu'à l'agitation thermique [60] et non à une réduction du couplage effectif FM/AFM qui serait due à un désordre magnétique à l'interface. Ceci est de plus confirmé par le fait que le champ d'échange est quasiment constant.

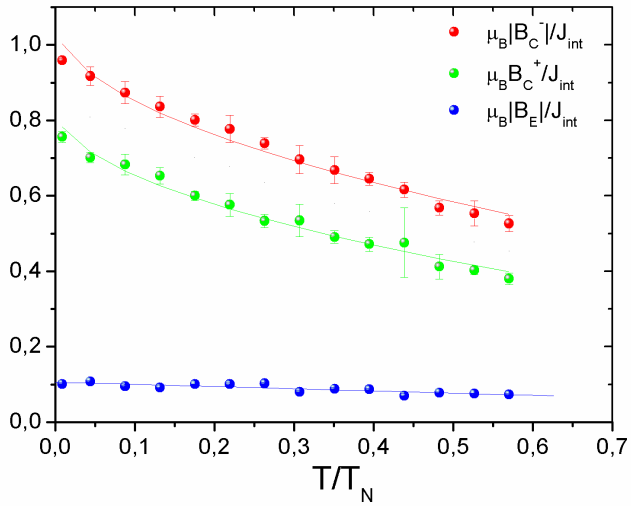


FIGURE 3.3.19 – Variation thermique des champs de retournement (négatif et positif) et du champ d'échange pour l'interface plane (les lignes continues sont des guides pour les yeux).

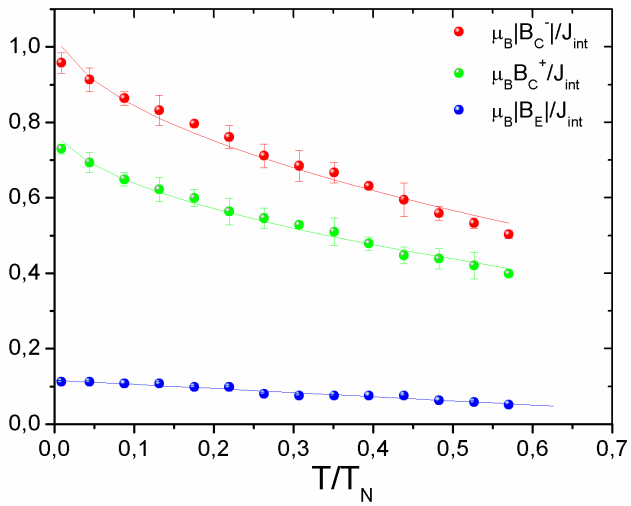


FIGURE 3.3.20 – Variation thermique des champs de retournement (négatif et positif) et du champ d'échange pour l'interface à bandes (les lignes continues sont des guides pour les yeux).

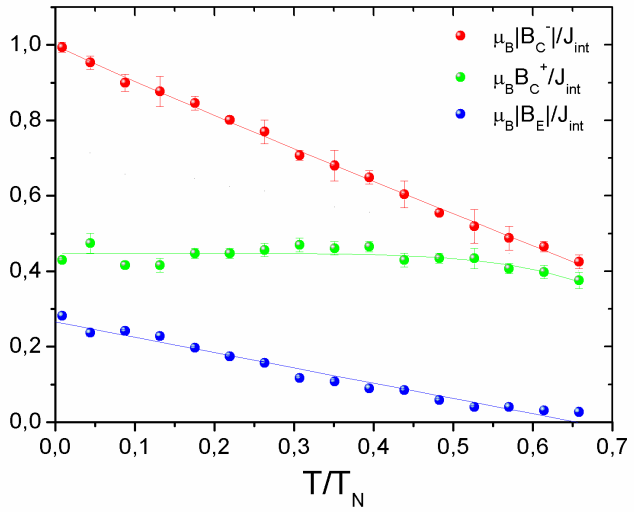


FIGURE 3.3.21 – Variation thermique des champs de retournement (négatif et positif) et du champ d'échange pour l'interface en damier (les lignes continues sont des guides pour les yeux).

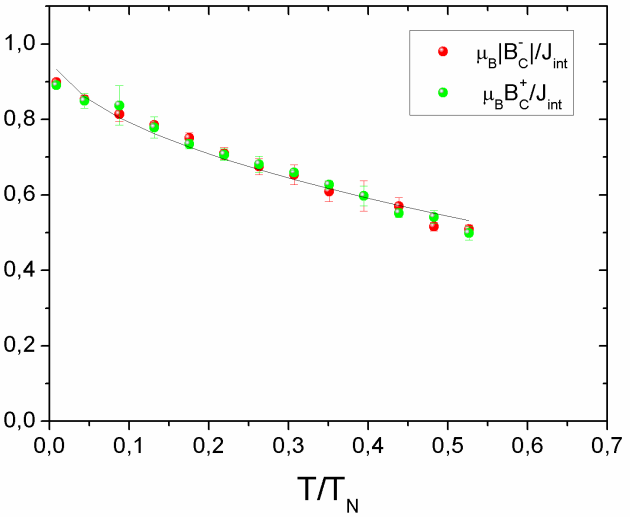


FIGURE 3.3.22 – Variation thermique des champs de retournement (négatif et positif) et du champ d'échange pour l'interface plane (la ligne continue est un guide pour les yeux).

Pour l'interface à bandes, aucune différence significative n'est observée à 0 K. Ceci est en accord avec le fait que, pour D^y_{AFM} suffisamment important, les bicouches avec interface plane ou à bandes présentent le même comportement (voir figures 3.3.12 et 3.3.18). On note seulement que le champ d'échange décroit légèrement quand la température augmente. Pour l'interface en damier, B_C^+ est approximativement constant (figures 3.3.21 et 3.3.23), ce qui se traduit par une diminution de B_E puisque $|B_C^-|$ décroit quand la tem-

pérature augmente.

Afin d'expliquer pourquoi B_C^+ est quasiment constant, nous avons tracé, figure 3.3.24, la variation du champ local moyen $< \mu_B B_{loc}/J_{int} >$ sur les sites FM de l'interface FM/AFM durant le cycle d'hystérésis à $T/T_N \approx 0,65$ et à $T = 0\,\mathrm{K}$. Ce champ local traduit l'ordre magnétique dans la couche AFM au niveau de l'interface.

A $T/T_N \approx 0,65$, on observe, pour l'interface en damier, que celui-ci est seulement à 20% de sa valeur à 0 K ($< \mu_B B_{loc}/J_{int} > \approx 0,1$ comparé à 0,5 à 0 K). Ceci indique que les moments AFM à l'interface FM/AFM sont désordonnés lorsque la température augmente, donc que le couplage effectif est significativement diminué, ce qui tend à augmenter B_C^+. Mais lorsque la température croît, il y a compétition entre ce dernier effet et l'agitation thermique qui tend à diminuer B_C^+. Ceci explique pourquoi B_C^+ est approximativement constant. Si l'on compare à l'interface plane, le désordre magnétique à l'interface FM/AFM dû à l'agitation thermique est plus important pour l'interface en damier car celle-ci est plus frustrée. En effet, pour l'interface plane $< \mu_B B_{loc}/J_{int} >= 0,25$ à $T/T_N \approx 0,65$ comme à $T = 0\,\mathrm{K}$ (figure 3.3.24). Le désalignement dû à l'agitation thermique des moments AFM à l'interface est donc faible pour l'interface plane, en accord avec un champ d'échange sensiblement indépendant de T (figure 3.3.19).

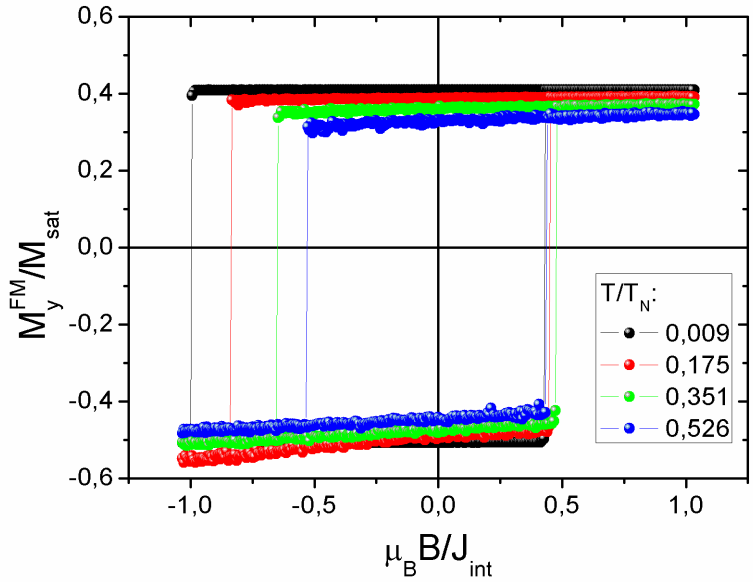


FIGURE 3.3.23 – Cycles d'hystérésis pour le cas de l'interface en damier à différentes températures.

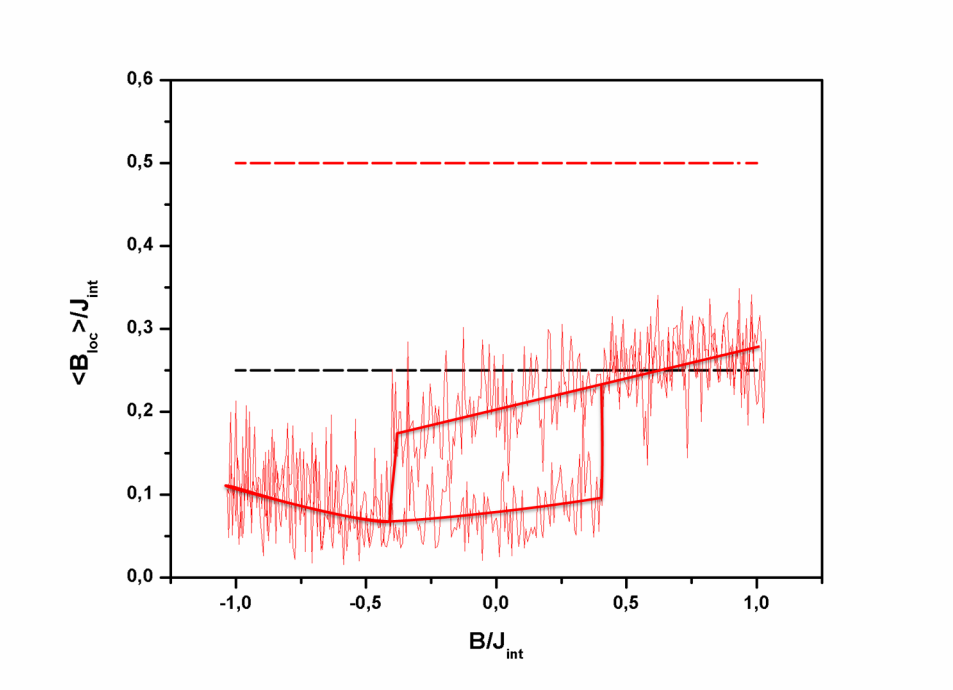


FIGURE 3.3.24 – Variation de la contribution du champ local moyen dû au couplage interfacial avec le champ magnétique appliqué. La courbe noire correspond à l'interface plane ($T = 0$K et $T/T_N \approx 0,65$). Les courbes rouges correspondent à l'interface en damier (ligne horizontale en tiret pour $T = 0$ K et continue pour $T/T_N \approx 0,65$)

Finalement, nous remarquons que la décroissance linéaire de B_E avec la température pour le cas de l'interface en damier est en accord qualitatif avec ce qui peut être expérimentalement observé pour le système Co/IrMn (décroissance quasi-linéaire pour une faible épaisseur d'IrMn [58]).

3.3.2.3 Conclusion

Nos résultats numériques ont confirmé la forte influence de la rugosité interfaciale sur l'anisotropie d'échange.

La dépendance en fonction de l'anisotropie de la couche AFM et la dépendance en température du champ d'échange sont fortement affectées par la rugosité à l'interface FM/AFM. Pour l'interface en damier, le champ d'échange est plus important et un maximum est observé lorsque l'anisotropie de la couche AFM croît contrairement à l'interface plane. Ce maximum peut seulement apparaître quand la frustration magnétique est assez forte et la couche AFM non bloquée donnant lieu à des configurations magnétiques non colinéaires, contrairement au modèle de MB.

L'effet de la température est également différent lorsque la rugosité augmente. Nous avons mis en évidence que la frustration magnétique, combinée à l'agitation thermique peut être responsable d'une diminution significative du couplage effectif entre les couches FM et AFM conduisant à une annulation du champ d'échange. Ceci confirme que dans les systèmes réels, la frustration magnétique à l'interface FM/AFM peut conduire, lorsque la température augmente, à des régions magnétiquement désordonnées qui ne contribuent pas au champ d'échange.

Chapitre 4

Etude de bicouches FM/AFM : approche granulaire

4.1 Introduction

Les bicouches FM/AFM élaborées par les certaines techniques usuelles telles que la pulvérisation cathodique et l'évaporation sont polycristallines. C'est pourquoi, dans ce chapitre, nous avons réalisé une modélisation à l'échelle granulaire. Chaque couche est alors constituée d'un ensemble de grains. Nous allons ainsi faire intervenir la notion de température de blocage d'un grain qui dépend du temps de mesure t_{mes} de l'aimantation. Si l'on considère un grain à anisotropie uniaxial en champ nul, si $t_{mes} \gg \tau$, où τ est le temps de relaxation du grain ($\tau = \tau_0 e^{\Delta E/k_B T}$ diminue lorsque la température augmente), alors l'aimantation du grain va se retourner de nombreuses fois pendant la mesure, ainsi l'aimantation mesurée sera nulle. Si $t_{mes} \ll \tau$, son aimantation ne se retournera pas lors de la mesure, de fait l'aimantation mesurée sera l'aimantation portée par le grain pendant toute la mesure. Dans le premier cas, le grain sera dans un état d'équilibre thermodynamique appelé état superparamagnétique et dans le second dans un état "bloqué" (ferromagnétique ou antiferromagnétique). L'état du grain (superparamagnétique ou bloqué) dépend donc du rapport t_{mes}/τ. La transition entre l'état bloqué et l'état superparamagnétique aura lieu lorsque $t_{mes} \simeq \tau$, c'est-à-dire à une certaine température. La température pour laquelle $t_{mes} = \tau$ est appelée température de blocage (T_B). Ainsi, pour $T > T_B$, un grain AFM sera dans un état superparamagnétique et ne contribuera plus à l'anisotropie d'échange. Puisque la température de blocage d'un grain est proportionnelle à son volume, la structure polycristalline et plus précisément la distribution en volume aura une influence importante sur les propriétés d'anisotropie d'échange et donc sur les applications potentielles (aimants permanents, têtes de lecture des disques durs, MRAMs ou oscillateurs radio-fréquence [9]).

De nombreux travaux portant sur les températures de blocage ainsi que sur l'influence

de la taille des grains, de l'épaisseur de la couche AFM et de la température, sur le champ d'échange ont été réalisées. D'après ces résultats, issus d'études expérimentales, numériques ou bien analytiques, il ressort que le champ d'échange H_E, augmente avec la taille caractéristique des grains AFM [61, 62, 63, 64] et avec l'épaisseur de la couche AFM [62, 65]. Cependant, Takano et Uyama ont quant à eux observé une diminution de H_E lorsque la taille des grains augmente [15, 66] et une diminution de H_E quand l'épaisseur de la couche AFM augmente a également été observée [67]. Il apparaît également que la variation thermique du champ coercitif H_C présente un pic aux alentours de T_B [61, 68]. En ce qui concerne la température de blocage T_B, celle-ci augmente lorsque l'épaisseur de la couche AFM (e_{AFM}) croit [9, 64, 65, 69, 70, 8], ainsi que lorsque la taille caractéristique des grains augmente [62, 65, 69]. De plus, une étude récente a mis en évidence une distribution bimodale des températures de blocage [8]. La distribution présente donc deux pics, un à haute température et un autre à basse température. Le pic haute température (HT) a été attribué à la distribution en volume des grains. Le second pic, observé à basse température (BT) étant indépendant de l'épaisseur de la couche AFM a été associé à des régions "verre de spin" à l'interface FM/AFM. Une étude sur les même systèmes mais nanostructurés [71] montre la présence d'une contribution supplémentaire à ce pic BT attribuée aux grains en bord de plot.

L'anisotropie d'échange à l'échelle granulaire a déjà été étudiée [63, 72, 73, 74, 75, 76, 77]. Lors de ces études, la distribution en volume des grains a été mesurée à partir des micrographie obtenue par Microscopie Electronique en Transmission (MET) sur environ 500 grains de leurs échantillons. Ces distributions sont alors ajustées par une loi log-normale donnant ainsi le volume moyen ainsi que l'écart type de la distribution. Il est alors possible de coupler les résultats numériques et expérimentaux en utilisant la formule :

$$H_E \propto \int_{V_C}^{V_{SET}} f(V)dV$$

où V_C est le volume en dessous duquel un grain est considéré comme instable (comportement superparamagnétique) et V_{SET} le volume au dessus duquel un grain AFM ne peut être aligné avec la couche FM lors du recuit initial, sous champ magnétique, de l'échantillon. Cependant ces études basées sur un modèle datant des années 70, le modèle de Fulcomer et Charap [78], ne prennent pas en compte les interactions d'échange entre grains.

Dans ce chapitre, nous allons étudier d'une part l'effet de la température sur les propriétés d'anisotropie d'échange et d'autre part les distributions de température de blocage dans le cas d'une bicouche granulaire. Ainsi, dans ce chapitre nous n'aurons pas accès aux informations locales (atomiques). Celles-ci étaient essentielles à l'étude de l'impact de la

frustration sur l'anisotropie d'échange, mais ne le sont pas nécessairement dans l'étude d'une couche polycristalline (influence des couplages, des épaisseurs, des distributions volumiques ...) et seraient coûteuse en temps de calcul. A long termes, ils seraient intéressant d'élaborer un modèle multi-échelle (atomique à l'interface FM/AFM et granulaire dans les couches FM et AFM) [79].

Après description de notre modèle et présentation de la méthode de calcul des températures de blocage, nous présenterons nos résultats qui seront séparés en trois parties :

- Etude d'une bicouche FM/AFM monodisperse
  - Anisotropie indépendante de la température
    - ⋆ $J_{int} = J_{FM} = 0$
    - ⋆ $J_{int} \neq 0,\ J_{FM} = 0$
    - ⋆ $J_{int} \neq 0,\ J_{FM} \neq 0$
  - Anisotropie dépendante de la température
    - ⋆ $J_{int} \neq 0,\ J_{FM} = 0$
    - ⋆ $J_{int} \neq 0,\ J_{FM} \neq 0$
- Etude d'une bicouche FM/AFM polydisperse
  - $J_{int} = J_{FM} = 0$
  - $J_{int} \neq 0,\ J_{FM} = 0$
  - $J_{int} \neq 0,\ J_{FM} \neq 0$
- Etudes des distributions de température de blocage des grains AFM
  - Comparaison couche monodisperse/polydisperse
  - Influence du couplage à l'interface (polydisperse)
  - Influence de la distribution volumique (polydisperse)
    - ⋆ Influence du volume moyen et de l'écart-type
    - ⋆ Influence de l'épaisseur de la couche AFM
  - Distribution bimodale (polydisperse)

Nos résultats numériques seront comparés aux résultats expérimentaux.

Conventions de signe pour les champs

- Les valeurs des champs de notre modèle seront algébriques ;
- Le champ coercitif H_C (demi-largeur du cycle) sera positif ;
- Le champ de retournement H_{sw} sera positif ;
- Le champ d'échange H_E sera négatif.

4.2 Modèle et simulation

Dans cette partie, chaque couche est constituée d'un ensemble de grains. Nous faisons l'hypothèse d'une croissance colonnaire. La microstructure des deux couches (FM et AFM) est prise identique. Nous avons considéré que chaque grain est monodomaine et que le retournement d'aimantation se produit par rotation uniforme, ainsi chaque grain FM (AFM) est modélisé par un (deux) macro-moment(s) (figure 4.2.1).

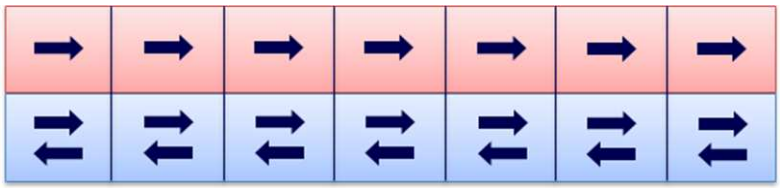


FIGURE 4.2.1 – Représentation schématique de la structure granulaire dans le cas de couches monodisperses.

De plus, nous supposons que la barrière d'énergie, due en grande partie à l'anisotropie, est très grande devant l'énergie thermique. Ainsi les moments magnétiques sont "quasiment toujours" suivant leur axe facile Oy ("up" ou "down"). Nous avons donc modélisé chaque grain par un macro-moment colinéaire à Oy : $\boldsymbol{\mu} = -g\mu_B\boldsymbol{\sigma}$ où le macrospin $\boldsymbol{\sigma}$ est défini par :

$$\boldsymbol{\sigma_{FM}} = \sum_{\text{i}\in\text{grain FM}} \boldsymbol{S_i} = n_{FM}\boldsymbol{S_{FM}} \tag{4.2.1}$$

pour un grain FM (n_{FM} : nombre de spins dans le grain FM, $\boldsymbol{S_{FM}}$: spin atomique, identique pour tous les atomes) et,

$$\boldsymbol{\sigma_{AFM}} = \frac{1}{2}\sum_{\text{i}\in\text{grain AFM}} \boldsymbol{S_i} = \frac{1}{2}n_{AFM}\boldsymbol{S_{AFM}} \tag{4.2.2}$$

pour un grain AFM ($\frac{1}{2}n_{AFM}$: nombre de spins d'un sous-réseau du grain AFM, *i.e.* moitié du nombre de spins contenu dans le grain, $\boldsymbol{S_{AFM}}$: spin atomique, identique pour tous les atomes d'un même sous-réseau) (figure 4.2.2). Par la suite lorsque nous parlerons d'aimantation de la couche AFM, nous ferons en fait référence à l'aimantation du sous-réseau AFM en contact avec la couche FM. Chaque grain FM est couplé ferromagnétiquement avec ses plus proches voisins qui sont, soit FM, soit AFM à l'interface FM/AFM. Les grains AFM quant à eux ne sont pas couplés entre eux. L'énergie magnétique totale en fonction des macro-spins s'exprime :

$$E = \sum_{\text{grains FM}} \tilde{J}_{FM}\boldsymbol{\sigma}_{\mathbf{FM}} \cdot \boldsymbol{\sigma}_{\mathbf{FM}} - \sum_{\text{grains interface}} \tilde{J}_{int}\boldsymbol{\sigma}_{\mathbf{FM}} \cdot \boldsymbol{\sigma}_{\mathbf{AFM}} - \sum_{\text{grains FM}} \tilde{D}_{FM}(\sigma^y_{FM})^2 - \sum_{\text{grains AFM}} \tilde{D}_{AFM}(\sigma^y_{AFM})^2 + \mu_0\mu_B g_{FM}\mathbf{H} \cdot \sum_{\text{grains FM}} \boldsymbol{\sigma}_{\mathbf{FM}}$$

où $\tilde{J}$ et $\tilde{D}$ sont des paramètres effectifs reliés aux intégrales d'échange et aux constantes d'anisotropie, respectivement. Notons que ce modèle ne prend pas en compte les intéractions dipolaires existant entre les grains.

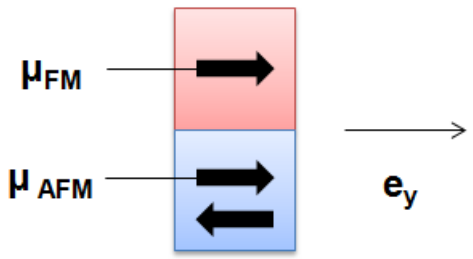


FIGURE 4.2.2 – Schéma d'un couple de grains FM et AFM

Dans les parties 4.2.1 et 4.2.2, nous nous plaçons, pour des raisons de simplicité, dans le cas d'une distribution monodisperse. Les relations obtenues entre les paramètres effectifs et les constantes atomiques devront donc être adaptées lors de l'étude de couches polydisperses.

4.2.1 Constantes d'anisotropie effectives

Dans l'approche atomique, l'énergie d'anisotropie minimale d'un grain s'écrit $E_a = -nDS^2$, où n et D sont le nombre d'atomes dans le grain et la constante d'anisotropie par atome. Pour l'approche granulaire, nous écrivons cette énergie $E_a = -\tilde{D}\sigma^2$, où $\tilde{D}$ est la constante d'anisotropie effective d'un grain et σ son macro-spin. Ainsi :

$$nDS^2 = \tilde{D}\sigma^2$$

$$\sigma_{FM} = n_{FM}S_{FM} \text{ et } \sigma_{AFM} = \frac{1}{2}n_{AFM}S_{AFM}$$

Finalement, la constante d'anisotropie effective d'un grain de la couche FM est :

$$\tilde{D}_{FM} = \frac{D_{FM}}{n_{FM}} \tag{4.2.3}$$

La constante d'anisotropie effective d'un grain de la couche AFM est :

$$\tilde{D}_{AFM} = \frac{4D_{AFM}}{n_{AFM}} \tag{4.2.4}$$

4.2.2 Intégrales d'échange effectives

Dans l'approche atomique, l'énergie d'échange à l'interface entre deux grains i et j couplé ferromagnétiquement s'écrit $E_{ech} = -n_{int}J_{ij}S_iS_j$, où n_{int} est le nombre de spin à l'interface entre les deux grains, J_{ij} est l'intégrale d'échange entre un spin S_i contenu dans le grain i et et un spin S_j contenu dans le grain j. Pour l'approche granulaire, cette énergie d'échange s'écrit $E_{ech} = -\tilde{J}\sigma_i\sigma_j$, où $\tilde{J}$ est l'intégrale d'échange effective entre le grain i et le grain j. Ainsi :

$$n_{int}J_{ij}S_iS_j = \tilde{J}\sigma_i\sigma_j$$

Finalement l'intégrale d'échange effective entre deux grains de la couche FM est :

$$\tilde{J}_{FM} = \frac{n_{spin}^{FM/FM}J_{FM}}{(n_{FM})^2} \tag{4.2.5}$$

où $n_{spin}^{FM/FM}$ est le nombre de spin à l'interface entre les deux grains FM considérés. L'intégrale d'échange effective entre un grain FM et un grain AFM est :

$$\tilde{J}_{int} = \frac{2\,n_{spin}^{FM/AFM}J_{int}}{n_{AFM}n_{FM}} \tag{4.2.6}$$

où $n_{spin}^{FM/AFM}$ est le nombre de spin à l'interface entre les grains FM et AFM considérés.

4.2.3 Barrières d'énergie

Les macro-moments magnétiques $\boldsymbol{\mu_{FM}}$ et $\boldsymbol{\mu_{AFM}}$ et le champ appliqué étant colinéaires à Oy, le champ local est colinéaire à Oy et la barrière d'énergie d'un grain FM (figure 4.2.3) est :

$$\Delta E_{FM}^{\pm} = \tilde{D}_{FM}\sigma_{FM}^2\left(1 \pm \frac{H_{loc}^{FM}}{H_a^{FM}}\right)^2 \tag{4.2.7}$$

où H_{loc}^{FM} est le champ local du grain FM et H_a^{FM} le champ d'anisotropie du grain FM :

$$H_a^{FM} = \frac{2\tilde{D}_{FM}|\sigma_{FM}|}{\mu_0 \mu_B g_{FM}} \tag{4.2.8}$$

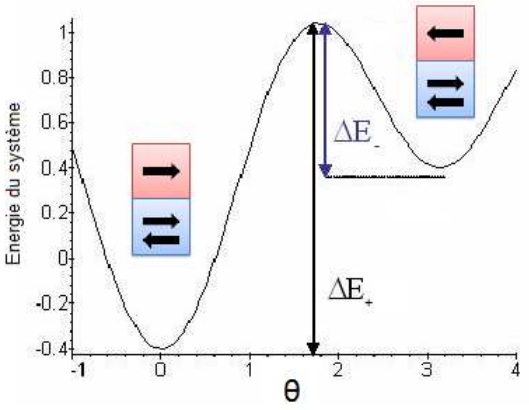


FIGURE 4.2.3 – Barrière d'énergie d'un grain FM couplé ferromagnétiquement à un grain AFM en fonction l'angle θ entre les deux macro-moments.

Le champ local H_{loc}^{FM} est la somme d'une contribution H_e^{FM} due aux interactions d'échange et au champ appliqué H ($H_{loc}^{FM} = H_e^{FM} + H$) et où :

$$H_e^{FM} = H_{int}^{FM} + H_{FM}^{FM} = -\frac{1}{2\mu_0 \mu_B g_{FM}} \left(\tilde{J}_{int}\sigma_{AFM} + \sum_{\text{voisins FM}} \tilde{J}_{FM}\sigma_{FM} \right) \tag{4.2.9}$$

où H_{int}^{FM} est le champ local dû au couplage entre le grain FM et le grain AFM à l'interface et H_{FM}^{FM} le champ local dû au coupage entre le grain FM et ses voisins FM. De même, la barrière d'énergie d'un grain AFM est :

$$\Delta E_{AFM}^{\pm} = \tilde{D}_{AFM}\sigma_{AFM}^2 \left(1 \pm \frac{H_{loc}^{AFM}}{H_a^{AFM}}\right)^2 \tag{4.2.10}$$

où H_{loc}^{AFM} est le champ local dû uniquement au couplage avec les grains FM de l'interface

et H_a^{AFM} le quasi champ d'anisotropie du sous-réseau ferromagnétique du grain AFM :

$$H_a^{AFM} = \frac{2\tilde{D}_{AFM}|\sigma_{AFM}|}{\mu_0 \mu_B g_{AFM}} \tag{4.2.11}$$

Le champ local H_{loc}^{AFM} est :

$$H_{loc}^{AFM} = H_e^{AFM} = H_{int}^{AFM} = -\frac{1}{2\mu_0 \mu_B g_{AFM}} \left(\tilde{J}_{int} \sigma_{FM} \right) \tag{4.2.12}$$

4.2.4 Paramètres numériques

Les valeurs numériques des paramètres physiques du modèle, à savoir : l'anisotropie de la couche FM (D_{FM}) et AFM (D_{AFM}), l'intégrale d'échange FM (J_{FM}) et à l'interface FM/AFM (J_{int}), les spins atomiques de la couche FM (S_{FM}) et AFM (S_{AFM}), le volume moyen des grains (V_0) et les températures de Curie (T_C) et de Néel (T_N) ainsi que le nombre de grains par couche (N) sont données dans le tableau 4.2.1. Les constantes effectives définies §4.2.1 et 4.2.2 dépendant du nombre de spins par grain, celles-ci seront donc modifiées lorsque l'épaisseur des couches variera ou lors de l'étude des couches polydisperses. C'est pourquoi le tableau 4.2.1 présente les paramètres atomiques.

D_{FM}/k_B (K)	0,06	S_{FM}	0,85
D_{AFM}/k_B (K)	0,45	S_{AFM}	1
J_{FM}/k_B (K)	0,4	T_C (K)	755
J_{int}/k_B (K)	0,7	T_N (K)	1073
V_0(nm^3)	450	N	1089

TABLE 4.2.1 – Valeurs numériques des paramètres du modèle.

4.3 Calcul des températures de blocage

La température de blocage T_B est la température pour laquelle le temps de relaxation τ, sans champ appliqué, est égal au temps de mesure t_{mes} :

$$\tau(T_B, H = 0) = t_{mes}$$

4.3.1 Bicouche sans interaction

Pour une bicouche sans interaction et sans champ appliqué, la barrière d'énergie ΔE n'est due qu'à l'anisotropie et est symétrique. Dans ce cas $\tau_+ = \tau_-$ et on a :

$$\tau \;=\; \tau_0 \exp[\Delta E/(k_B T)]$$

où τ_0 est un préfacteur dépendant de la température ($\tau_0 \sim 10^{-9} - 10^{-11}$s) [80]. Par ailleurs, le temps de mesure est lié au nombre de pas MC (n_{PMC}) par la relation :

$$t_{mes} \;= n_{PMC}\, \delta t$$

où δt est le temps physique associé à un pas MC. Des études antérieures ont montré que $\delta t \approx 2\tau_0$ [81]. La température de blocage vérifie donc la relation :

$$2n_{PMC} \simeq \exp[\Delta E/(k_B T_B)]$$

soit,

$$T_B = \frac{\Delta E}{k_B \ln(2n_{PMC})}$$

avec $\Delta E = \tilde{D}_{FM}\sigma^2_{FM}$ pour un grain FM et $\Delta E = \tilde{D}_{AFM}\sigma^2_{AFM}$ pour un grain AFM.

Si l'on admet que l'état d'équilibre est atteint dès que $\tau = t_{mes}$ et puisque $\tau(H \neq 0) < \tau(H = 0)$, la courbe $M_{FM}(H)$ à T_B sera donc la courbe d'équilibre (figure 4.3.1), et le champ coercitif sera nul à T_B. Par contre, pour $T < T_B$, la courbe $M_{FM}(H)$ s'écarte de la courbe d'équilibre au voisinage de $H = 0$ car $\tau > t_{mes}$ et on observe un cycle d'hysteresis, *i.e.* $H_C \neq 0$ (figure 4.3.2).

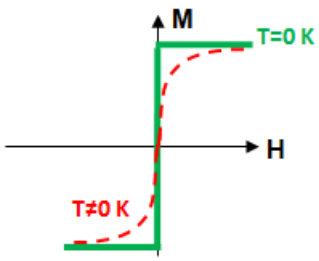


FIGURE 4.3.1 – Courbe d'équilibre $M_{FM}(H)$ pour une couche FM sans interaction.

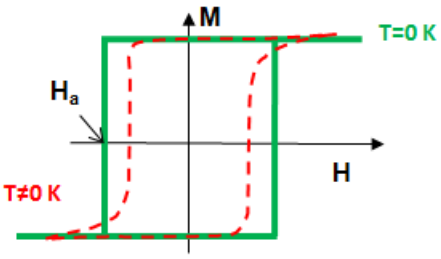


FIGURE 4.3.2 – Courbe $M_{FM}(H)$ pour une couche FM sans interaction hors équilibre.

4.3.2 Bicouche avec interactions

4.3.2.1 Grains de la couche FM

Bien qu'il y ait un couplage à l'interface entre les grains FM et AFM ($J_{FM} = 0$), les températures de blocage des grains FM sont identiques à celles calculées pour le cas sans couplage. En effet, en présence d'un couplage J_{int} et en supposant les grains AFM bloqués [1], la courbe d'équilibre $M_{FM}(H)$ est décalée de $-H_{int}^{FM}$ car le champ local ressenti par un grain FM est $H + H_{int}^{FM}$ (figure 4.3.3). L'annulation du champ coercitif aura donc lieu pour une température de blocage $T_B^{'}$ telle que $\tau(T_B^{'}, H = -H_{int}^{FM}) = t_{mes}$ *i.e.* $\tau(T_B^{'}, H_{loc}^{FM} = 0) = t_{mes}$. Ainsi,

$$\frac{1}{\tau(T_B^{'}, H_{loc}^{FM} = 0)} = \frac{1}{2\tau_0}\left(e^{\frac{-\Delta E_-}{k_B T_B^{'}}} + e^{\frac{-\Delta E_+}{k_B T_B^{'}}}\right)$$

où $\Delta E_- = \Delta E_+ = \Delta E$. De fait,

$$\frac{1}{\tau(T_B^{'}, H_{loc}^{FM} = 0)} = \frac{1}{\tau_0}\left(e^{\frac{-\Delta E}{k_B T_B^{'}}}\right) = \frac{1}{t_{mes}}$$

d'où $T_B^{'} = T_B$.

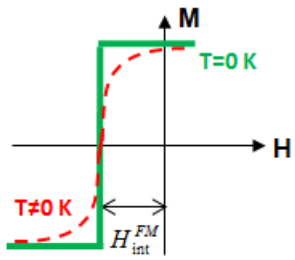


FIGURE 4.3.3 – Courbe d'équilibre $M_{FM}(H)$ pour une couche FM avec interaction.

1. Ainsi le champ H_{int}^{FM} peut être considéré comme statique

4.3.2.2 Grains de la couche AFM

Pour les grains AFM, la barrière d'énergie dépend de l'anisotropie des grains AFM mais aussi du champ local dû aux interactions à l'interface ce qui conduit à une asymétrie de la barrière d'énergie. La température de blocage calculée des grains AFM est alors obtenue à partir des relations :

$$\frac{1}{t_{mes}} = \frac{1}{2\tau_0}\left(\mathrm{e}^{-\frac{\Delta E_-}{k_B T_B}} + \mathrm{e}^{-\frac{\Delta E_+}{k_B T_B}}\right)$$

où $\Delta E_- = \tilde{D}_{AFM}\sigma^2_{AFM}\left(1 - \frac{H^{AFM}_{loc}}{H^{AFM}_a}\right)^2$ et $\Delta E_+ = \tilde{D}_{AFM}\sigma^2_{AFM}\left(1 + \frac{H^{AFM}_{loc}}{H^{AFM}_a}\right)^2$ sont les barrières d'énergie d'un grain AFM (H^{AFM}_{loc} est le champ local dû au couplage avec les grains FM [2] et H^{AFM}_a le champ d'anisotropie du grain AFM). Ne pouvant extraire analytiquement la température de blocage de cette dernière expression, la température de blocage des grains AFM (T^{AFM}_B) est déterminée numériquement.

4.4 Couches monodisperses

Nous avons, dans un premier temps, considéré une bicouche constituée de grains de volume identique. Cette étude préliminaire nous permet de tester notre modèle et constitue un point de repère pour l'étude d'une bicouche polydisperse. Chacune des couches (FM et AFM) est alors constituée de 1089 parallélépipèdes de base (7,5×7,5) nm^2 et de hauteur 8 nm correspondant à l'épaisseur de chaque couche. Nous avons étudié deux cas :

- Constantes d'anisotropie indépendantes de la température ;
- Constantes d'anisotropie dépendantes de la température.

Remarque : Des simulations réalisées pour un système de 4900 grains par couche, n'ont montré aucune différence significative en comparaison du système de 1089 grains par couche.

4.4.1 Constantes d'anisotropie indépendantes de la température

Les cycles d'hystérésis, la variation thermique des champs coercitif et d'échange ainsi que les températures de blocage ont été étudiés pour les trois cas cités précédemment ($J_{int} = J_{FM} = 0$, $J_{int} \neq 0 - J_{FM} = 0$ et $J_{int} \neq 0 - J_{FM} \neq 0$), afin d'identifier l'influence de chaque interaction.

2. On a supposé ici que les grains FM sont bloqués à T^{AFM}_B

4.4.1.1 Aucune interaction

Dans la mesure où il n'y a aucun couplage entre la couche FM et AFM, le champ d'échange doit être nul.

Couche FM

Théoriquement, la valeur du champ d'anisotropie d'un grain FM, H_a^{FM}, à basse température est :

$$H_a^{FM} = \frac{2\tilde{D}_{FM}|\sigma_{FM}|}{\mu_0 \mu_B g_{FM}} = 760 \text{ Oe}$$

Ce champ doit correspondre à la valeur du champ coercitif à 0 K. Les résultats obtenus par simulation donnent $H_C = 752 \pm 8$ Oe (figure 4.4.1). L'incertitude ΔH correspond à la moitié du pas en champ δH. Ce résultat est donc en très bon accord avec la valeur du champ d'anisotropie. La forme carrée du cycle montre que les grains FM se retournent tous à la même valeur du champ appliqué du fait de l'absence d'agitation thermique.

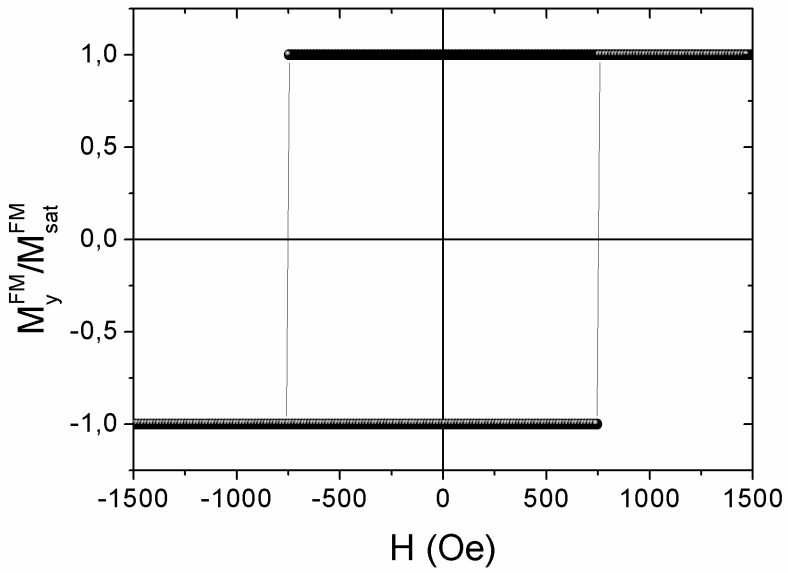


FIGURE 4.4.1 – Cycle d'hystérésis de la couche FM à très basse température ($T \approx 0$ K) ($J_{int} = J_{FM} = 0$).

La température de blocage calculée pour les grains FM est :

$$T_B^{FM} = \frac{\tilde{D}_{FM}\sigma_{FM}^2}{\ln(2n_{PMC})} = 179,72 \text{ K}$$

où n_{PMC} représente le nombre de pas MC à chaque valeur du champ ($n_{PMC} = 5500$). Les

cycles d'hystérésis de la couche FM, pour différentes températures, sont représentés figure 4.4.2. On observe que le champ coercitif s'annule vers 180 K ce qui correspond bien à la valeur calculée de la température de blocage des grains FM.

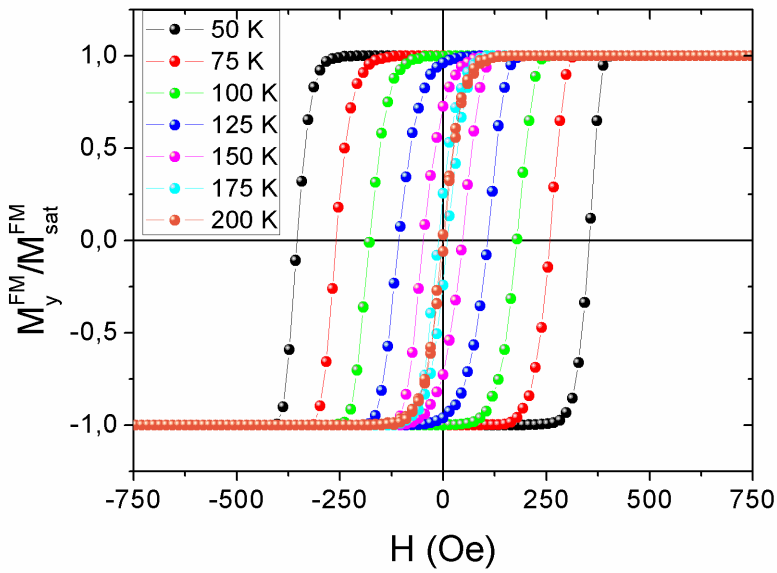


FIGURE 4.4.2 – Cycles d'hystérésis de la couche FM pour différentes températures ($J_{int} = J_{FM} = 0$).

La variation thermique du champ de retournement $H_{sw}(T) = H_C(T)$ est représentée figure 4.4.3 en comparaison de celle obtenue dans le cadre d'un modèle simple basé sur les hypothèses suivantes :

- Aucun grain ne se retourne tant que $\tau > t_{mes}$;
- Tous les grains se retournent dès que $\tau = t_{mes}$.

$H_{sw}(T)$ vérifie donc l'égalité :

$$\tau_0 \mathrm{e}^{\frac{\Delta E(H_{sw})}{k_B T}} = t_{mes} \tag{4.4.1}$$

Il vient alors :

$$\frac{\tilde{D}_{FM}\sigma_{FM}^2}{k_B T}\left(1 - \frac{H_{sw}(T)}{H_a^{FM}}\right)^2 = \ln\left(\frac{t_{mes}}{\tau_0}\right)$$

$$\left(1 - \frac{H_{sw}(T)}{H_a^{FM}}\right)^2 = \frac{k_B T}{\tilde{D}_{FM}\sigma_{FM}^2}\ln\left(\frac{t_{mes}}{\tau_0}\right)$$

$$\left(1 - \frac{H_{sw}(T)}{H_a^{FM}}\right) = \left(\frac{k_B T}{\tilde{D}_{FM}\sigma_{FM}^2}\ln\left(\frac{t_{mes}}{\tau_0}\right)\right)^{1/2}$$

$$H_{sw}(T) = H_a^{FM}\left(1 - \left(\frac{k_B T}{\tilde{D}_{FM}\sigma_{FM}^2}\ln\left(\frac{t_{mes}}{\tau_0}\right)\right)^{1/2}\right) \tag{4.4.2}$$

Etant dans le cas d'une bicouche sans couplage à l'interface, ni entre les grains FM, $H_C(T)$ doit correspondre à $H_{sw}(T)$. On observe figure 4.4.3 que le champ de retournement calculé est en excellent accord avec le champ coercitif obtenu par simulation. En fait, bien que tous les grains FM ne se retournent pas exactement au bout d'un temps τ dans la simulation (c'est-à-dire pour $H = H_{sw}$), le changement de signe de l'aimantation se produit pour $H = H_{sw}$.

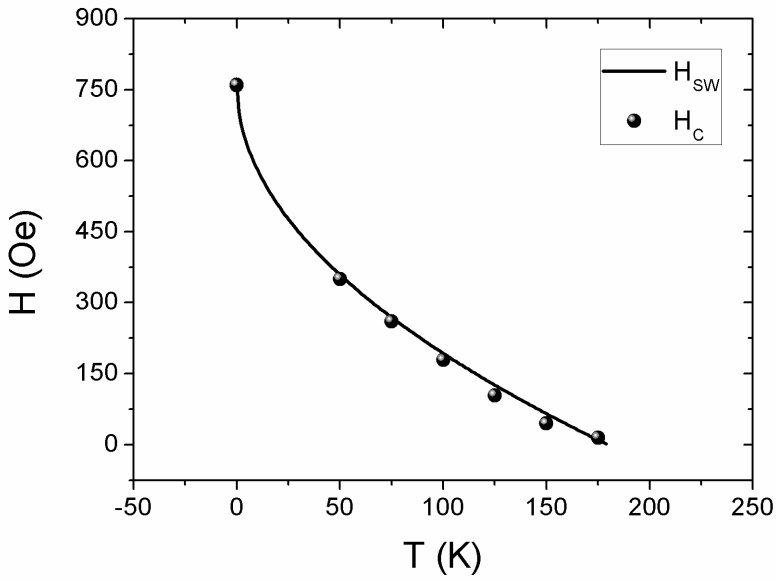


FIGURE 4.4.3 – Évolution du champ de retournement avec la température ($J_{int} = J_{FM} = 0$), comparaison à l'expression (4.4.2).

Couche AFM

La température de blocage calculée pour les grains AFM est :

$$T_B^{AFM} = \frac{\tilde{D}_{AFM}\sigma_{AFM}^2}{\ln(2n_{PMC})} = 932,83\,\mathrm{K}$$

Remarque : il est à noter que le temps de relaxation d'un grain AFM, contrairement à celui d'un grain FM, est ici le même tout au long de la simulation puisque la barrière d'énergie est indépendante du champ appliqué et qu'il n'y a pas de couplage à l'interface.

Nous avons regroupé dans le tableau 4.4.1 les valeurs calculées du temps de relaxation τ des grains AFM à différentes températures. Ces valeurs, comparées au temps de mesure

t_{mes}= $n_{PMC}\delta t$ où $\delta t = 4,165 \times 10^{-13}$ s [81] est le temps physique associé à un pas MC, fournissent des informations sur l'obtention de l'état d'équilibre de la couche AFM.

T (K)	τ/τ_0	τ/t_{mes}
550	7 151 396	650
700	242 992	22
850	27 239	2,48

TABLE 4.4.1 – Valeurs de τ pour les grains AFM, à différentes températures (t_{mes}= $n_{PMC}\delta t$, $n_{PMC} = 5500$ et $\Delta E/k_B = 8680,55$ K).

En effet on peut voir, figure 4.4.4, qu'à 550 K l'état d'équilibre $M_y^{AFM} = 0$ (moitié des grains dans un sens, autre moitié dans l'autre sens) n'est pas atteint au cours de la simulation. Cependant, bien que $\tau \gg t_{mes}$, on observe tout de même une dérive lente mais significative de "l'aimantation" de la couche AFM. A 700 K, $\tau \approx 22\ t_{mes}$ mais l'obtention de l'état d'équilibre de la couche AFM nécessite plus que 22 valeurs du champ, environ 80 en fait (figure 4.4.4). Ceci est cohérent puisque τ représente approximativement $\frac{1}{4}$ du temps de mise à l'équilibre (courbe de relaxation en $e^{-t/\tau}$). A 850 K, c'est-à-dire juste en dessous de T_B^{AFM}, la relaxation vers l'état d'équilibre s'effectue en une dizaine de valeurs de champ (figure 4.4.4), ce qui signifie que $\tau \sim 2,5\, t_{mes}$ et qui correspond bien à la valeur de $\tau = 2,48\, t_{mes}$ du tableau 4.4.1.

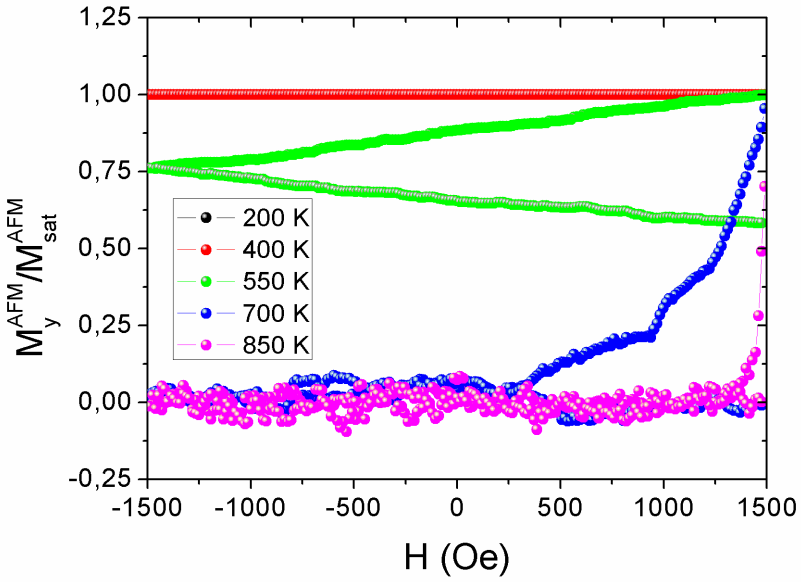


FIGURE 4.4.4 – "Aimantation" de la couche AFM ($J_{int} = J_{FM} = 0$).

4.4.1.2 Interaction à l'interface FM/AFM

Il est important de noter qu'un grain AFM bloqué "retarde" le retournement des grains FM en champ négatif et le favorise en champ positif, il contribue donc au champ d'échange, alors qu'un grain AFM qui "suit" les grains FM avec retard lors du retournement "retarde" le retournement en champ négatif et positif, il élargit donc le cycle mais ne le décale pas : il ne contribue donc pas à H_E mais augmente H_C.

Étude à $T \approx 0$ K

A très basse température (≈ 0 K), les champs de retournement négatif et positif sont respectivement ($-871,7 \pm 7,5$ Oe) et ($648,2 \pm 7,5$ Oe) et le champ d'échange est de ($-111,8 \pm 7,5$ Oe). Ces résultats sont en très bon accord avec les valeurs théoriques du modèle de MB :

$$H_-^{MB} = -\left(\frac{2\tilde{D}_{FM}\sigma_{FM} + \tilde{J_{int}}\sigma_{AFM}}{\mu_0\mu_B g_{FM}}\right) = -(759,9 + 119,2) = -879,1 \text{ Oe}$$

$$H_+^{MB} = \left(\frac{2\tilde{D}_{FM}\sigma_{FM} - \tilde{J_{int}}\sigma_{AFM}}{\mu_0\mu_B g_{FM}}\right) = (759,9 - 119,2) = 640,7 \text{ Oe}$$

$$H_E^{MB} = -\frac{\tilde{J_{int}}\sigma_{AFM}}{\mu_0\mu_B g_{FM}} = -119,2 \text{ Oe}$$

Étude à $T \neq 0$ K

Les figures 4.4.5 et 4.4.7 représentent les cycles d'hystérésis pour $T \leq 500$ K et $T \geq 600$ K, respectivement. La figure 4.4.6 représente "l'aimantation" de la couche AFM en fonction de la température. La figure 4.4.8 représente la variation thermique des champs coercitif et d'échange de la bicouche pour $J_{int} \neq 0 - J_{FM} = 0$.

- *Étude à $T \leq 500$ K*

Quand T augmente jusqu'à 500 K, le décalage du cycle (H_E) est constant, par contre sa largeur (H_C) diminue (figures 4.4.5 et 4.4.8). On voit que pour $T \leq 500$ K (figure 4.4.6), les grains AFM sont bloqués, le couplage effectif à l'interface est donc inchangé quelle que soit T, ce qui explique que le champ d'échange soit constant. La décroissance du champ coercitif est due à l'agitation thermique. Celui-ci s'annule légèrement en dessous de 200 K (figure 4.4.5), en accord avec la valeur calculée $T_B^{FM} \approx 180$ K.

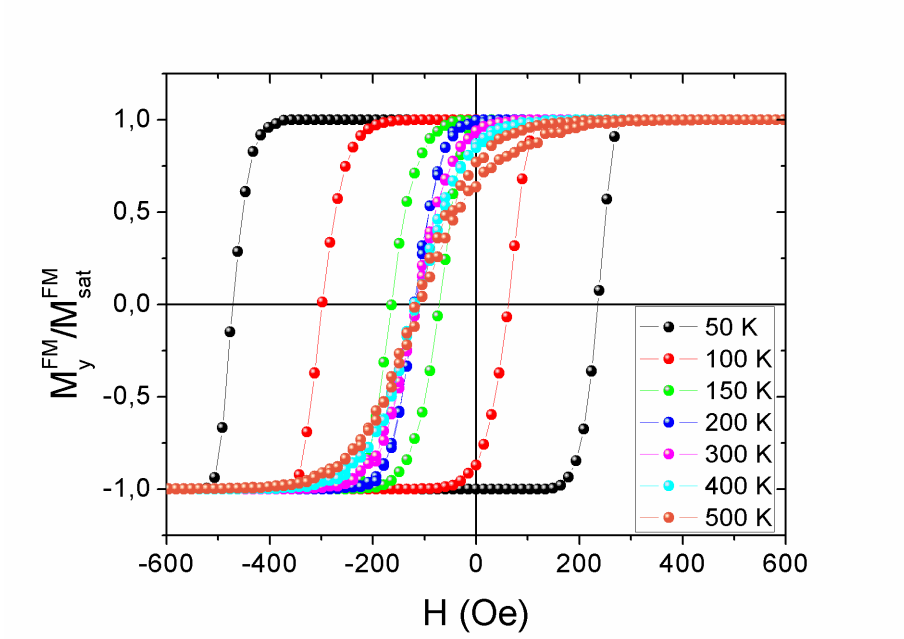


FIGURE 4.4.5 – Cycles d'hystérésis de la couche FM pour $T \leq 500$K ($J_{int} \neq 0 - J_{FM} = 0$).

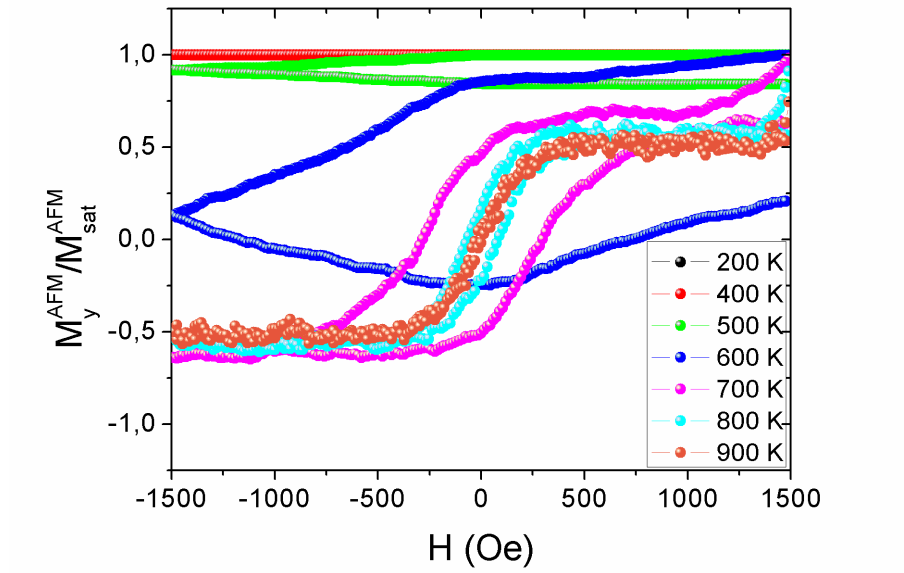


FIGURE 4.4.6 – "Aimantation" de la couche AFM en fonction de T ($J_{int} \neq 0 - J_{FM} = 0$).

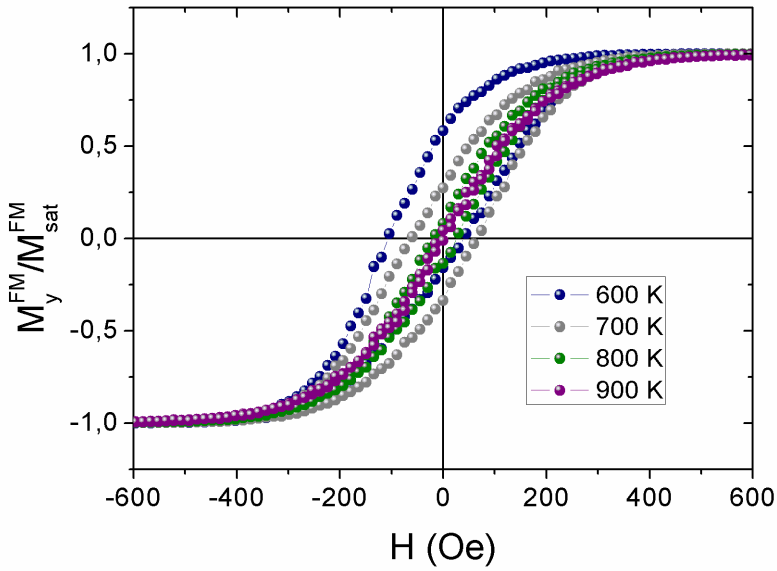


FIGURE 4.4.7 – Cycles d'hystérésis de la couche FM pour $T \geq 600$K ($J_{int} \neq 0 - J_{FM} = 0$).

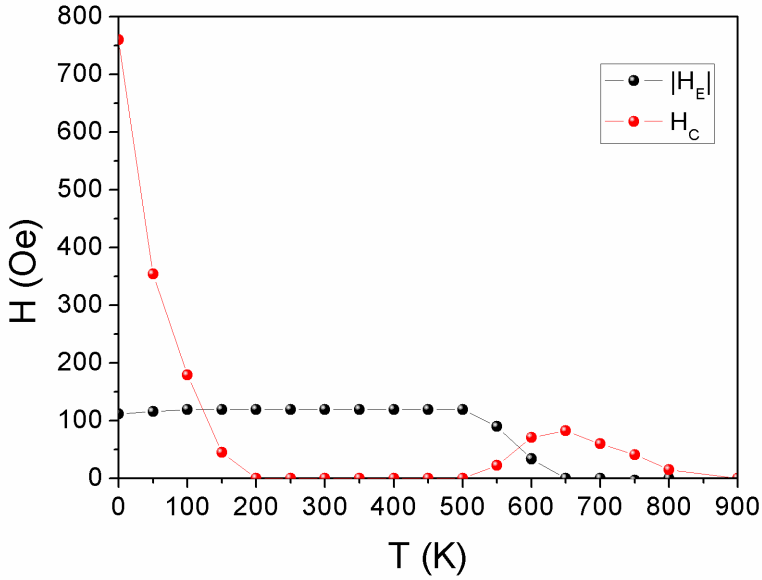


FIGURE 4.4.8 – Évolution des champs coercitif et d'échange en fonction de la température ($J_{int} \neq 0 - J_{FM} = 0$).

- *Étude à $T > 500$ K*

A 600 K, "l'aimantation" de la couche AFM dérive (figure 4.4.6) ce qui entraîne une diminution de H_E (figures 4.4.7 et 4.4.8). Suite au couplage d'interface, l'état d'équilibre

thermodynamique de la couche AFM n'est plus l'état avec la moitié de grains "up" et l'autre moitié "down". Le nouvel état d'équilibre dépend de l'orientation de la couche FM : si la couche FM est aimantée "up", la couche AFM aura plus de grains "up". On voit que l'état d'équilibre de la couche AFM correspond à environ 0,5. Ceci signifie que le champ local dû à J_{int} n'est pas assez fort compte tenu de la température pour "saturer" l'AFM (en fait l'énergie de couplage interface/$k_BT = 0{,}1$ à T = 878 K). Le changement de pente de la courbe bleue ($T = 600$K, figure 4.4.6) en champ négatif est dû au retournement de la couche FM ce qui accélère la dérive de la couche AFM. A partir de 700 K, l'aimantation de la couche AFM fait également un cycle (figure 4.4.6) ce qui signifie qu'elle "suit" la couche FM. Le retournement de la couche FM est alors "retardé" de la même valeur en champ pour les deux retournements (positif et négatif), il y a donc un élargissement du cycle : H_E s'annule et H_C augmente (figure 4.4.8). La décroissance de H_E et la remontée simultanée de H_C s'expliquent donc par un régime transitoire de la couche AFM ($T < T_B^{AFM}$) pour lequel les grains AFM sont suffisamment libres pour se retourner mais avec du retard, soit ici à $T \simeq 650\,\mathrm{K} < T_B^{AFM} \simeq 919\,\mathrm{K}$.

Comme cela a été fait dans la partie précédente, nous avons calculé la variation thermique du champ coercitif à partir d'un modèle simple et nous l'avons comparé à celle obtenue par simulation. La valeur calculée de $H_{sw}(T)$ est donnée par :

$$\tau_- = t_{mes}$$

$$\frac{\tilde{D}_{FM}\sigma_{FM}^2}{k_BT}\left(1 - \frac{H_{sw}(T) - H_{int}^{FM}}{H_a^{FM}}\right)^2 = \ln\left(\frac{t_{mes}}{2\tau_0}\right)$$

$$\left(1 - \frac{H_{sw}(T) - H_{int}^{FM}}{H_a^{FM}}\right)^2 = \frac{k_BT}{\tilde{D}_{FM}\sigma_{FM}^2}\ln\left(\frac{t_{mes}}{2\tau_0}\right)$$

$$\left(1 - \frac{H_{sw}(T) - H_{int}^{FM}}{H_a^{FM}}\right) = \left(\frac{k_BT}{\tilde{D}_{FM}\sigma_{FM}^2}\ln\left(\frac{t_{mes}}{2\tau_0}\right)\right)^{1/2}$$

$$H_{sw}(T) = H_a^{FM}\left(1 - \left(\frac{k_BT}{\tilde{D}_{FM}\sigma_{FM}^2}\ln\left(\frac{t_{mes}}{2\tau_0}\right)\right)^{1/2}\right) + H_{int}^{FM} \tag{4.4.3}$$

où H_{int}^{FM} est la contribution due aux interactions d'échange à l'interface FM/AFM, au champ local. Dans la mesure où $H_{sw}(T) = -H_C^-(T) = -(H_E - H_C)$, $H_C(T)$ est égal à $H_{sw}(T) + H_E$. La figure 4.4.9 représente l'évolution en fonction de la température de $H_{sw}(T) + H_E$ et de $H_C(T)$, on constate qu'il y a un assez bon accord entre les valeurs calculées et simulées.

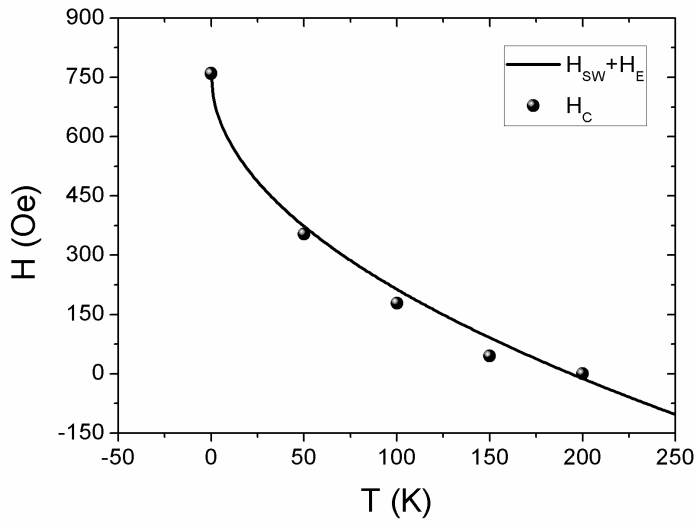


FIGURE 4.4.9 – Évolution du champ coercitif en fonction de la température ($J_{int} \neq 0 - J_{FM} = 0$), comparaison à l'expression (4.4.3).

4.4.1.3 Interaction à l'interface FM/AFM et entre grains FM

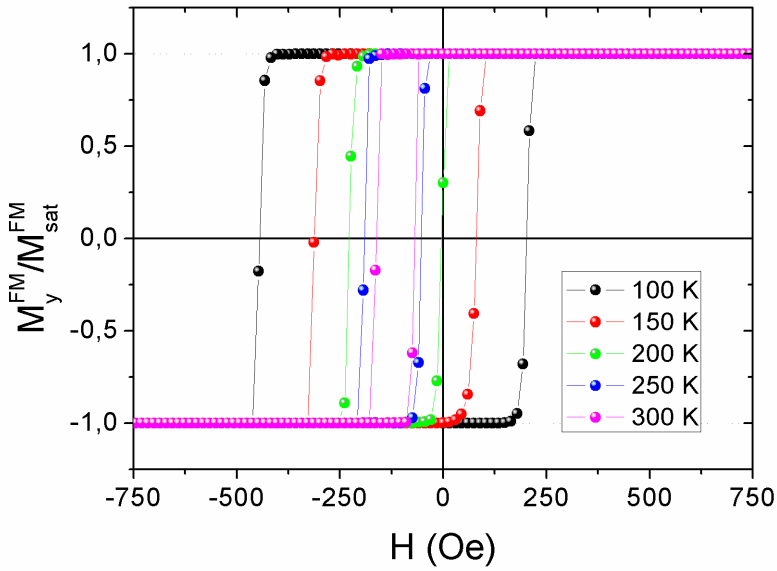
Nous avons cette fois ajouté une interaction d'échange entre les grains FM. Les cycles d'hysteresis sont représentés (figure 4.4.10). On remarque que par rapport au cas $J_{FM} = 0$ (figure 4.4.5), les cycles sont plus carrés. Ceci s'explique par le fait que le couplage entre grains FM modifie le processus de retournement d'aimantation de la couche, qui est alors plus uniforme.

La variation thermique des champs coercitif et d'échange est représentée figure 4.4.12. On remarque que la prise en compte d'un couplage entre les grains FM a essentiellement deux effets sur H_C :

• Une décroissance plus lente de H_C avec un minimum vers 450 K ce qui est largement au dessus de la température d'annulation de H_C ($\approx$ 200 K) vu dans le cas précédent ($J_{FM} = 0$), indiquant que l'introduction de ces interactions entre grains FM augmente la "température de blocage" des grains FM ;

• Le champ coercitif ne s'annule plus aux températures intermédiaires. En effet, le retournement des grains AFM lors du retournement de la couche FM (correspondant à la remontée de H_C) se produit avant l'annulation de H_C qui a été décalée par l'introduction du couplage entre les grains FM (augmentation de "T_B^{FM}").

On n'observe pas d'effet significatif sur H_E. Le cycle à 600 K est asymétrique, ceci est du à la dérive de "l'aimantation" de la couche AFM (courbe noire, figure 4.4.11)



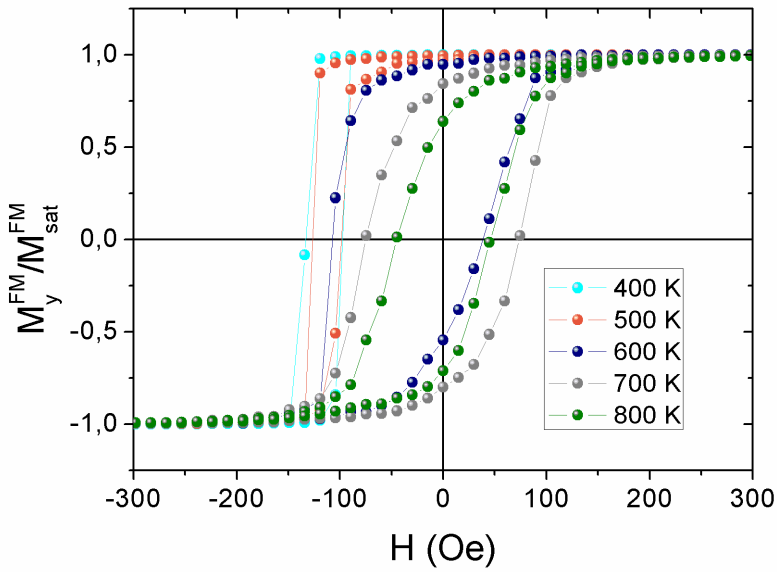


FIGURE 4.4.10 – Cycles d'hystérésis de la couche FM à différentes températures ($J_{int} \neq 0 - J_{FM} \neq 0$).

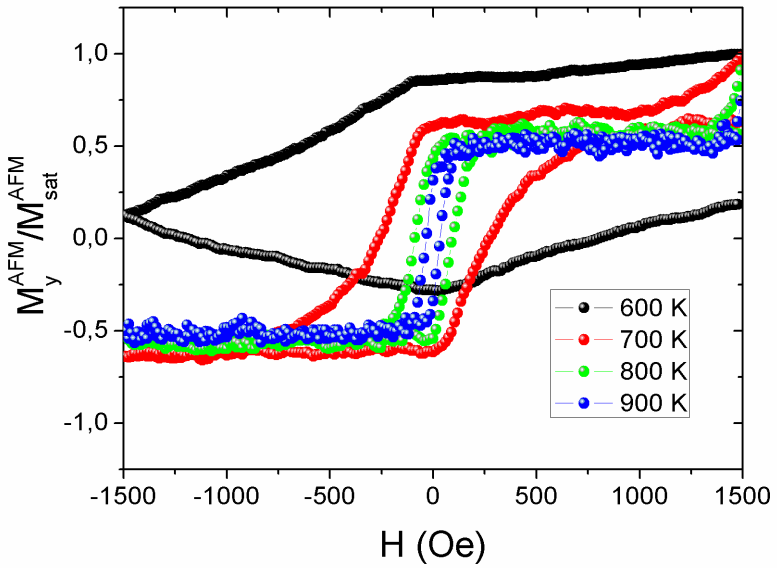


FIGURE 4.4.11 – "Aimantation" de la couche AFM en fonction de T ($J_{int} \neq 0 - J_{FM} \neq 0$).

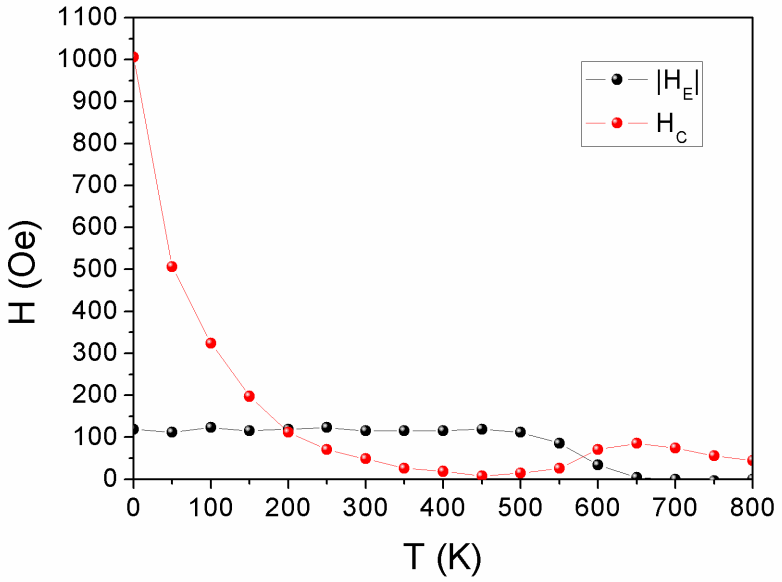


FIGURE 4.4.12 – Évolution des champs coercitif et d'échange en fonction de la température ($J_{int} \neq 0 - J_{FM} \neq 0$).

De manière analogue aux deux cas précédents, nous avons comparé les variations thermiques du champ coercitif calculé et obtenu par simulation. La valeur calculée est déduite en faisant l'hypothèse que l'introduction d'un couplage J_{FM} entre les grains FM revient à introduire un champ effectif "statique", colinéaire à Oy de module $H_{FM}^{FM} = 228\,\mathrm{Oe}$

(les grains FM sont supposés être parallèles entre eux) et en considérant :

$$\tau_- = t_{mes}$$

La nouvelle barrière est :

$$\Delta E_- = \tilde{D}_{FM}\sigma_{FM}^2 \left(1 - \frac{H_{sw}(T) - H_{int}^{FM} - H_{FM}^{FM}}{H_a^{FM}}\right)^2$$

Il en découle alors,

$$\frac{\tilde{D}_{FM}\sigma_{FM}^2}{k_B T}\left(1 - \frac{H_{sw}(T) - H_{int}^{FM} - H_{FM}^{FM}}{H_a^{FM}}\right)^2 = \ln\left(\frac{t_{mes}}{2\tau_0}\right)$$

$$\left(1 - \frac{H_{sw}(T) - H_{int}^{FM} - H_{FM}^{FM}}{H_a^{FM}}\right)^2 = \frac{k_B T}{\tilde{D}_{FM}\sigma_{FM}^2}\ln\left(\frac{t_{mes}}{2\tau_0}\right)$$

$$\left(1 - \frac{H_{sw}(T) - H_{int}^{FM} - H_{FM}^{FM}}{H_a^{FM}}\right) = \left(\frac{k_B T}{\tilde{D}_{FM}\sigma_{FM}^2}\ln\left(\frac{t_{mes}}{2\tau_0}\right)\right)^{1/2}$$

$$H_{sw}(T) = H_a^{FM}\left(1 - \left(\frac{k_B T}{\tilde{D}_{FM}\sigma_{FM}^2}\ln\left(\frac{t_{mes}}{2\tau_0}\right)\right)^{1/2}\right) + H_e^{FM} + H_{FM}^{FM} \tag{4.4.4}$$

où H_{int}^{FM} est la contribution due aux interactions d'échange à l'interface FM/AFM et H_{FM}^{FM} la contribution due aux interactions FM/FM, au champ local. Etant donné que $H_{sw}(T) = -H_C^-(T) = -(H_E - H_C)$, $H_C(T)$ doit correspondre à $H_{sw}(T) + H_E$. La figure 4.4.13 représente l'évolution du champ de retournement simulé et calculé en fonction de la température. On observe un bon accord à 0 K et à 300 K, mais lorsque la température augmente, les valeurs obtenues par simulation sont inférieures à celles calculées. Cela s'explique par le fait que dans le calcul, le champ local dû aux interactions entre grains FM, H_{FM}^{FM}, est supposé statique et constant, or cela n'est pas le cas lors de la simulation.

Afin d'évaluer H_{FM}^{FM}, nous avons comparé $H_{sw}(T) + H_E$ et $H_C(T)$ (figure 4.4.14) pour différentes valeurs de H_{FM}^{FM} (figure 4.4.15) :

- $H_{FM}^{FM} = 228$ Oe, le grain FM considéré est parallèle à ses quatres voisins FM ;
- $H_{FM}^{FM} = 114$ Oe, le grain FM considéré est parallèle à trois de ses voisins FM ;
- $H_{FM}^{FM} = 0$ Oe, le grain FM considéré est parallèle à deux de ses voisins FM ;
- $H_{FM}^{FM} = -114$ Oe, le grain FM considéré est parallèle à un de ses voisins FM ;
- $H_{FM}^{FM} = -228$Oe, le grain FM considéré est antiparallèle à ses voisins FM ;

A 0 K, tous les grains FM sont parallèles entre eux. Pour $50\,\mathrm{K} \leq T \leq 200\,\mathrm{K}$, les grains FM ont en moyenne trois voisins FM parallèles. A $T = 250$ K, les grains ont en moyenne

trois à quatre voisins FM parallèles.

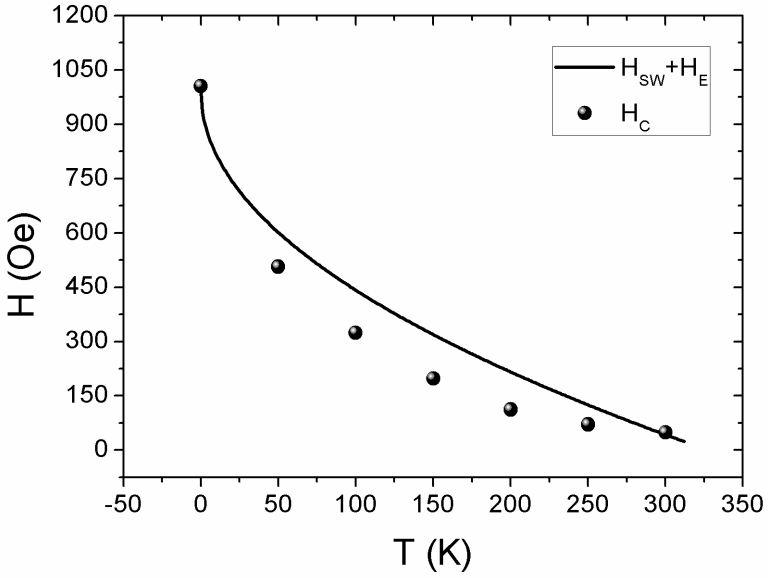


FIGURE 4.4.13 – Evolution du champ coercitif en fonction de la température ($J_{int} \neq 0 - J_{FM} \neq 0$), comparaison à l'expression (4.4.4).

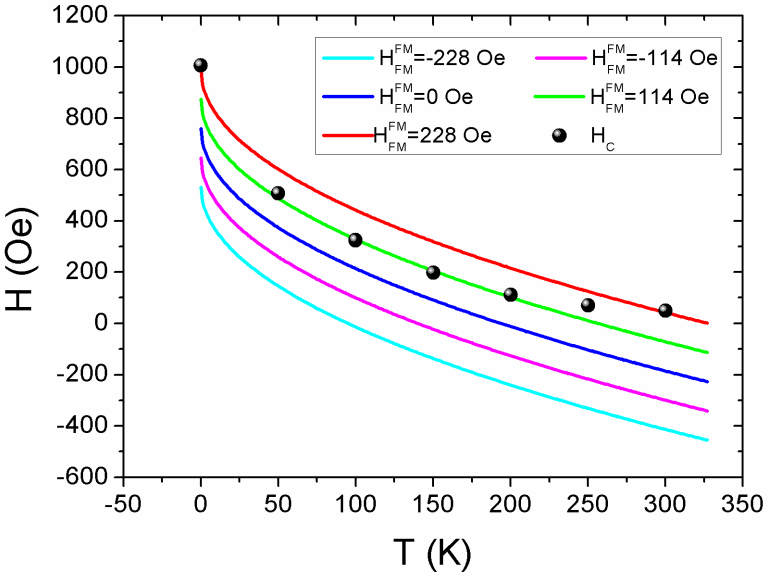


FIGURE 4.4.14 – Comparaison de $H_{sw}(T)+H_E$ et $H_C(T)$ pour différentes valeurs de H_{FM}^{FM}.

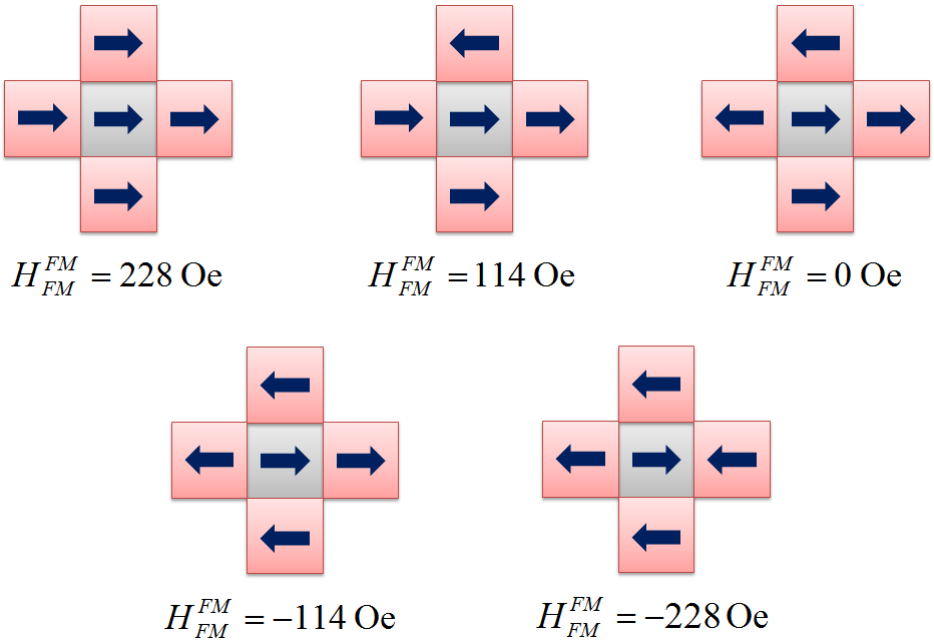


FIGURE 4.4.15 – Configurations magnétiques associées aux différentes valeurs de H_{FM}^{FM}.

4.4.2 Constantes d'anisotropie dépendantes de la température

Dans cette section nous avons pris en compte l'influence de la température sur l'anisotropie des grains FM et AFM :

$$\tilde{D}_{FM}(T) = \tilde{D}_{FM}(0)\left(1 - \frac{T}{T_C}\right) \tag{4.4.5}$$

$$\tilde{D}_{AFM}(T) = \tilde{D}_{AFM}(0)\left(1 - \frac{T}{T_N}\right) \tag{4.4.6}$$

où T_C et T_N sont les températures de Curie et de Néel, respectivement (755 K et 1073 K). La dépendance en température des constantes d'anisotropie entraîne une diminution des températures de blocage calculées.
Les valeurs numériques des paramètres (constante d'anisotropie à 0 K, interaction d'échange et taille des grains) sont inchangées (*cf.* tableau 4.2.1).

4.4.2.1 Interaction à l'interface

En procédant de la même façon que précédemment, et en tenant compte de la dépendance en température des constantes d'anisotropie, nous obtenons une température de blocage calculée pour les grains FM et AFM de $T_B^{FM} = 145$ K et $T_B^{AFM} = 486$ K, respectivement. La dépendance en température des constantes d'anisotropie entraînent donc une diminution significative des températures de blocage.

La figure 4.4.16 représente les cycles d'hystérésis de la couche FM pour différentes températures. La variation thermique de H_E et H_C est représentée figure 4.4.17. Sur ces deux figures, on voit que le champ coercitif s'annule vers 150 K et que le champ d'échange s'annule vers 400 K. Comme pour le cas d'une anisotropie indépendante de la température, l'annulation du champ coercitif est en bon accord avec la valeur de T_B^{FM} calculée, et l'annulation du champ d'échange se produit à une température inférieure à la température de blocage calculée pour les grains de la couche AFM. Cependant, cette différence entre T_B^{AFM} calculée et la température d'annulation de H_E est plus faible que pour le cas de $\tilde{D}$ constante.

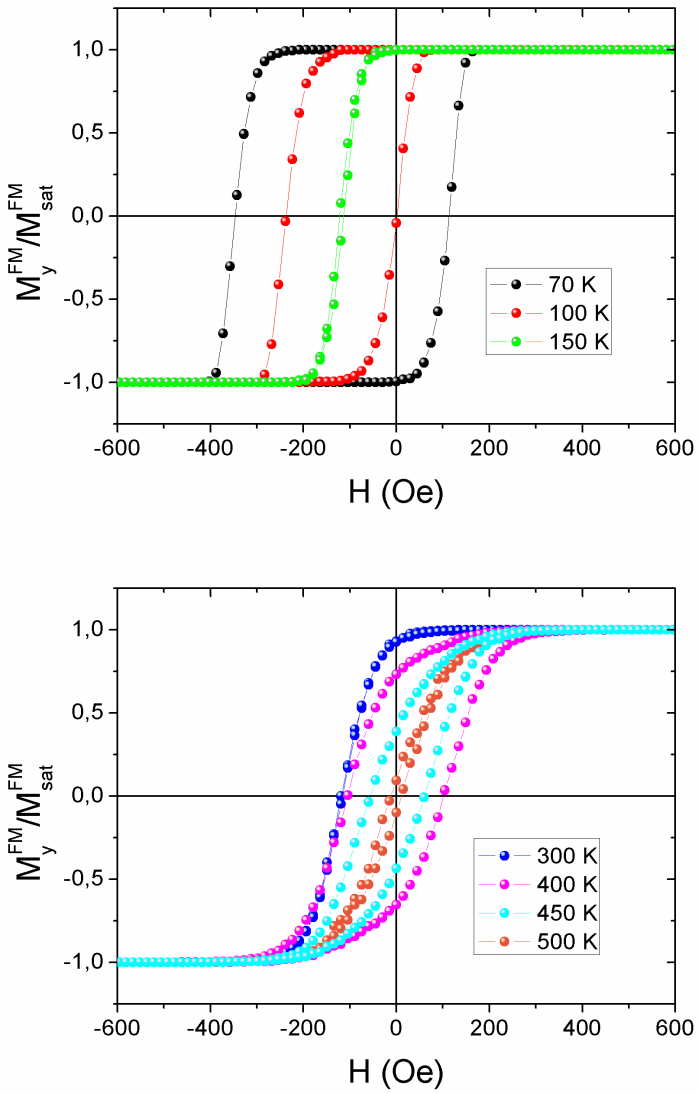


FIGURE 4.4.16 – Cycles d'hystérésis de la couche FM pour différentes températures ($J_{int} \neq 0 - J_{FM} = 0$).

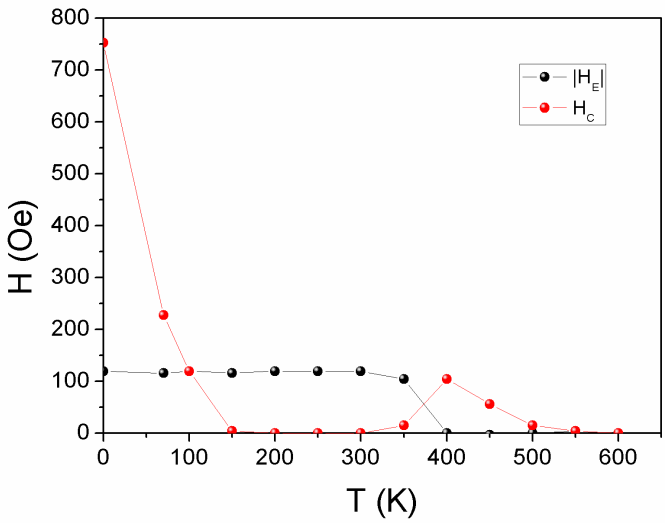


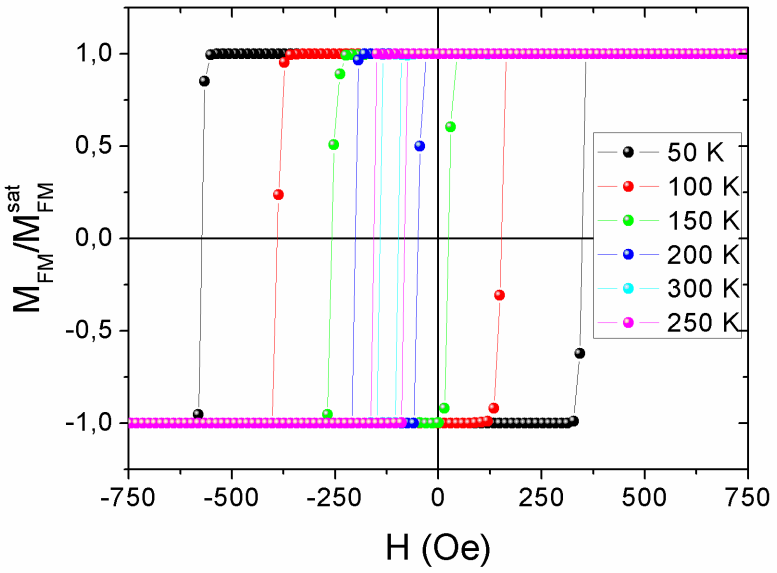
FIGURE 4.4.17 – Variation des champs coercitif et d'échange en fonction de la température ($J_{int} \neq 0 - J_{FM} = 0$).

Si l'on compare ces résultats à ceux obtenus dans le cas d'une anisotropie indépendante de la température, on observe essentiellement deux différences :

- L'annulation du champ d'échange vers 400 K au lieu de 700 K. Ceci est lié à l'abaissement de la température de blocage des grains AFM d'environ 400 K, soit environ 486 K au lieu de 919 K ;
- L'annulation puis la remontée du champ coercitif ont donc lieu également à une température plus basse (150 K au lieu de 200 K pour l'annulation et 300 K au lieu de 500 K pour la remontée).

4.4.2.2 Interaction à l'interface FM/AFM et entre grains FM

La figure 4.4.18 représente les cycles d'hysteresis de la couche FM. Ces derniers sont plus carrés que pour le cas $J_{FM} = 0$, comme cela a déjà été observé avec l'anisotropie indépendante de la température. La figure 4.4.19 représente la variation thermique des champs coercitif et d'échange. Comme pour le cas d'une anisotropie indépendante de la température, on observe que lorsqu'un couplage entre les grains FM est introduit, le champ coercitif ne s'annule plus, mais présente un minimum à $T = 300\,K$. De plus, comme on peut le voir figure 4.4.20, la couche AFM ne se retourne en phase avec la couche FM qu'à partir de 500 K et non à 400 K qui est pourtant la température à laquelle le champ d'échange s'annule (figure 4.4.19). Ce comportement est analogue à celui observé § 4.4.1.



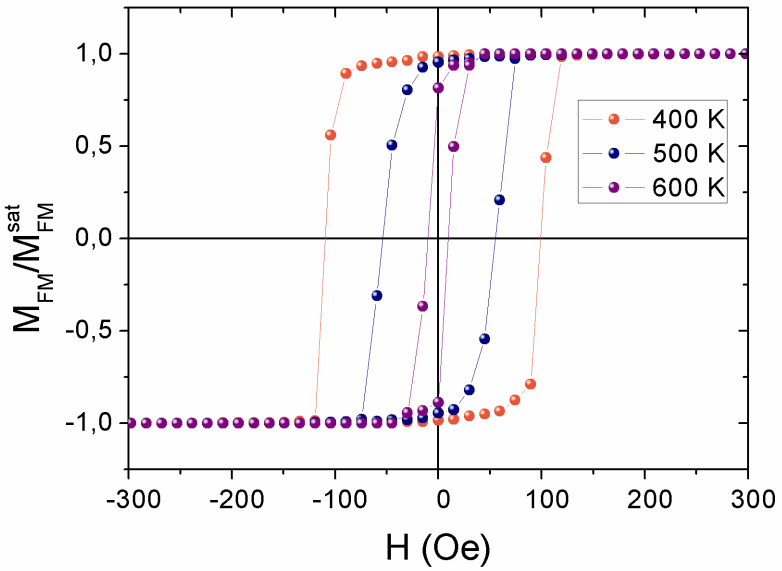
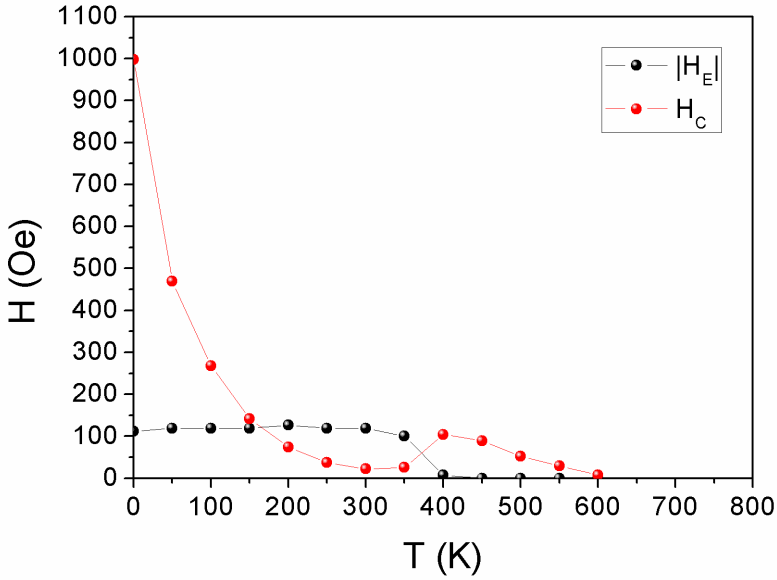


FIGURE 4.4.18 – Cycles d'hystérésis de la couche FM à différentes températures ($J_{int} \neq 0 - J_{FM} \neq 0$).



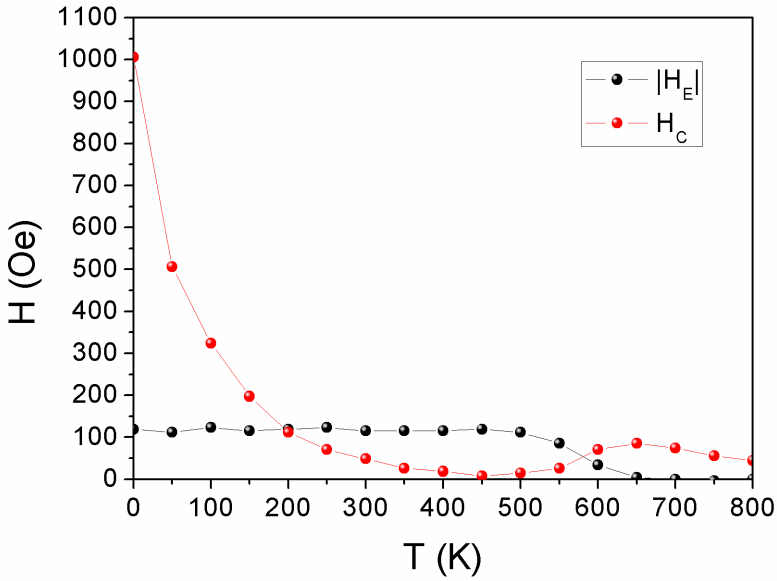


FIGURE 4.4.19 – Évolution des champs coercitif et d'échange en fonction de la température ($J_{int} \neq 0 - J_{FM} \neq 0$). $\tilde{D}(T)$ (en haut) et $\tilde{D}$ constant (en bas).

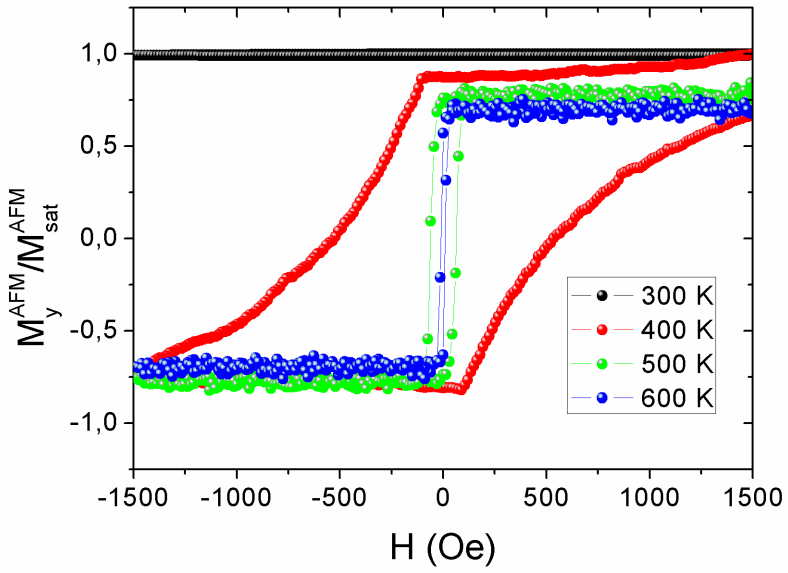


FIGURE 4.4.20 – "Aimantation" de la couche AFM à différentes températures ($J_{int} \neq 0 - J_{FM} \neq 0$).

4.4.3 Conclusion sur les températures de blocage

Pour une couche monodisperse, il est possible de calculer la température de blocage des grains FM et AFM à partir de la relation $\tau = t_{mes}$. Rappelons tout de même, que ce calcul de T_B^{FM} et T_B^{AFM} nécessite l'hypothèse d'un champ local quasi-statique lorsque $J_{int} \neq 0$. Pour le cas où $J_{FM} \neq 0$ le champ local dû au couplage entre grains FM n'étant pas statique, suite aux retournements d'aimantation des grains FM, nous ne pouvons pas déterminer la température de blocage des grains FM par le calcul.

Par ailleurs les simulations numériques permettent de mesurer des températures caractéristiques de chacune des deux couches comparables aux températures de blocage calculées :

- Pour la couche FM, la température d'annulation du champ coercitif à partir des cycles $M_{FM}(H)$ à différentes températures ;
- Pour la couche AFM :
  - la température de mise à l'équilibre de la couche AFM à partir des courbes $M_{AFM}(H)$ à différentes températures ;
  - la température d'annulation du champ d'échange, qui est la définition retenue par la "communauté EB".

Ces comparaisons sont regroupées dans les tableaux 4.4.2 et 4.4.3.

	$J_{int} = J_{FM} = 0$		$J_{int} \neq 0 - J_{FM} = 0$		$J_{int} \neq 0 - J_{FM} \neq 0$	
	T_B^{AFM}	T_B^{FM}	T_B^{AFM}	T_B^{FM}	T_B^{AFM}	T_B^{FM}
calculées	933	180	919*	180	919*	$\varnothing$
simulées	$> 850^{\#}$	180	$900^{\#}$ $700^{\#\#}$	~ 200	$900^{\#}$ $700^{\#\#}$	400^{+}

TABLE 4.4.2 – Valeurs calculées des températures de blocage (K) avec $\tilde{D}$ constant en comparaison avec les valeurs simulées (* Valeurs calculées avec $\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_-} + \frac{1}{\tau_+}$ - $^{\#}$ courbes $M_{AFM}(H)$- $^{\#\#}$ annulation de H_E - $^{+}H_C$ ne s'annule plus : minimum de H_C)

	$J_{int} = J_{FM} = 0$		$J_{int} \neq 0 - J_{FM} = 0$		$J_{int} \neq 0 - J_{FM} \neq 0$	
	T_B^{AFM}	T_B^{FM}	T_B^{AFM}	T_B^{FM}	T_B^{AFM}	T_B^{FM}
calculées	499	145	486*	145	486*	$\varnothing$
simulées	$\varnothing$	$\varnothing$	$500^{\#}$ $400^{\#\#}$	150	$500^{\#}$ $400^{\#\#}$	300^{+}

TABLE 4.4.3 – Valeurs calculées des températures de blocage (K) avec $\tilde{D}(T)$ en comparaison avec les valeurs simulées (* Valeurs calculées avec $\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_-} + \frac{1}{\tau_+}$ - $^{\#}$ courbes $M_{AFM}(H)$- $^{\#\#}$ annulation de H_E - $^{+}H_C$ ne s'annule plus : minimum de H_C)

Constantes d'anisotropie indépendantes de la température ($\tilde{D}$ = constante)

En l'absence d'interaction ($J_{int} = J_{FM} = 0$), T_B^{AFM} et T_B^{FM} calculées et obtenues par simulation sont en très bon accord.

En présence d'interactions, il y a encore bon accord entre T_B^{AFM} calculées et obtenues par simulation des courbes $M_{AFM}(H)$. Par contre, la température d'annulation de H_E est environ 200 K inférieure à la valeur calculée de T_B^{AFM}. En effet, nous observons une disparition de H_E à 700 K alors que T_B^{AFM} calculée est de 919 K. Ce décalage s'explique par le fait qu'il suffit que les grains AFM se retournent avec les grains FM, mais avec un retard pour que H_E s'annule. Pour autant ceci ne correspond pas à l'état d'équilibre de la couche AFM, donc la température correspondant à l'annulation du champ d'échange est inférieure à T_B^{AFM}, environ 78% de T_B^{AFM} calculée (§ 4.4.1.2). Ce décalage doit donc être pris en compte lors de l'estimation des volumes ou de la constante d'anisotropie des grains AFM, à partir de mesures expérimentales de la température d'annulation du champ d'échange. La détermination expérimentale de la taille des grains, en supposant

$T_B^{AFM} = T(H_E = 0)$, conduirait alors à une sous-estimation significative (de l'ordre de 20%) du produit KV.

Pour les grains FM, sans interaction entre eux ($J_{FM} = 0$), la valeur simulée (annulation de H_C) est en accord avec la valeur calculée. Lorsque l'on introduit des interactions entre grains FM, on n'observe une augmentation de leur température de blocage. En effet, comme nous avons pu le voir § 4.4.1.3, l'introduction d'un couplage entre grains FM augmente la barrière ce qui conduit à une augmentation du temps de relaxation et donc une augmentation de la température de blocage.

Constantes d'anisotropie dépendantes de la température

Lorsque l'on introduit $\tilde{D}(T)$, on observe une diminution importante de T_B^{AFM} calculée et une légère diminution de T_B^{FM} calculée.

On note qu'avec des interactions, il y a encore bon accord entre T_B^{AFM} calculées et obtenues par simulation des courbes $M_{AFM}(H)$. La température d'annulation de H_E est, comme pour le cas d'une anisotropie indépendante de la température, plus faible que la valeur calculée (80% de T_B^{AFM} calculée) et ceux pour les même raisons que précédemment (les grains AFM débloqués décalent le cycle autant en champ négatif que positif).

Pour les grains FM, la valeur simulée est, comme pour $\tilde{D}$ constante, en accord avec la valeur calculée pour $J_{FM} = 0$.

4.5 Distribution volumique des grains

Il est à noter que pour une distribution volumique, il n'existe pas de température de blocage théorique. La seule valeur calculée "intéressante" est une température de blocage moyenne $\langle T_B \rangle$ qui est la température de blocage associée au volume moyen $\langle V \rangle$.

4.5.1 Construction de la structure

Tesselation de Voronoi : définition

Afin de tenir compte du caractère hétérogène de la structure granulaire et en particulier d'une distribution aléatoire des volumes de grains, nous avons adopté un modèle de microstructure obtenu par tesselation de Voronoi. Ce processus consiste à subdiviser un

domaine fini Ω de l'espace de dimension n en cellules correspondant aux zones d'influence d'un ensemble particuliers de points (les germes ou centres des cellules) :

Soit $E = \{G_i\}$ un ensemble de points distribués aléatoirement dans Ω (les germes de la tesselation), soit $d(\bullet, \bullet)$ la distance euclidienne entre deux points de Ω, la cellule C_i associée à G_i est définie par l'ensemble des points de Ω qui sont plus près de G_i que de n'importe quel autre germe G_j de la tesselation :

$$C_i = \{P(\overrightarrow{x}) \in \Omega / d(P, G_i) < d(P, G_j) \; \forall j \neq i\} \tag{4.5.1}$$

Dans l'espace 2D ($n = 2$), les cellules sont des polygones, en 3D ($n = 3$) ce sont des polyèdres. Ces cellules ont la propriété de remplir l'espace sans vide ni recouvrement. Par construction, la mosaïque obtenue est le résultat d'une germination instantannée et, partant de ces germes, d'une croissance de grains à vitesse constante et isotrope. Si ces germes sont distribués aléatoirement, la morphologie de la mosaïque obtenue est aléatoire et elle fournit un cas modèle de microstructure hétérogène ou chaque cellule est un grain et où, toutes mesures faîtes, la distribution de tailles de cellules est de type log-normale. Ces mosaïques sont très couramment utilisées dans un champ très large de la modélisation en science des matériaux polycristallins : plasticité cristalline [82, 83], évolution de microstructure par transformation de phase [84], ...

Tesselation de *Voronoi : application*

Pour la présente étude, le domaine considéré correspond à une couche de grains colonnaires : les grains ont une morphologie de polygones de Voronoi dans le plan de la couche (figure 4.5.1) et sont extrudés dans l'épaisseur de la couche selon la direction perpendiculaire à la couche. Chaque grain est donc un cylindre de section polygonale aléatoire ; la taille, la géométrie, le nombre de voisins, ... de chaque grain sont donc des données propres à chaque grain.

Le logiciel Neper [3] [85] est utilisé pour générer les mosaïques et récolter toutes les informations géométriques associées à chaque grain et à son voisinage. Il offre en particulier la possibilité de contrôler simplement la distribution des germes de la tesselation et ainsi d'introduire plus ou moins de "désordre" dans la morphologie : depuis le cas d'une mosaïque régulière (où chaque polygone est de forme carré, identique à tous les autres) jusqu'au cas le plus désordonné des mosaïque de type Poisson-Voronoi (où les positions des germes sont donnés par un processus de Poisson, avec une loi de distribution uniforme pour chaque coordonnée) et en passant de manière quasi-continue par tous les cas intermédiaires. Cette fonctionnalité du contrôle des germes permet par extension d'obtenir des

3. Neper : a software to generate 3D random polycrystals for the finite element method (version 1.10), http ://neper.sourceforge.net, 2012.

distributions de taille de grains plus ou moins étendues, voire des distributions de type bimodales, caractéristiques de deux familles de grains se distinguant radicalement par leurs tailles. L'analyse de l'effet de ces distributions de tailles sur la dynamique d'aimantation est l'objet d'une étude en cours (non présentée dans ce manuscrit).

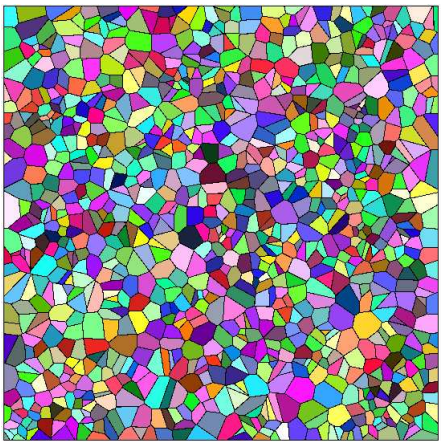


FIGURE 4.5.1 – Structure granulaire des deux couches, vue de dessus (chaque polygone représente un grain).

Les mosaïques générées sont constituées de 1089 grains (analogie avec le cas monodisperse) et dont le volume moyen est supérieur au volume des grains de l'étude sans distribution de taille (450 nm^3), à savoir 575 nm^3 avec un écart-type σ = 308 nm^3. La distribution en volume de notre système est présentée figure 4.5.2. Les plus petits grains ont une taille caractéristique de l'ordre de 4 nm et les plus gros une taille caractéristique de l'ordre de 13 nm. La taille caractéristique de la majorité des grains est comprise entre 4,6 nm et 11,4 nm.

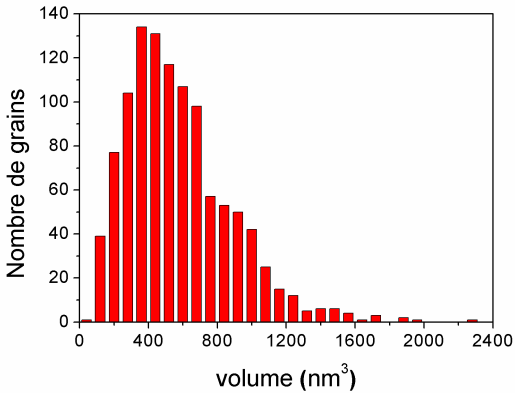


FIGURE 4.5.2 – Distribution en volume des grains AFM et FM de la bicouche (e_{FM} = e_{AFM} =8 nm).

Nous avons reproduit le même schéma d'étude que pour la bicouche monodisperse :

- $J_{int} = J_{FM} = 0$;
- $J_{int} \neq 0$ et $J_{FM} = 0$;
- $J_{int} \neq 0$ et $J_{FM} \neq 0$.

Tous les résultats présentés ci-après ont été obtenus en considérant une anisotropie dépendante de la température.

4.5.2 Aucune interaction

On remarque que les cycles d'hystérésis (figure 4.5.3) sont moins carrés que dans le cas d'une couche monodisperse ($\tilde{D}$ constant, figure 4.4.2). En effet, à $T \neq 0$ K, chaque grain a un champ de retournement différent, dépendant de son volume. Il est à noter que le champ de retournement obtenu à 0 K, c'est-à-dire le champ d'anisotropie, est bien le même que pour la bicouche monodisperse (figure 4.4.1) ce qui est cohérent car celui-ci ne dépend pas du volume des grains.

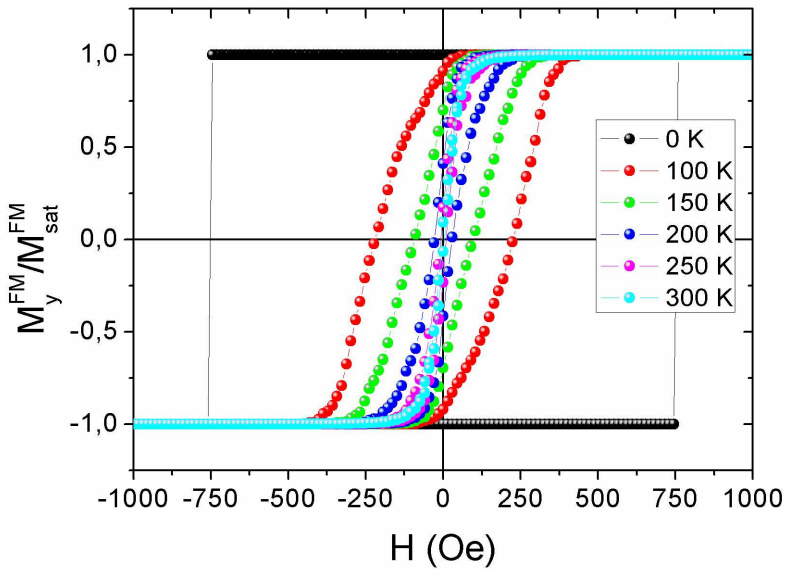


FIGURE 4.5.3 – Cycles d'hystérésis de la couche FM à différentes températures ($J_{int} = J_{FM} = 0$).

Nos simulations montrent une disparition de la coercitivité vers 300 K ce qui peut être défini comme une T_B^{FM} simulée. Cette température est nettement supérieure à la température de blocage moyenne des grains FM $\langle T_B^{FM} \rangle = 168\,\mathrm{K}$, mais est cohérente avec la distribution des T_B calculée puisque l'on observe qu'à la température d'annulation de H_C, $T = 300$ K, la grande majorité des grains FM sont débloqués (figure 4.5.4).

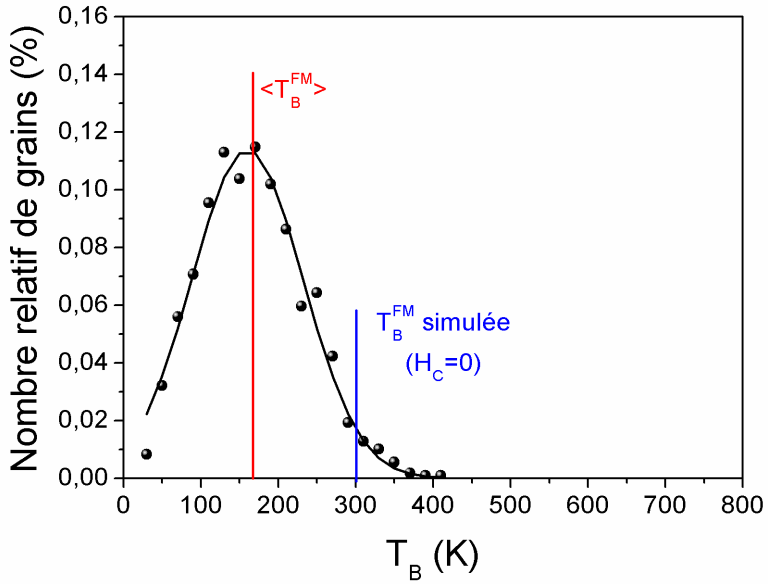


FIGURE 4.5.4 – Distribution des températures de blocage calculée des grains FM ($\langle T_B^{FM} \rangle$ = 168 K, σ = 67 K) ($J_{int} = J_{FM} = 0$).

Pour la couche AFM, l'équilibre thermodynamique semble atteint au cours de la simulation à partir de 700 K (figure 4.5.5). Bien que $\langle M_y^{AFM} \rangle = 0$ il s'avère en fait que tous les grains AFM, en particulier les gros grains, ne sont pas à l'équilibre à 700 K (figure 4.5.6).

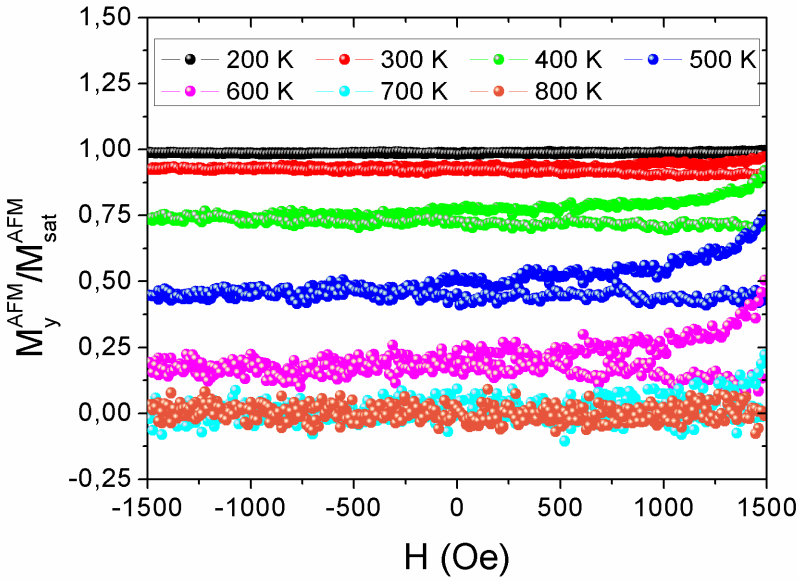


FIGURE 4.5.5 – "Aimantation" de la couche AFM à différentes températures ($J_{int} = J_{FM} = 0$).

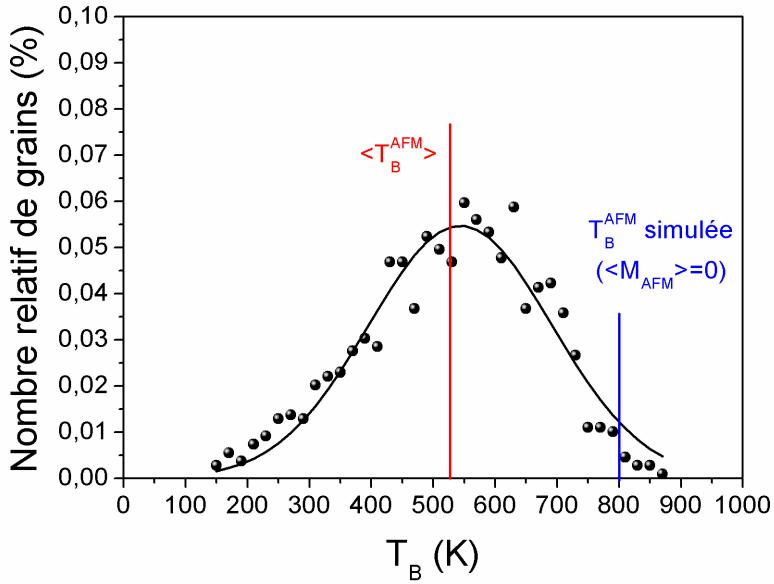
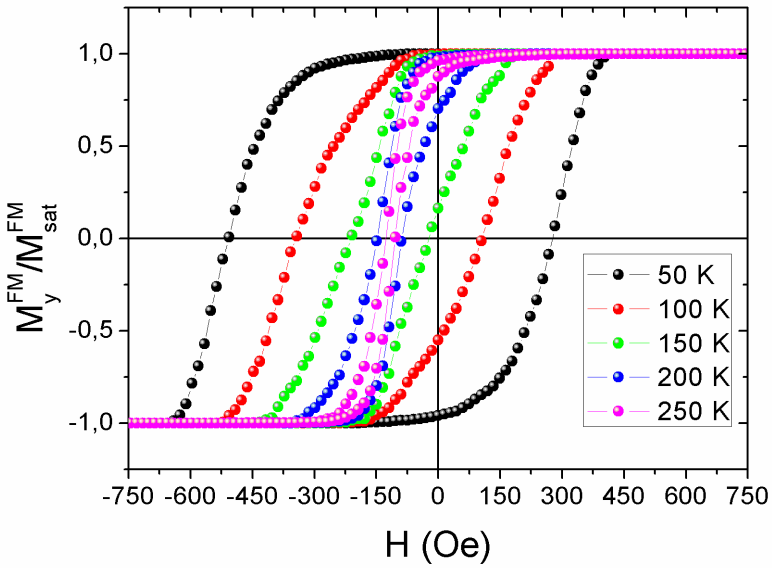


FIGURE 4.5.6 – Distribution des températures de blocage calculée des grains AFM ($\langle T_B^{AFM} \rangle = 528$ K, $\sigma = 140$ K) ($J_{int} = J_{FM} = 0$).

En fait, la température de blocage de la couche AFM déduite des figures 4.5.5 et 4.5.6 semble être de l'ordre de 800 K. Cette température de blocage de la couche AFM est donc nettement supérieure à la température de blocage moyenne des grains AFM $\langle T_B^{AFM} \rangle = 528$ K, mais est cohérente avec la distribution des T_B calculée (figure 4.5.6). On remarque donc que la température de blocage simulée pour les deux couches est inférieure à la température de blocage des plus gros grains.

4.5.3 Interaction à l'interface FM/AFM

Les cycles d'hystérésis pour différentes températures, représentés figure 4.5.7, ne présentent pas de différences significatives par rapport au cas précédent ($J_{int} = 0$) à l'exception, bien évidemment, du décalage dû à l'introduction du couplage interfacial. Nos simulations montrent un minimum de la coercitivité de le couche FM vers 300 K (figure 4.5.8) ce qui est supérieur à la température de blocage moyenne des grains FM ($\langle T_B^{FM} \rangle = 168$ K), comme pour le cas précédent. Le champ d'échange s'annule pour $T = 650$ K (figure 4.5.8), ce qui est supérieur à $\langle T_B^{AFM} \rangle = 515$ K. Cependant, à cette température tous les grains AFM ne sont pas débloqués (figure 4.5.9).



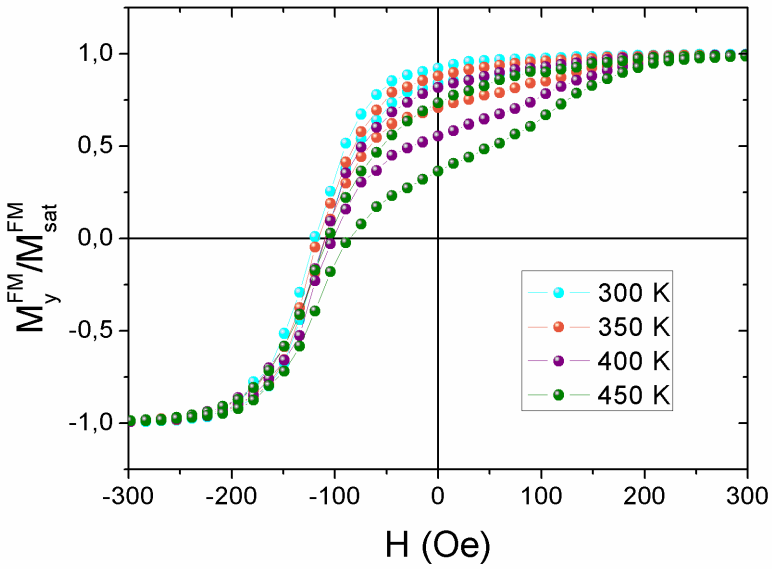


FIGURE 4.5.7 – Cycles d'hystérésis de la couche FM pour différentes températures ($J_{int} \neq 0 - J_{FM} = 0$).

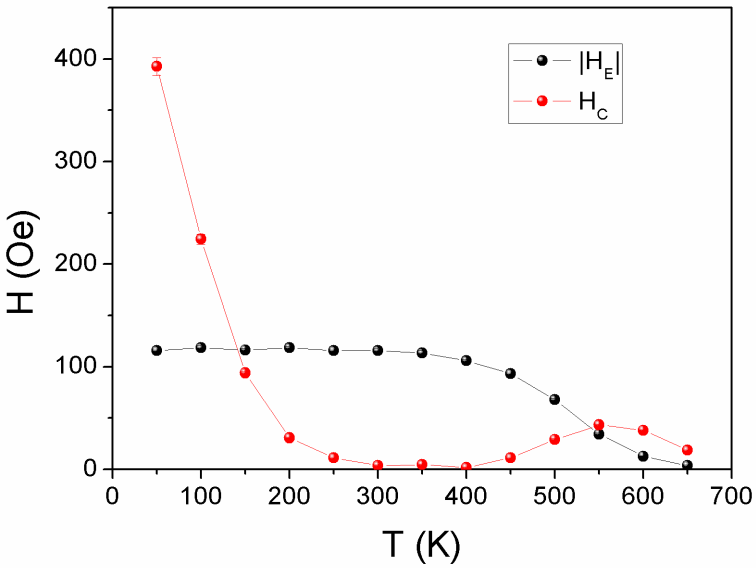


FIGURE 4.5.8 – Evolution des champs coercitif et d'échange en fonction de la température pour une distribution polydisperse ($J_{int} \neq 0 - J_{FM} = 0$).

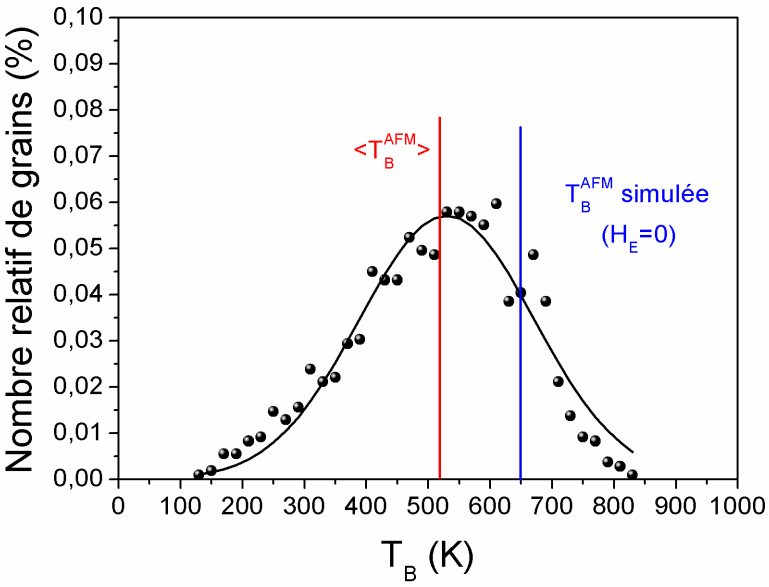


FIGURE 4.5.9 – Distribution des températures de blocage calculée des grains AFM ($\langle T_B^{AFM} \rangle = 515$ K, $\sigma = 138$ K) ($J_{int} \neq 0 - J_{FM} = 0$).

De 350 K à 600 K, on observe une asymétrie des cycles d'hystérésis de la couche FM (figure 4.5.7, les cycles correspondant à 450 K $< T \leq$ 600 K n'ont pas été représentés par soucis de clarté). Ce comportement est à relier à l'aimantation de la couche AFM.

En effet, à 400 K quelques grains AFM (les plus petits) sont entraînés par le retour-

nement de la couche FM. Comme on peut le voir lors de la descente du cycle (premier retournement), figure 4.5.10, les petits grains AFM à l'équilibre commencent à se retourner dès que la couche FM se renverse et certains grains AFM, proche de leur état d'équilibre, se retournent avec un déphasage. En revanche lors de la remontée (deuxième retournement), les grains AFM ne commencent pas leur retournement lorsque la couche FM débute son renversement. Le déphasage entre le retournement de la couche FM et des petits grains AFM ainsi que ceux se trouvant à un état proche de leur état d'équilibre, est donc plus important lors de la remontée. On observe que lorsque la température augmente, ce déphasage (lors de la remontée et de la descente) diminue. En effet, les grains AFM proche de leur état d'équilibre et retournés à 400 K ont atteint leur état d'équilibre à 450 K et se retournent donc en phase avec les grains FM auquels ils sont couplés. On observe que tous les grains AFM retournés lors de la descente du cycle ne se retournent pas lors de la remontée du cycle (M_y^{AFM}/M_{sat}^{AFM} avant la descente et après la remontée sont différents).

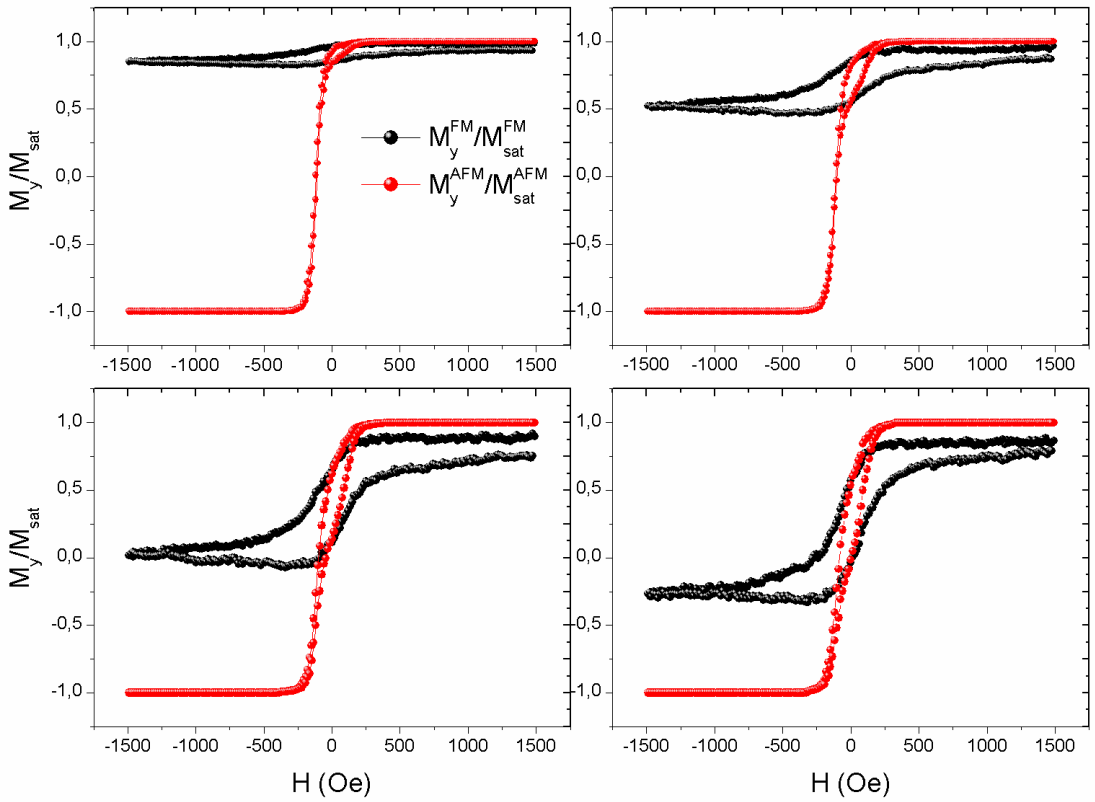


FIGURE 4.5.10 – "Aimantation" des couches AFM et FM pour différentes températures. De gauche à droite et de haut en bas (T=400, 450, 500 et 550 K) ($J_{int} \neq 0 - J_{FM} = 0$).

4.5.4 Interaction à l'interface FM/AFM et entre grains FM

Les cycles d'hystérésis de la couche FM sont représentés figure 4.5.11. On observe que, du fait du couplage entre grains FM, les cycles sont plus carrés. De plus on constate, comme pour le cas sans interaction dans la couche FM, une asymétrie des cycles de 400 K à 500 K. L'origine de cette asymétrie est identique à celle du cas sans interaction dans la couche FM.

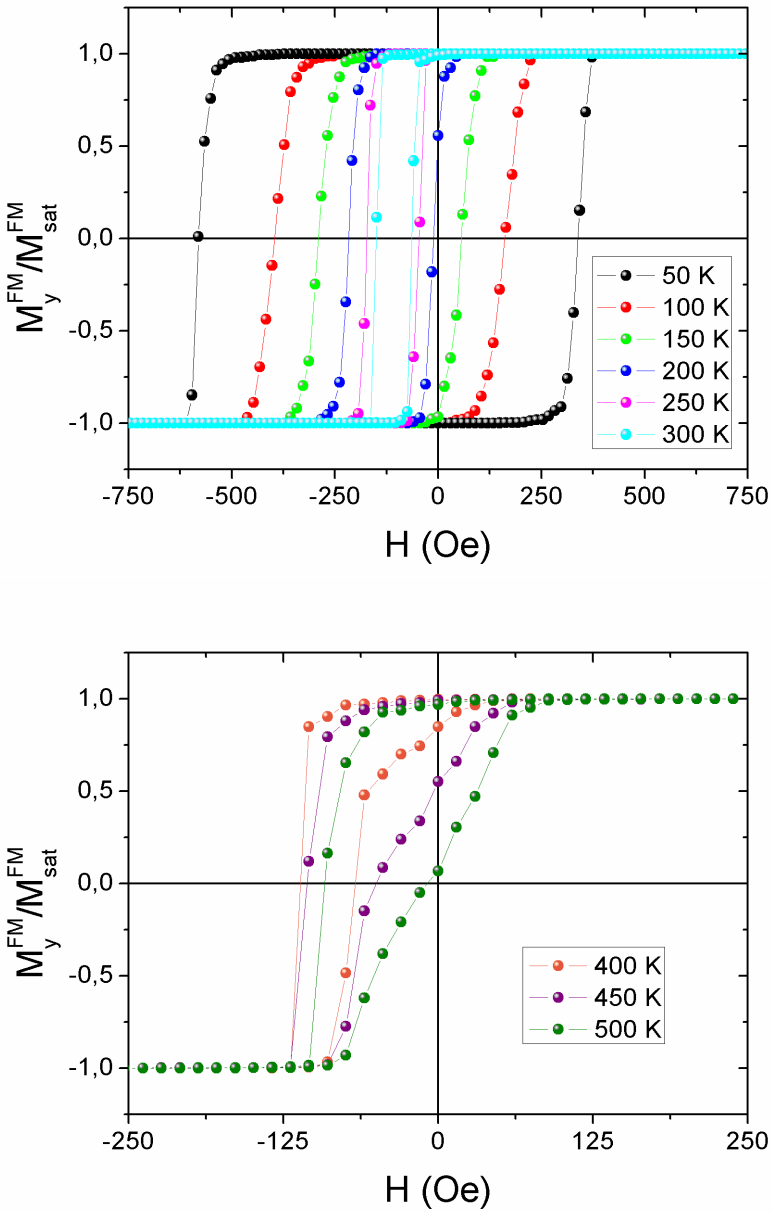
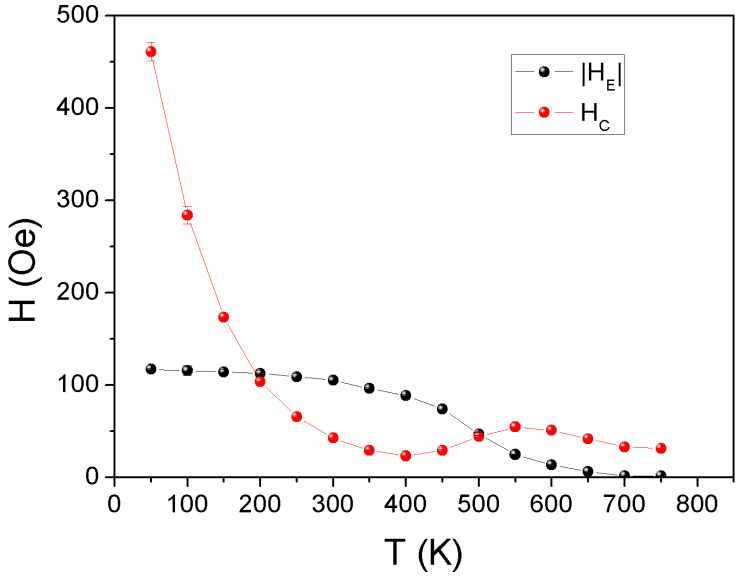


FIGURE 4.5.11 – Cycles d'hysteresis de la couche FM pour différentes températures ($J_{int} \neq 0 - J_{FM} \neq 0$).

Les variations thermiques de H_E et H_C sont représentées figure 4.5.12 avec compa-

raison au cas monodisperse (l'échelle des abscisses a été redimensionnée puisque $\langle V \rangle = 575\,\mathrm{nm}^3 > V_0 = 450\,\mathrm{nm}^3$).



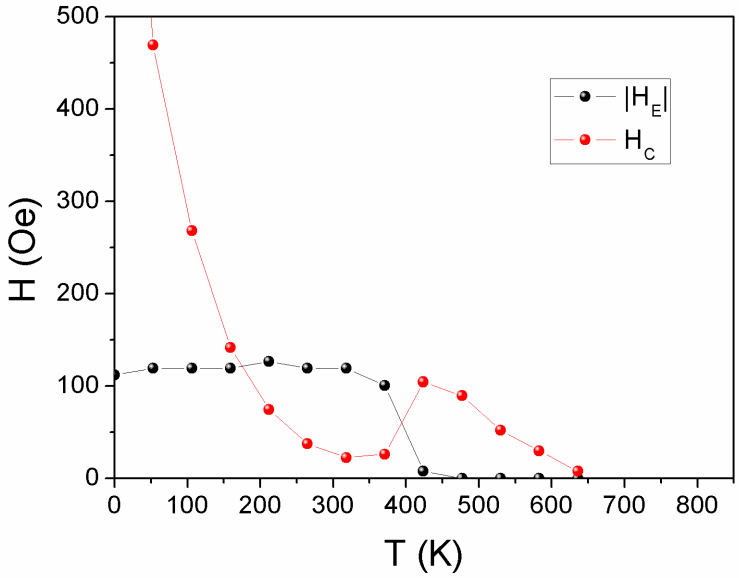


FIGURE 4.5.12 – Evolution des champs coercitif et d'échange en fonction de la température pour une distribution polydisperse (en haut) et monodisperse (en bas) ($J_{int} \neq 0 - J_{FM} \neq 0$).

Nous observons les différences suivantes lors du passage d'une couche monodisperse à

une couche polydisperse :

• La température correspondant au minimum de H_C passe d'environ 300 K à 400 K ;

• Légère augmentation à basse température de H_C ;

• Diminution de H_C lors de la remontée ;

• Décroissance de H_E sur une plus large gamme de températures. En fait, pour une couche polydisperse, H_E décroit légèrement dès les basses températures car les "petits" grains AFM se débloquent à basse température.

On constate que la température correspondant au point d'inflexion de la diminution de H_E est de 500 K donc proche de la température de blocage moyenne calculée des grains AFM ($\langle T_B^{AFM} \rangle = 515$ K). On observe que la gamme de température (300 K à 650 K) correspondant à la décroissance du champ d'échange est plus étendue que celle observé par Hou *et al.* [68]. Cela peut être dû à la présence de plus gros grains dans notre modèle (T_B importante) que dans l'échantillon étudié expérimentalement.

Nous avons fait varier le couplage à l'interface FM/AFM et représenté l'évolution des champs coercitif et d'échange en fonction de la température (figure 4.5.13). On observe que :

• H_E, à basse température ($T = 50$ K), augmente linéairement avec J_{int} (figure 4.5.14). Ainsi, la couche FM est d'avantage piégée ce qui est une bonne chose d'un point de vue des applications ;

• Le début de la forte décroissance de H_E (lorsque $T \to T_B^{AFM}$) ainsi que le point d'inflexion, se produisent à des températures plus faibles lorsque J_{int} augmente. De même, la température à laquelle s'annule H_E (650-700, 650 et 600 K) diminue légèrement lorsque J_{int} augmente. Théoriquement, il est attendu que l'augmentation de J_{int} diminue les T_B^{AFM}. Cette observation est donc cohérente. Ainsi, l'augmentation du couplage à l'interface dans le but d'augmenter le champ d'échange et donc de piéger d'avantage la couche FM (obtention d'un seul état rémanent) peut induire une perte d'anisotropie d'échange aux températures de fonctionnement ;

• La décroissance à basse température de H_C, jusqu'à 300 K, est indépendante de J_{int} en accord avec le modèle de MB ;

• La valeur maximale du champ coercitif, H_C^{max}, après remontée augmente linéairement avec J_{int} (figure 4.5.14) et sa position, en température, diminue légèrement. En effet, la remontée de H_C est associée aux grains AFM qui se retournent avec les grains FM et dépend donc de J_{int}. Pour $J_{int}/k_B = 0,7$ K, à $T = 550$ K, température correspondant au maximum de H_C, une partie des grains AFM se retourne en phase et une autre

avec un déphasage (grains AFM proches de leur état d'équilibre) (figure 4.5.15). Lorsque $J_{int}/k_B = 1,4$ K, T_B^{AFM}diminue légèrement. Ainsi les grains AFM qui se retournaient en retard par rapport aux grains FM pour $J_{int}/k_B = 0,7$ K vont à présent se retourner en phase (figure 4.5.15), ce qui a pour effet d'augmenter le champ coercitif. Cet effet est encore plus marqué lorsque $J_{int}/k_B = 2,1$ K (figure 4.5.15). De plus, on observe que l'augmentation de J_{int} a pour conséquence la saturation de l'aimantation de la couche AFM de part l'augmentation du champ local exercé par la couche FM.

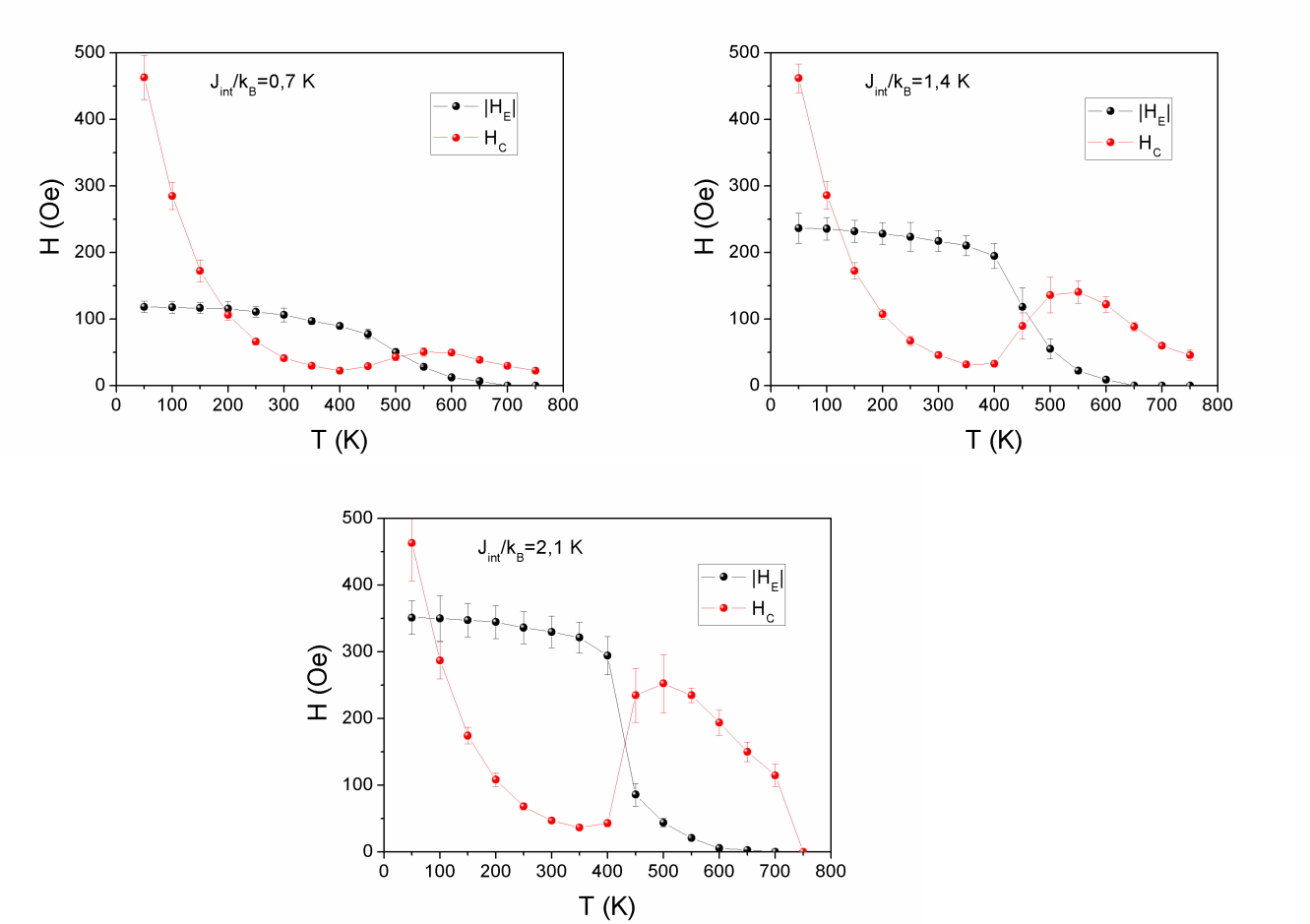


FIGURE 4.5.13 – Evolution des champs coercitif et d'échange en fonction de la température, pour une couche polydisperse ($J_{FM} \neq 0$) avec différentes valeurs du couplage interfacial J_{int} ($J_{int}/k_B = 0,7$ K en haut à gauche, $J_{int}/k_B = 1,4$ K en haut à droite et $J_{int}/k_B = 2,1$ K en bas).

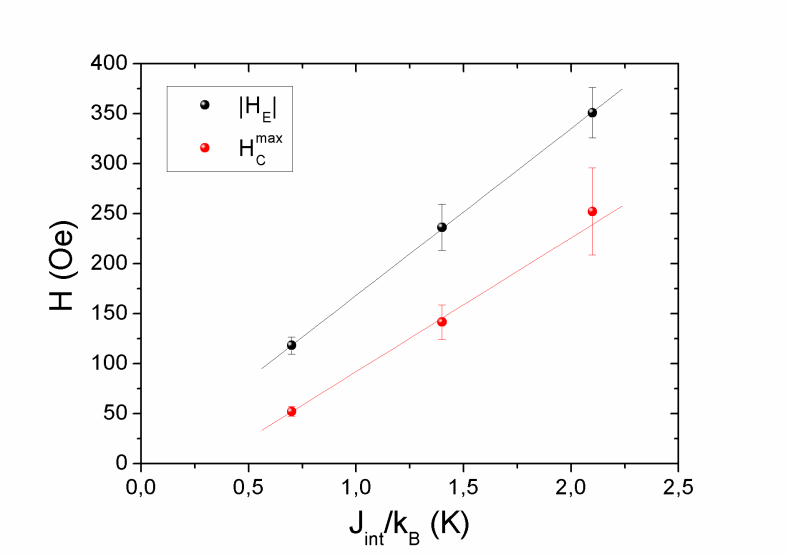


FIGURE 4.5.14 – Evolution de $|H_E|$, à basse température (T=50 K), et H_C^{max} en fonction de J_{int}.

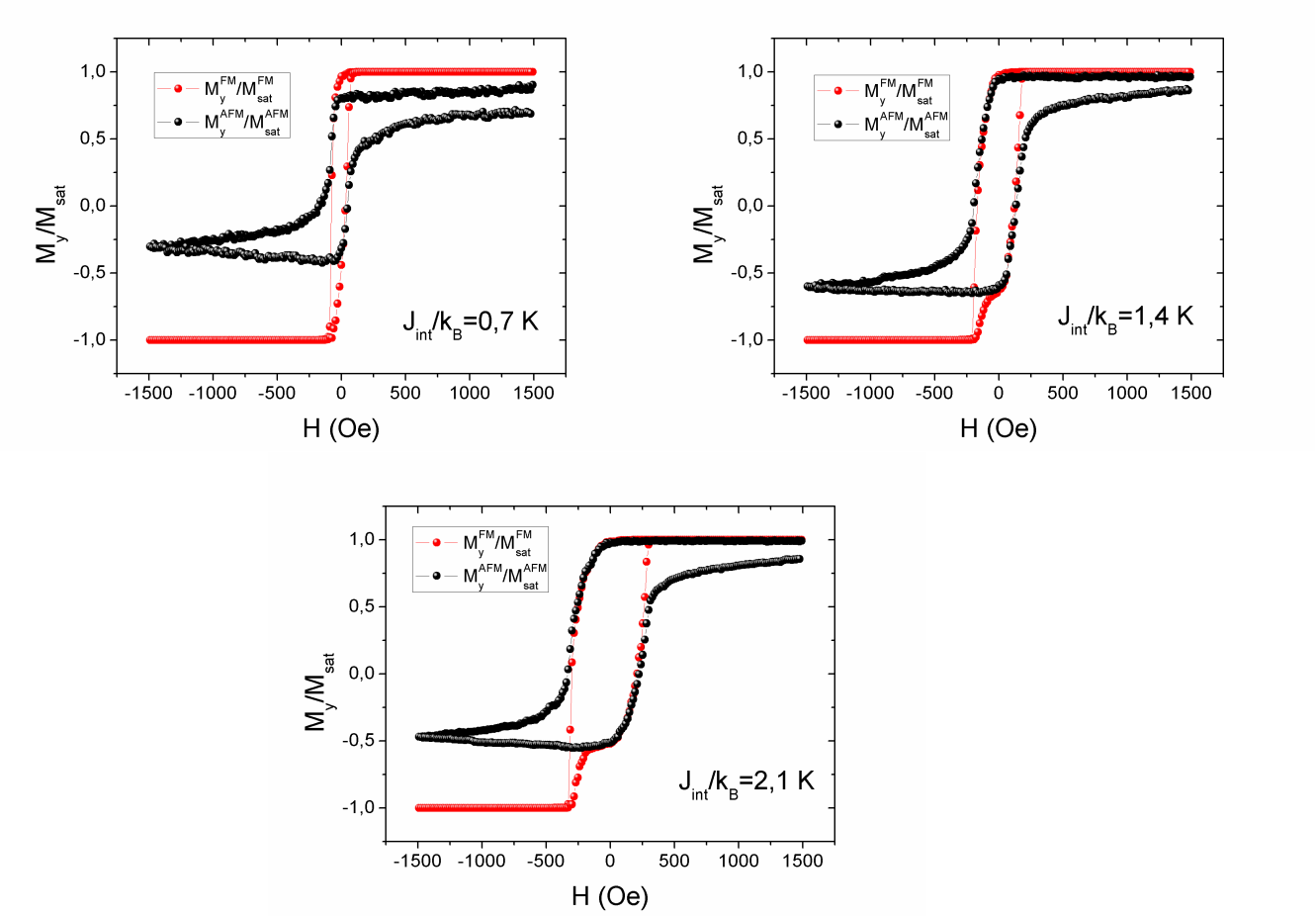


FIGURE 4.5.15 – "Aimantation" des couches AFM et FM pour $J_{int}/k_B = 0,7$ K, $J_{int}/k_B = 1,4$ K et $J_{int}/k_B = 2,1$ K, à T=550 K.

4.5.5 Conclusion sur les températures de blocage

Le tableau 4.5.1 présente les valeurs calculées de $\langle T_B \rangle$ et les valeurs obtenues à partir de nos simulations.

	$J_{int} = J_{FM} = 0$		$J_{int} \neq 0 - J_{FM} = 0$		$J_{int} \neq 0 - J_{FM} \neq 0$	
	T_B^{AFM}	T_B^{FM}	T_B^{AFM}	T_B^{FM}	T_B^{AFM}	T_B^{FM}
Calculées	528	168	515^*	168	515^*	$\varnothing$
Simulées	$\simeq 800^{\#}$	300	$700^{\#}$	300	$700^{\#}$	400^+
			$650 - 700^{\#\#}$		$650 - 700^{\#\#}$	

TABLE 4.5.1 – Valeurs des températures de blocage moyennes calculées et des températures de blocage estimées par simulations, des couches FM et AFM pour les différents cas étudiés avec $\tilde{D}(T)$ (*Valeurs calculées avec $\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_-} + \frac{1}{\tau_+}$ - $^{\#}$courbes $M_{AFM}(H)$ - $^{\#\#}$annulation de H_E - ^+H_C ne s'annule plus : minimum de H_C).

Quelque soit le cas étudié, les températures de blocage FM et AFM simulées sont largement supérieures aux températures de blocage FM et AFM moyennes calculées. En effet, les températures de blocage des gros grains sont plus importantes que celle des grains de volume moyen. La température de blocage simulée se trouve alors comprise entre $\langle T_B \rangle$ et $T_{B,max}$.

Nous avons observé, lors de l'étude préliminaire (distribution monodisperse), que la température d'annulation du champ d'échange correspondait à environ 80% de T_B^{AFM} calculée. Il est à noter que pour notre distribution polydisperse, on retrouve le même résultat, à savoir une annulation du champ d'échange à $\sim 650 - 700$ K en bon accord avec les 80% de $T_{B,max}^{AFM}$ calculée ($T_{B,max}^{AFM} = 830$ K) soit 664 K. Il en va de même lorsque le couplage interfacial est augmenté, puisque nous constatons une annulation du champ d'échange à 650 K en bon accord avec les 80% de $T_{B,max}^{AFM}$ calculée soit 640 K pour $J_{int}/k_B = 1,4$ K et une annulation du champ d'échange à 600 K en bon accord avec les 80% de $T_{B,max}^{AFM}$ calculée soit 608 K pour $J_{int}/k_B = 2,1$ K (figure 4.5.13). Ainsi, le couplage à l'interface FM/AFM diminue la température d'annulation du champ d'échange.

En conclusion, l'extraction d'un volume moyen à partir des températures d'annulation des champs d'échange et coercitif expérimentales conduirait à une surestimation de ce volume moyen. Cependant, le point d'inflexion de la décroissance de H_E correspond approximativement à $\langle T_B^{AFM} \rangle$ d'où une meilleure estimation de $\langle V_{AFM} \rangle$. Par contre, il est difficile d'obtenir $\langle V_{FM} \rangle$.

Les résultats obtenus avec une bicouche polydisperse sont en bon accord avec les résultats expérimentaux [68] (figure 4.5.16). En effet, la décroissance de H_E commence dès les faibles températures et la forte diminution de H_E ainsi que l'augmentation de H_C s'effectuent sur une gamme d'environ 200 K.

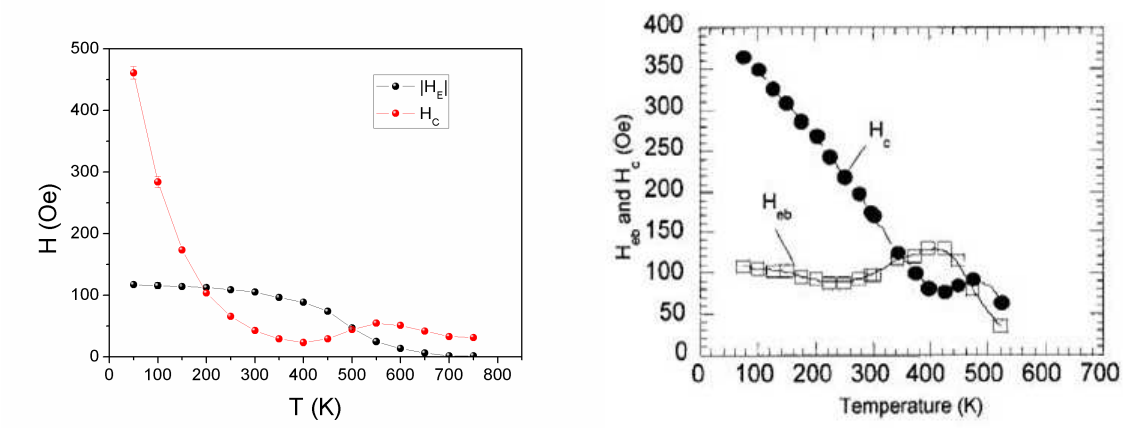


FIGURE 4.5.16 – Evolution des champs coercitif et d'échange en fonction de la température simulée pour une distribution polydisperse (en haut) et obtenue expérimentalement (en bas) [68]

4.6 Distribution des températures de blocage

Nous avons reproduit, par simulation, une procédure de refroidissement similaire à celle utilisée expérimentalement par V. Baltz *et al.* afin de déterminer les distributions de température de blocage des grains AFM [86] (figure 4.6.1).

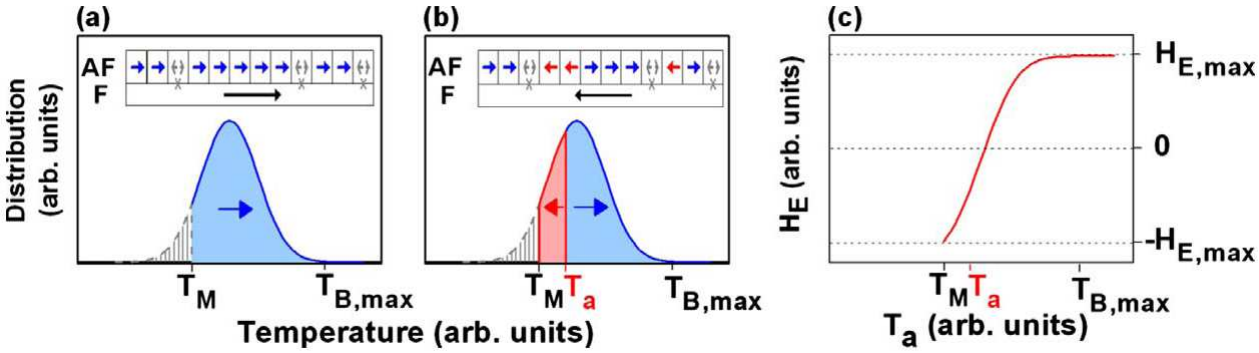


FIGURE 4.6.1 – Représentation schématique de la procédure de détermination de la distribution de température de blocage des grains AFM [8].

4.6.1 Procédure

La détermination expérimentale de la distribution des T_B^{AFM} se fait en plusieurs étapes (figure 4.6.1) :

a / On refroidit l'échantillon sous champ positif (tous les grains FM et AFM, via le couplage avec la couche FM (J_{int}), sont alors polarisés selon la direction positive) et on mesure le cycle d'hystérésis à $T_M = 4\,\mathrm{K}$;

b / On recuit à une température intermédiaire T_a, comprise entre T_M et $T_{B,max}^{AFM}$, et on

refroidit sous champ négatif. Tous les grains AFM, dont la T_B est comprise entre T_M et T_a, sont "repolarisés" via J_{int} selon la direction négative. On mesure le cycle à T_M ;

c / En reproduisant ces étapes, tout en augmentant la valeur de T_a jusqu'à $T_{B,max}^{AFM}$, on a alors la variation de H_E (mesurée à T_M) en fonction de T_a. La dérivée de la courbe $H_E(T_a)$ donne la distribution de T_B des grains AFM.

Lors de nos simulations, l'état de départ est un état saturé selon la direction positive, puis les étapes b et c sont reproduites. Cette procédure a été simulée pour la bicouche monodisperse et la bicouche polydisperse avec interactions dans la couche FM et à l'interface FM/AFM. Les constantes d'anisotropie sont dépendantes de la température.

4.6.2 Couche monodisperse versus couche polydisperse

Il s'agit ici de tester et valider la technique de simulation et de comprendre finement la procédure expérimentale. Notamment de vérifier si le retournement des grains AFM se fait uniquement si $T_B^{AFM} < T_a$ et que la procédure produit bien un pic à T_B^{AFM} (couche monodisperse) ou $\langle T_B^{AFM} \rangle$ (couche polydisperse). Ceci permettra de passer à un modèle plus compliqué faisant intervenir des régions magnétiquement désordonnées à basse température à l'interface. Ces résultats seront comparés aux résultats expérimentaux.

Les figures 4.6.2 et 4.6.3 représentent la variation de H_E en fonction de T_a pour les couches monodisperse et polydisperse, et les distributions de T_B^{AFM} associées.

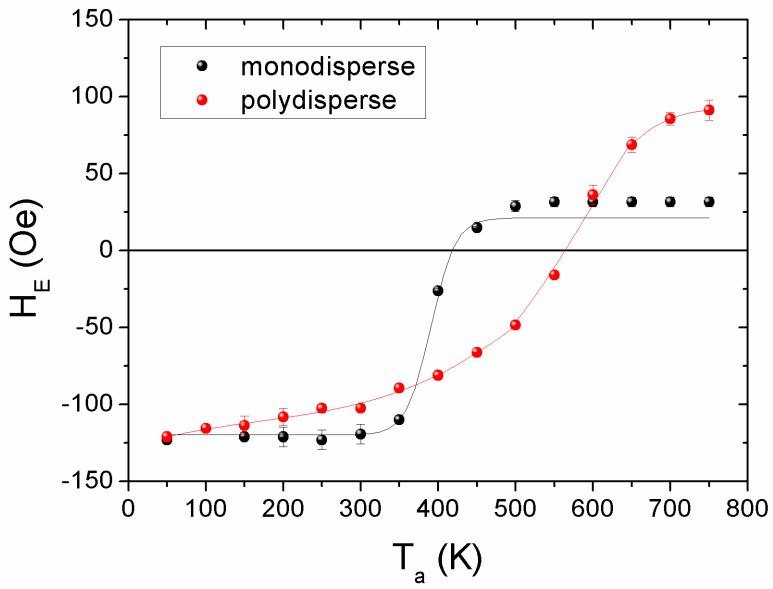


FIGURE 4.6.2 – Evolution du champ d'échange en fonction de T_a pour les deux distributions volumiques.

Pour la couche monodisperse on obtient un pic à $T_B^{pic} = 400 \pm 25$ K (figure 4.6.3), ce qui correspond à la température d'annulation de H_E (figure 4.4.16 et tableau 4.4.3). Il est à noter que l'on n'observe pas de pic de Dirac car le retournement d'aimantation thermiquement activé est un phénomène stochastique.

Pour la couche polydisperse, on obtient une plus large distribution dont le pic est à $T_B^{pic} = 575 \pm 25$ K (figure 4.6.3), ce qui est légèrement supérieur au point d'inflexion de la courbe $H_E(T)$ (figure 4.5.12) et à la valeur de $\langle T_B^{AFM} \rangle$ (515 K). Remarquons cependant que la valeur moyenne de cette distribution doit être inférieure à la température correspondant au pic de la distribution, donc plus proche de la valeur attendue.

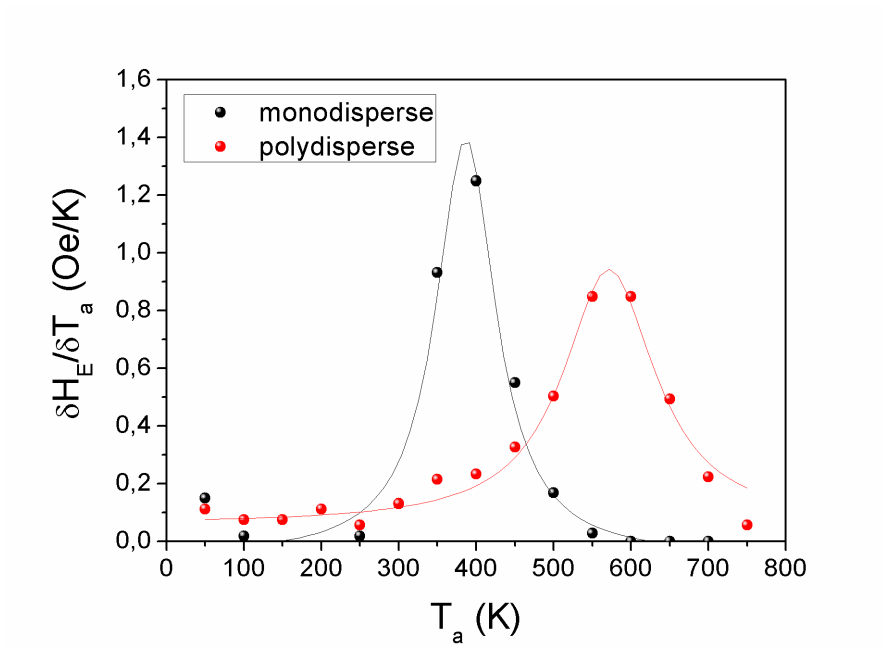


FIGURE 4.6.3 – Distribution des T_B^{AFM} pour les deux distributions volumiques.

On observe que contrairement à ce qui est observé expérimentalement, la valeur de H_E lorsque T_a est grand est inférieure à la valeur absolue de H_E lorsque $T_a \to 0$ K (figure 4.6.2). En effet, le couplage interfacial introduit ici n'est pas suffisant pour saturer la couche AFM à ces températures, comme nous l'avons déjà vu § 4.4.1.2. De plus, l'état de départ des simulations est un état saturé selon la direction positif, quelque soit le volume des grains AFM. Or, expérimentalement le système est recuit sous champ, ainsi les trop gros grains AFM ne pouvant être saturé via J_{int} ne sont pas polarisés ce qui conduit donc à une diminution de la valeur absolue de H_E lorsque $T_a \to 0$ K par rapport à celle obtenue par nos simulation.

4.6.3 Influence du couplage à l'interface FM/AFM

Les variations de H_E en fonction de T_a, ainsi que les distributions de température de blocage des grains AFM, obtenues par simulations pour différentes valeurs de J_{int} ont été réalisées et sont représentées figures 4.6.4 et 4.6.5.

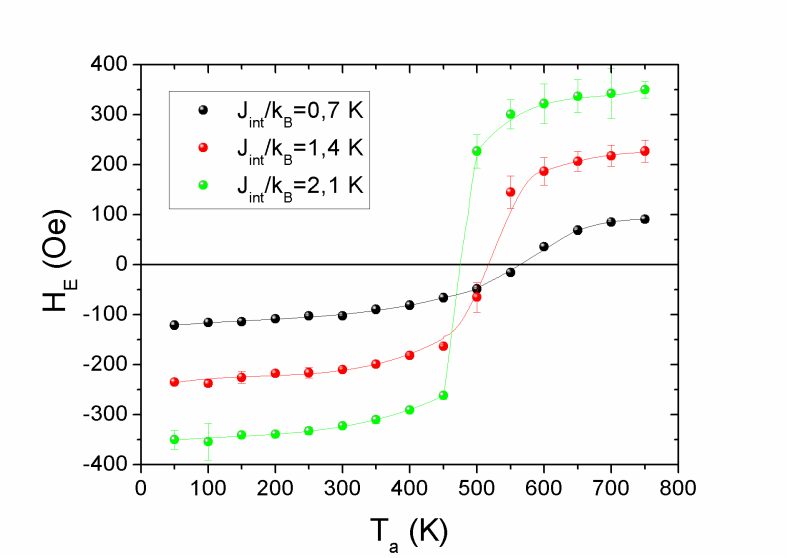


FIGURE 4.6.4 – Evolution du champ d'échange en fonction de T_a pour différentes valeurs de J_{int}.

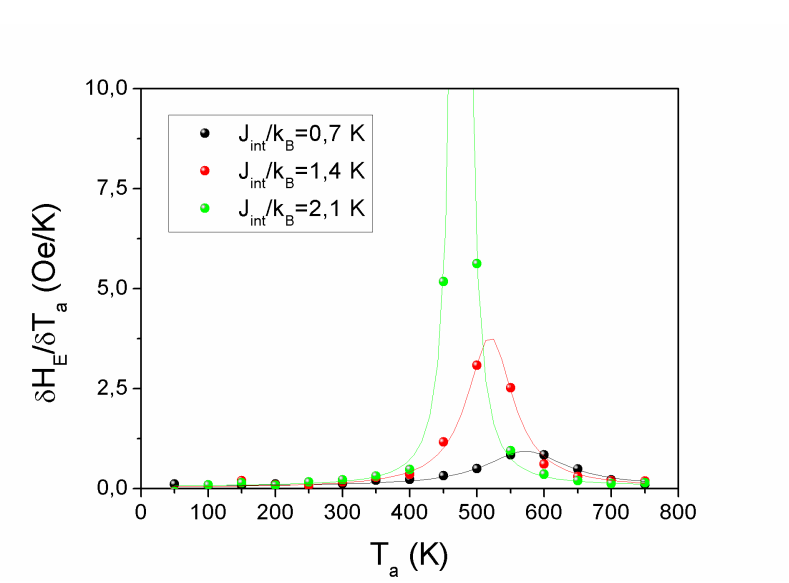


FIGURE 4.6.5 – Distributions de T_B^{AFM} pour différentes valeurs de J_{int}.

On observe un décalage vers les basses températures du pic de la distribution lorsque l'interaction à l'interface FM/AFM augmente ce qui confirme bien que contrairement à T_B^{FM}, T_B^{AFM} dépend de J_{int}. Ce décalage est en accord avec les résultats obtenus § 4.5.4, ainsi qu'avec les distributions calculées (figure 4.6.6). Il nous est malheureusement

impossible de comparer ces résultats avec les données expérimentales, étant donné la difficile obtention des valeurs du couplage à l'interface.

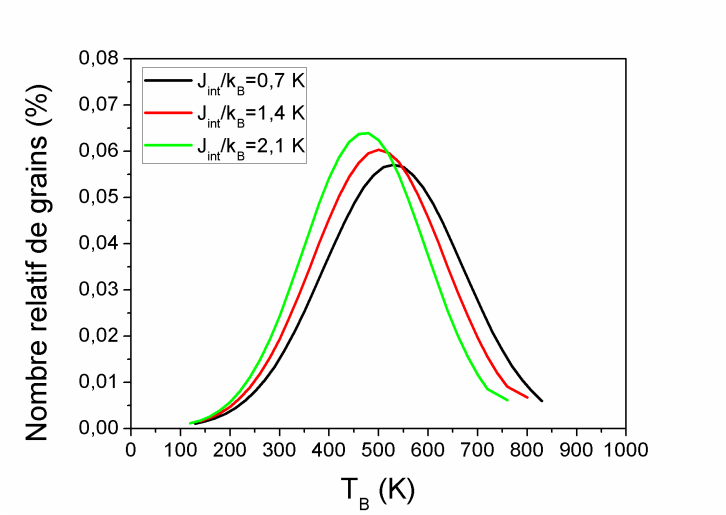


FIGURE 4.6.6 – Distributions de température de blocage calculées pour différentes valeurs du couplage interfacial.

4.6.4 Influence de la distribution volumique

4.6.4.1 Influence du volume moyen et de l'écart-type

Nous avons diminué le volume moyen, ainsi que l'écart-type de la distribution σ (figure 4.6.7).

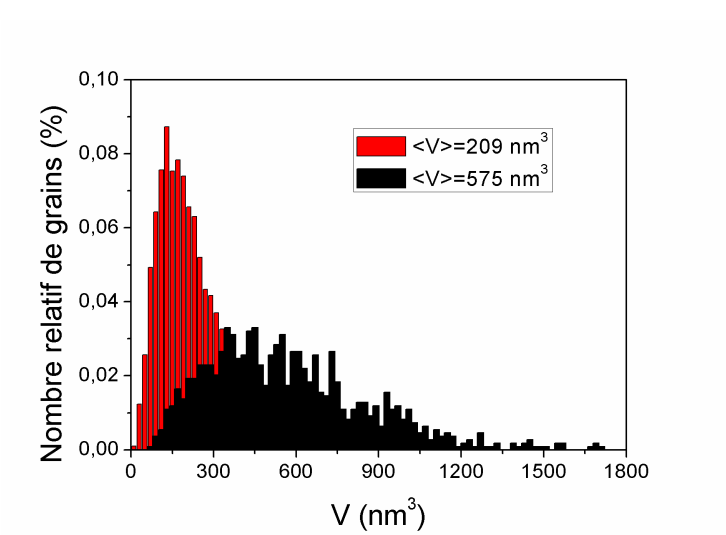


FIGURE 4.6.7 – Distribution volumique pour deux microstructures de volume moyen et d'écart-type différents (en rouge : $\langle V \rangle = 209$ nm^3 et $\sigma = 114$ nm^3, en noir : $\langle V \rangle = 575$ nm^3 et $\sigma = 308$ nm^3).

Pour une distribution de volume moyen $\langle V \rangle = 209$ nm^3, la distribution des T_B^{AFM}

simulée (figure 4.6.8) ne présente toujours qu'un seul pic. On observe comme attendu que le pic a été décalé vers les basses températures ($T_B^{pic} \simeq 300$ K) par rapport à celui de la couche de volume moyen $\langle V \rangle = 575$ nm^3 ($T_B^{pic} \simeq 575$ K). Ce résultat est cohérent compte tenu du fait que le volume moyen a été diminué. De plus, la position de ce pic est très proche de la valeur calculée de $\left\langle T_B^{AFM} \right\rangle$ ($T_B(V = 209\,\text{nm}^3) = 302$ K).

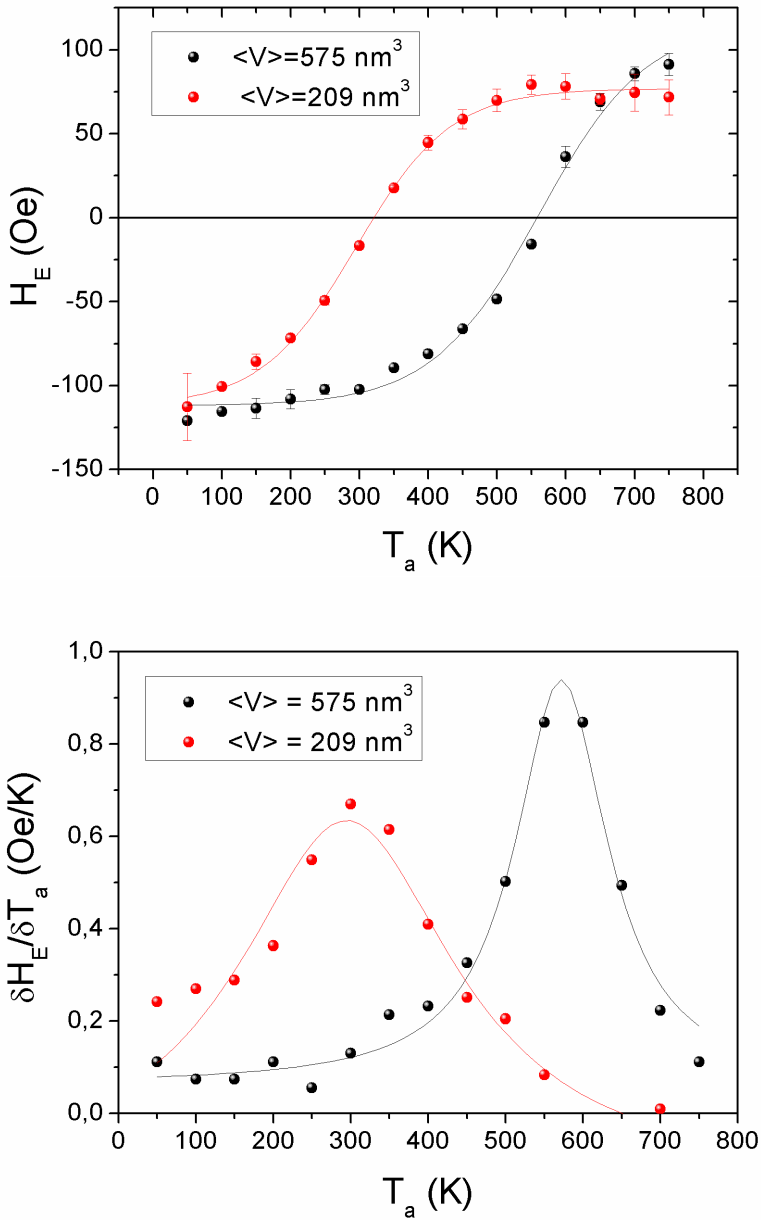


FIGURE 4.6.8 – Variation de H_E en fonction de T_a (en haut) et distribution des T_B^{AFM} associée (en bas), pour deux microstructures différentes (en rouge : $\langle V \rangle = 209$ nm^3 et $\sigma = 114$ nm^3, en noir : $\langle V \rangle = 575$ nm^3 et $\sigma = 308$ nm^3).

4.6.4.2 Influence de l'épaisseur de la couche AFM

Nous avons réalisé les même simulations que précédemment (e_{AFM} = 8 nm, § 4.6.2) avec e_{AFM} = 2, 4 et 6 nm, afin d'observer l'effet de l'épaisseur de la couche AFM sur les distributions de température de blocage. Il est à noter que la variation de l'épaisseur des couches peut aussi avoir un impact sur les dimensions latérales (dans le plan des couches des grains) [65] ce qui n'est pas pris en compte dans notre modèle. La figure 4.6.9 représente la variation de H_E avec T_a ainsi que les distributions des T_B^{AFM} associées.

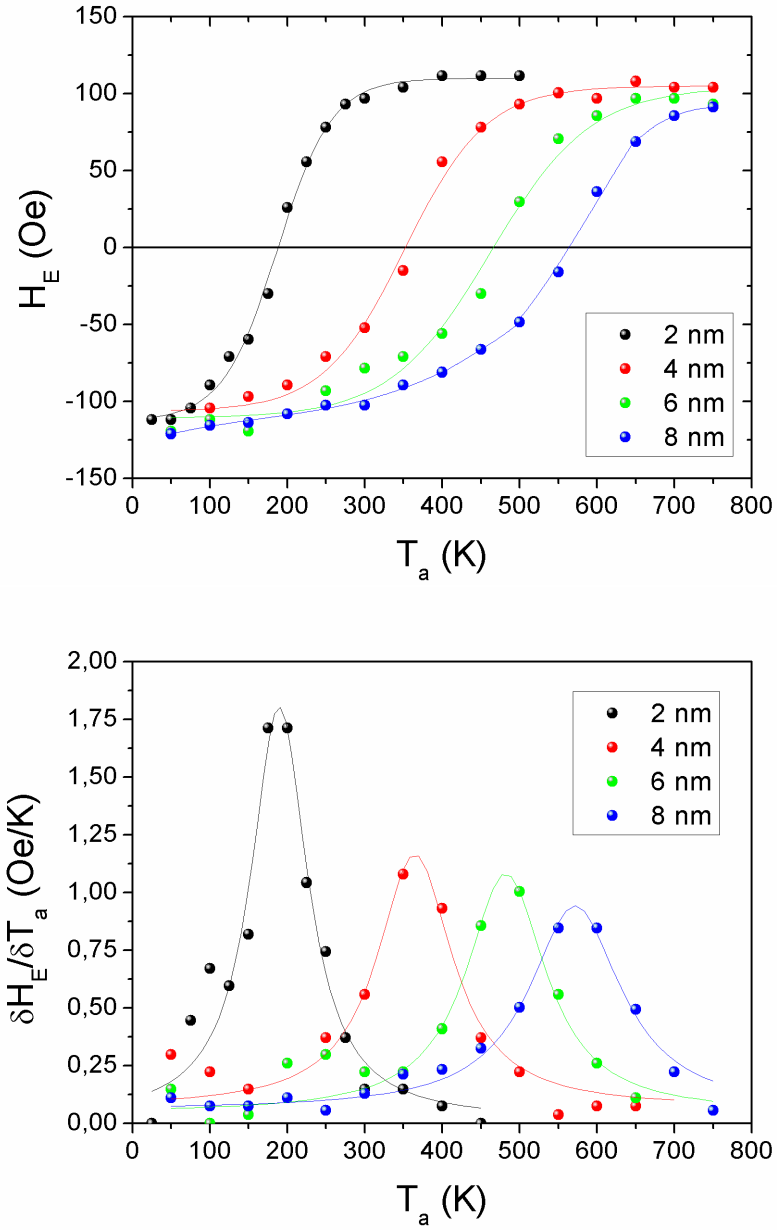


FIGURE 4.6.9 – Evolution de H_E en fonction de T_a (en haut) et distribution des T_B^{AFM} associée (en bas), pour e_{AFM} = 2 , 4 , 6 et 8 nm.

On remarque que le pic de la distribution des T_B^{AFM} se décale vers les hautes températures lorsque l'épaisseur de la couche AFM augmente, ce qui est bon accord avec les résultats observés expérimentalement [8]. L'allure de la variation de la température de blocage associée à la position du pic de la distribution T_B^{pic} (proche de $\langle T_B^{AFM} \rangle$) avec l'épaisseur de la couche AFM (figure 4.6.10) est en accord avec les résultats expérimentaux antérieurs [69, 70, 75, 87, 88]. On constate que pour $e_{AFM} = 2$ nm, T_B^{pic} est environ égal à $\langle T_B^{AFM} \rangle$ (distribution assez étroite). Lorsque l'épaisseur de la couche AFM augmente un écart entre les deux valeurs apparait.

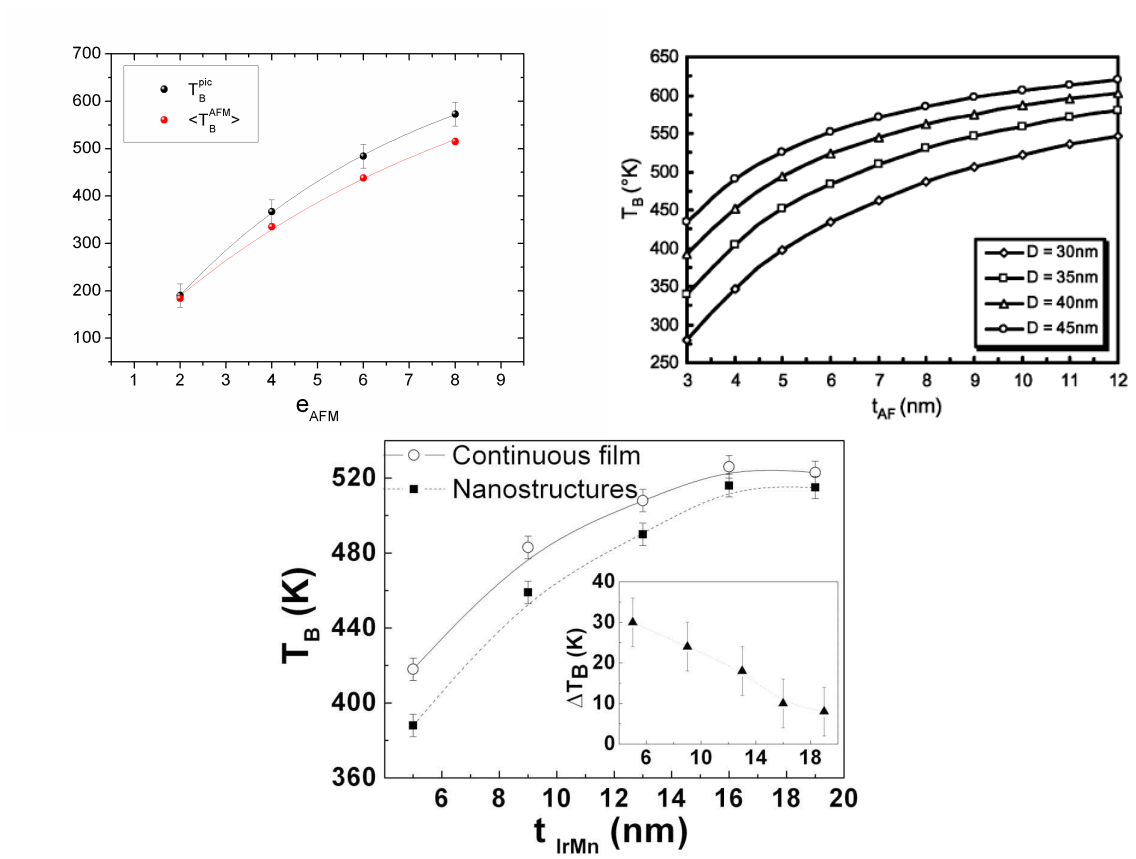


FIGURE 4.6.10 – Variation de $\langle T_B^{AFM} \rangle$ et de T_B^{pic} avec e_{AFM}, obtenue par simulation Monte Carlo (en haut, à gauche), par calcul analytique (en haut, à droite) [69] et expérimentalement (en bas) [89].

4.6.5 Distribution bimodale (couche polydisperse)

Une étude récente [8] a mis en évidence une distribution bimodale avec un pic à basse température (BT) que nous n'avons pas observé en faisant varier les différents paramètres de notre modèle. La proposition faite par V. Baltz *et al.* est que ce pic serait dû à un état "verre de spin" dans certaines régions de l'interface, présentant une faible température de gel (T_g) (entre 4 et 70 K). Ces régions subiraient des réorganisations de spins quand l'échantillon est recuit à T_a entre 4 et 70 K puis refroidi sous champ négatif.

Ces réorganisations des spins interfaciaux conduiraient alors à des variations locales du couplage effectif $J_{FM/AFM}$ au travers de ces regions, affectant ainsi le champ d'échange, puisque :

$$M_s H_E e_{FM} = \int\int_{grains\ stables\ AFM} J_{FM/AFM} D(J_{FM/AFM}) \frac{V_{AFM}}{e_{AFM}} P(V_{AFM}) dV_{AFM} dJ_{FM/AFM}$$

où M_s et e_{FM} sont l'aimantation à saturation et l'épaisseur de la couche FM, et e_{AFM} est l'épaisseur de la couche AFM. $D(J_{FM/AFM})$ est la distribution du couplage interfacial effectif (celle-ci serait due selon à de la rugosité d'interface, à de la frustration, etc ....) et $P(V)$ est la distribution en volume des grains AFM (usuellement prise de type log-normale).

Fernandez-Outon *et al.* [73], ont étudié la variation du champ d'échange avec la température de recuit. Deux protocoles ont été utilisés. Dans le premier, la mesure du cycle se fait à la température de recuit ($T_M = T_a$) alors que dans le deuxième, la température de mesure du cycle correspond à la température à laquelle l'agitation thermique est supposée ne pas avoir d'influence ($T_M = T_{NA}$), où T_{NA} est comprise entre 60 et 100K (selon les systèmes étudiés). Le premier protocole présente également une variation brutale à basse température de H_E (comme observé par Baltz *et al.*). En revanche, cette variation n'est pas observée avec le second protocole puisque les mesures de cycles se font à une température supérieure à 60 K, donc aucun pic à basse température n'est observé.

Nous avons souhaité alors introduire dans notre modèle une dépendance en température, à basse température, de l'intégrale d'échange à l'interface ($\tilde{J}_{int}(T) = \tilde{J}_{int}(0)(1 - T/T_g)^{1/3}$ avec 4 K $< T_g <$ 70 K), afin de rendre compte d'un affaiblissement du couplage interfacial effectif, dû à des régions "verre de spin". Cependant aucun pic dans la distribution des T_B^{AFM}, à basse température, n'a été observé. En effet, tant que la température de recuit sera inférieure à T_B^{AFM}, les grains AFM ne seront pas repolarisés lors du refroidissement sous champ négatif et on n'observera donc aucune variation de H_E à 4 K quelque soit T_a, donc pas de pic à basse température. Le problème vient du fait qu'il n'existe pas de région "verre de spin" dans ce modèle, la couche AFM étant toujours constituée exclusivement de grains AFM. Il est également possible d'obtenir une dépendance en température du couplage interfacial effectif $J_{FM/AFM} = \tilde{J}_{int}\sigma_{FM}\sigma_{AFM}$ en introduisant une variation thermique de σ_{FM} et/ou de σ_{AFM}. Cette variation a été mise en évidence dans l'approche atomique dans le cas d'une interface rugueuse (*cf.* chapitre 3). Nous avons donc décidé d'introduire une dépendance en température de la forme $\sigma_{AFM}(T) = \sigma_{AFM}(0)(1 - T/T_g)^{1/3}$ pour $T \leq T_g$ et $\sigma_{AFM}(T) \simeq 0$ pour $T > T_g$, avec

4 K $< T_g <$ 70 K. $\sigma_{AFM}(0)$ est inférieur à σ_{AFM}^{sat} ce qui traduit la non-colinéarité des moments de la région à 0 K. σ_{AFM}^{sat} pourrait même être nul dans le cas d'un "verre de spin" à aimantation résultante nulle (nous exclurons ce cas). Il est à noter que la loi de variation en $(1 - T/T_g)^{1/3}$ est un choix arbitraire qui a pour intérêt principal d'impliquer la condition de non-couplage avec certaines régions de la couche AFM pour $T > T_g$ car $\sigma_{AFM}(T > T_g) = 0$. Une autre loi de puissance aurait pu être choisie, mais il n'existe pas, à notre connaissance, d'expression générale pour l'aimantation d'un "verre de spin" à $T < T_g$. Ainsi dans notre modèle la couche AFM est constituée de grains AFM et de grains "verre de spin" (figure 4.6.11). Les régions "verre de spin" ne sont donc pas uniquement localisées aux interfaces. Nous avons choisi cette modélisation car elle était relativement facile à mettre en oeuvre dans un premier temps. De plus, nous avons également considéré une distribution de T_g traduisant l'intensité de la frustration magnétique.

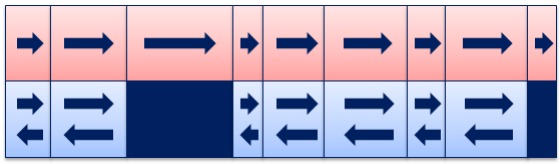


FIGURE 4.6.11 – Représentation schématique de la structure granulaire dans le cadre du modèle avec "verre de spin" (les grains AFM bleus foncés sont ceux présentant un état "verre de spin" en dessous de T_g).

Nous avons considéré une bicouche dont la couche AFM est constituée de 10% de grains à comportement "verre de spin" en dessous de T_g (distribution uniforme des T_g). Les figures 4.6.12 et 4.6.13 représentent la variation de H_E en fonction de T_a et la distribution des T_B^{AFM} associée.

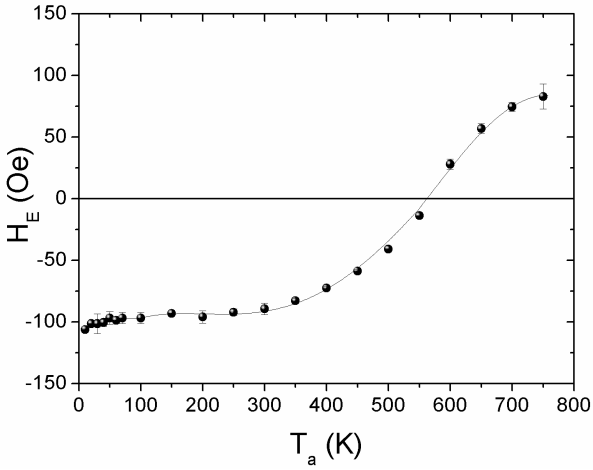


FIGURE 4.6.12 – Evolution de H_E en fonction de T_a pour une distribution polydisperse avec un état "verre de spin" pour 10% des grains AFM.

On observe une légère variation à BT de $H_E(T_a)$ (figure 4.6.12) qui introduit un pic à BT dans la distribution en température de blocage (figure 4.6.13) et fait donc apparaître une distribution bimodale comme observée expérimentalement par Baltz *et al.*.

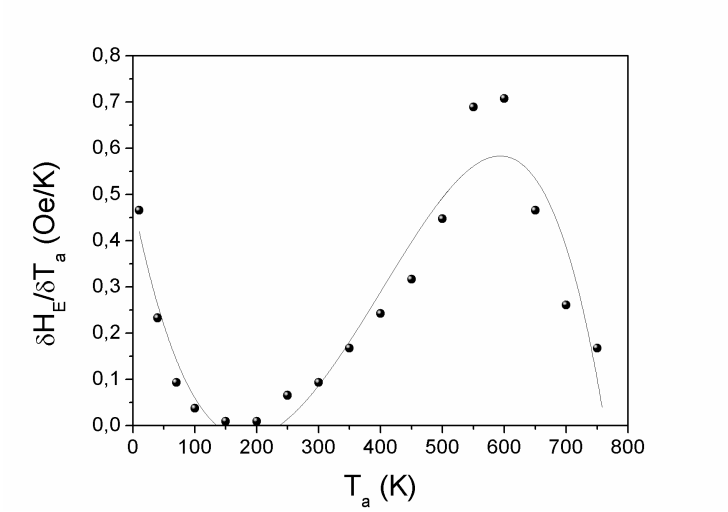


FIGURE 4.6.13 – Distribution de T_B^{AFM}, pour une distribution polydisperse avec un état "verre de spin" pour 10% des grains AFM (à gauche), et obtenue expérimentalement (à droite) [8].

Nous avons fait varier le pourcentage de grains affectés par la dépendance en température (à basse température) des grains de la couche AFM. Nous avons réalisé les simulations avec 20 et 30% de grains affectés. Les figures 4.6.14 et 4.6.15 représentent la variation de H_E en fonction de T_a et la distribution des T_B^{AFM} associée.

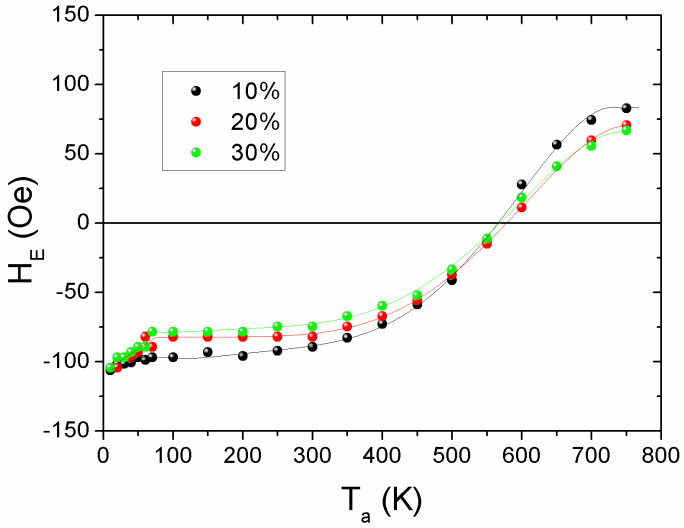


FIGURE 4.6.14 – Evolution du champ d'échange en fonction de T_a pour différents pourcentages de "verre de spin" à l'interface.

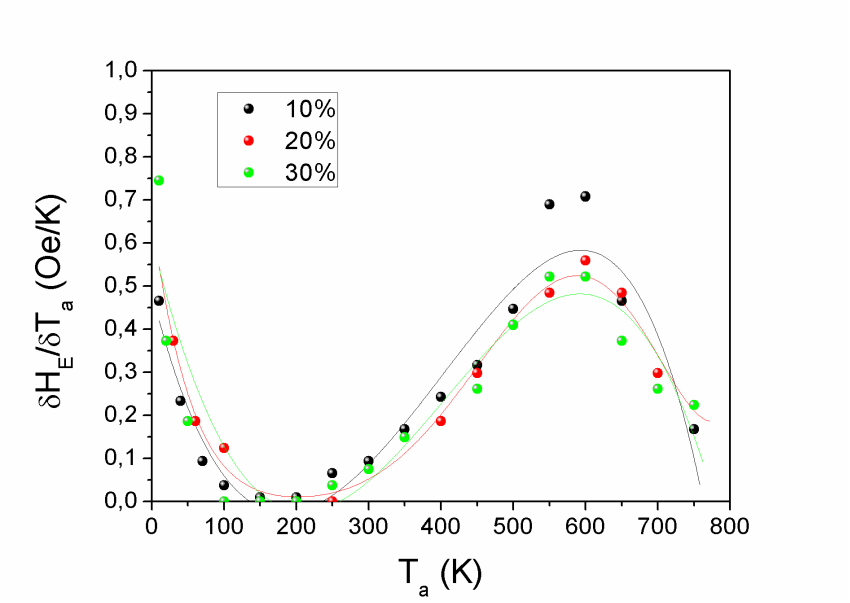


FIGURE 4.6.15 – Distribution de T_B^{AFM} associées pour différents pourcentages de grains AFM présentant un état "verre de spin".

On remarque que l'amplitude du pic BT augmente au détriment du pic HT lorsque le pourcentage de grains AFM présentant un état "verre de spin" augmente. Ces résultats sont en bon accord qualitatif avec ce que l'on peut observer dans la littérature lorsque la frustration interfaciale est augmentée, par interdiffusion [90] ou à l'interface sur les bord de plots [71] (figure 4.6.16).

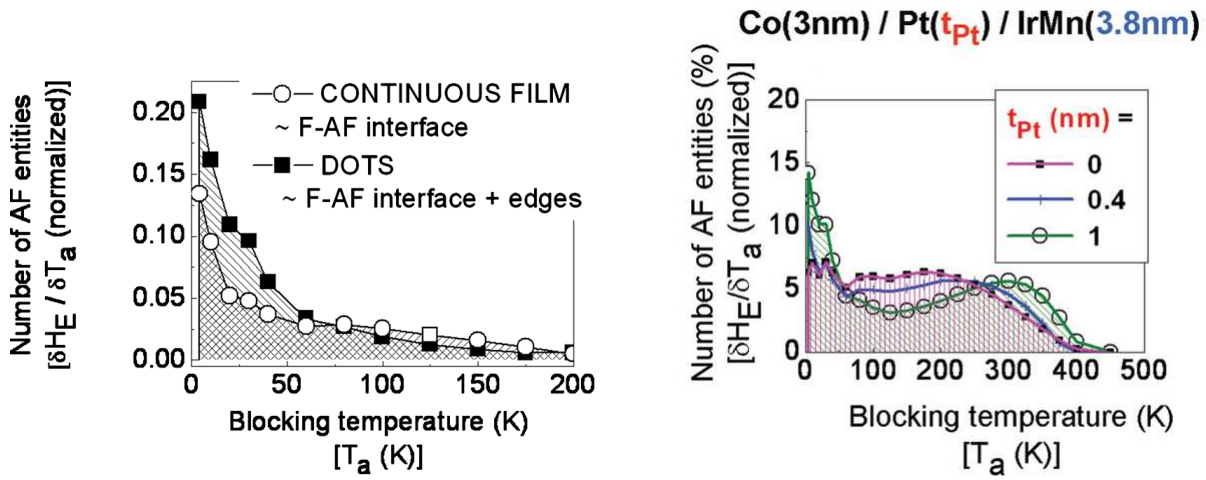


FIGURE 4.6.16 – Distributions de T_B^{AFM} obtenues expérimentalement pour un système constitué de réseau de plots (à gauche) [71] et d'un système présentant une couche de Platine à l'interface entre la couche FM (Co) et AFM (IrMn) (à droite) [90].

En conclusion, nos résultats montrent qu'une dépendance en température de J_{int} ne conduit pas à un pic BT. La présence de régions non aimantées à $T > T_g$ (T_g faible) dans

la couche AFM, c'est à dire des régions "verre de spin", non nécessairement limitées à l'interface FM/AFM conduit bien à l'apparition d'un pic BT dont l'intensité, en comparaison de celle du pic HT, apporte des informations sur la proportion de ces régions "verre de spin" à l'interface FM/AFM.

Conclusion

Lors de cette thèse, nous avons mis au point plusieurs modèles, utilisant la méthode de simulation Monte Carlo, afin de rendre compte de l'influence d'un certain nombre de paramètres sur les propriétés d'anisotropie d'échange de bicouches FM/AFM.

Dans un premier temps, nous avons étudié les bicouches FM/AFM par le biais d'une approche atomique. Nos résultats numériques, considérant une couche AFM bloquée, ont mis en évidence la forte influence de la rugosité interfaciale sur l'anisotropie d'échange. Il a été observé que l'interface en damier, interface la plus rugueuse, donnait lieu à des valeurs plus importantes du champ d'échange. De plus, bien que la valeur du champ d'échange soit liée à celle du champ local moyen à l'interface FM/AFM, les détails de la distribution de champ local à l'interface FM/AFM jouent un rôle important, et notamment l'existence de sites FM à fort champ local se comportant comme des sites de nucléation lors du retournement. Par la suite, nous avons étudié la dépendance, en fonction de l'anisotropie de la couche AFM, du champ d'échange, et la dépendance en température du champ d'échange pour le cas d'une couche AFM libre. Nos résultats confirment, une fois encore, la forte influence de la rugosité à l'interface FM/AFM. Pour l'interface en damier, le champ d'échange est plus important et un maximum est observé lorsque l'anisotropie de la couche AFM croît contrairement à l'interface plane. Ce maximum peut seulement apparaître quand la frustration magnétique est assez forte et la couche AFM non bloquée donnant lieu à des configurations magnétiques non colinéaires lors du retournement. L'effet de la température est également différent lorsque la rugosité augmente. Nos résultats montrent que la frustration magnétique, combinée à l'agitation thermique pouvait être responsable d'une diminution significative du couplage effectif entre les couches FM et AFM conduisant à une annulation du champ d'échange dans le cas d'une interface suffisamment rugueuse. Ceci confirme que dans les systèmes réels, la frustration magnétique à l'interface FM/AFM peut conduire, lorsque la température augmente, à des régions magnétiquement désordonnées qui ne contribuent pas au champ d'échange.

La seconde partie de cette thèse a été dédiée à l'étude de bicouches FM/AFM dans le cadre d'une approche granulaire. Le cas de bicouches monodisperse et polydisperse a

été étudié. La conclusion qui en ressort est que l'annulation du champ d'échange se produit à une température inférieure à la température de blocage calculée des grains AFM, T_B^{AFM}, pour le cas d'une bicouche monodisperse. Pour une bicouche polydisperse, l'annulation du champ d'échange s'effectue à une température comprise entre la température de blocage moyenne des grains AFM et la température de blocage maximale des grains AFM $T_{B,max}^{AFM}$ (T_B^{AFM} des plus gros grains AFM). La température à laquelle l'annulation du champ d'échange est observée, communément définit comme une température de blocage, correspond d'après nos simulations à environ 80% de T_B^{AFM} calculée pour le cas d'une bicouche monodisperse et 80% de $T_{B,max}^{AFM}$ calculée pour le cas d'une bicouche polydisperse. Ce décalage doit donc être pris en compte lors de l'estimation du volume moyen ou de la constante d'anisotropie des grains AFM, à partir de mesures expérimentales de la température d'annulation du champ d'échange. Il a également été mis en évidence qu'une augmentation du couplage à l'interface FM/AFM avait pour conséquence une diminution des températures de blocage des grains AFM. Les résultats obtenus, concernant la variation thermique des champs coercitif et d'échange, sont en bon accord avec les résultats expérimentaux [68].

Par la suite nous nous sommes intéressés aux distributions de température de blocage. Les distributions de température de blocage des grains AFM obtenues sont en bon accord avec les résultats des variations thermiques du champ d'échange. L'influence du couplage interfacial, de la distribution volumique des grains AFM, ainsi que la présence de grains AFM à comportement "verre de spin", sur la distribution de T_B^{AFM} a été étudiée. En accord avec la variation thermique du champ d'échange, l'augmentation du couplage interfacial décale la distributions de température de blocage des grains AFM vers les basses températures. La diminution de l'épaisseur de la couche AFM, induit également un décalage de la distribution vers les basses températures. En effet, dans ces deux cas (augmentation de J_{int} et augmentation de e_{AFM}) le champ local à l'interface se trouve augmenté et de fait les températures de blocage se trouvent quant à elles diminuées, ces résultats sont donc cohérents. De plus, il est à noter que l'allure de la variation de T_B^{AFM} avec e_{AFM} est en accord avec différents résultats expérimentaux. Lorsque $\langle V_{AFM} \rangle$ diminue, la distribution de T_B^{AFM} présente un décalage vers les basses températures. De plus, bien qu'il y ait présence de petits grains ($V_{AFM} < 40$ nm^3), la distribution ne présente qu'un seul pic. Enfin, l'influence de zone "verre de spin", ayant pour origine un affaiblissement du couplage effectif dû à la présence de rugosité, sur la distribution de T_B^{AFM} a été étudié. L'introduction d'une "certaine quantité" de grains présentant un état "verre de spin" dans la couche AFM, induit bien un pic à basse température comme observé expérimentalement. De plus, nos résultats montrent qu'un faible pourcentage (de l'ordre de 10%) de région "verre de spin" dans la couche AFM suffit à faire apparaitre un pic BT. L'augmentation du rapport grains "verre de spin" sur grains AFM induit une augmentation du pic

à basse température au détriment du pic à haute température. Ainsi, si ce pic à basse température est bien la conséquence de zone “verre de spin”, le rapport entre l’intensité des deux pics de la distribution peut alors donner une indication sur le pourcentage de grains présentant un état “verre de spin” de la couche AFM.

En perspective à ce travail et suite à des discussions avec nos collègues du laboratoire SPINTEC et au regard de certains de leurs résultats expérimentaux, il serait intéressant d’étudier l’influence du couplage entre grains AFM. En effet, de récentes études sur le système monocristallin $BiFeO_3$/FM ont mis en évidence une distribution bimodale des températures de blocage [91]. L’introduction de macrospins de type Heisenberg dans ce modèle permettrait l’étude de la distribution d’axe d’anisotropie des grains AFM et ainsi des effets de trainage magnétique observés sur les distributions de T_B [92]. En ce qui concerne l’étude du pic à basse température, un modèle plus sophistiqué comprenant des régions “verre de spin” uniquement à l’interface FM/AFM et non dans toute l’épaisseur de certains grains AFM devra être élaboré. Celui-ci pourrait, par exemple, comporter des petits grains de type “verre de spin” à certains endroits de l’interface FM/AFM. Ceux-ci serait alors couplés aux grains FM, et AFM sous-jacent. Il serait également intéressant d’étudier l’impact de différentes microstructures sur les propriétés magnétiques de ces bicouches et notamment sur les distributions de température de blocage.

Liste des communications scientifiques

Articles

• A. Maître, D. Ledue, F. Barbe, R. Patte, *Temperature effect in polycrystalline exchange-biased bilayers : A Monte Carlo study*, J. Appl. Phys. 111, 07D105 (2012)

• A. Maitre, D. Ledue, R. Patte, *Monte Carlo investigation of the interfacial roughness and temperature effects in coupled ferromagnetic/antiferromagnetic bilayers*, J. Magn. Magn. Mater. 324, 403 (2012)

• R. Lardé, J-M. Le Breton, A. Maître, D. Ledue, V. Pop, D. Givord, O. Isnard, and I. Chicinas, *Atomic Scale Investigation of SmCo5/Fe Nanocomposites : Influence of (Fe-Co) Interdiffusion on the Magnetic Properties,* sousmis (2012)

Conferences

Oraux

• D. Ledue, A. Maitre, F. Barbe and R. Patte, *Exchange biased bilayers : numerical investigation of temperature and microstructure effects*, Internaltional worshop on Magnetic Materials and Nano-Materials 2012, Boumerdes (Algeria) (09/04/2012 – 09/06/2012)

• D. Ledue, A. Maitre, F. Barbe and R. Patte, *Exchange biased bilayers : numerical investigation of temperature and microstructure effects*, Worshop on Surface and Interface in Nanomagnets, Poto (Portugal) (10/24/2012 – 10/26/2012)

• A. Maitre, D. Ledue, F. Barbe and R. Patte, *Temperature effect in polycrystalline exchange-biased bilayers : A Monte Carlo study*, The 56th annual conference on Magnetism and Magnetic Materials (MMM), Phoenix (USA) (10/20/2011 – 11/03/2011)

Posters

• A. Maitre, D. Ledue and R. Patte, *Influence de la structure et de la température sur l'anisotropie d'échange : étude par simulation Monte Carlo*, Colloque Louis Néel 2011, Brest (France) (09/21/2011 – 09/23/2011) (BEST POSTER PRICE)

• A. Maitre, D. Ledue and R. Patte, *Modeling of Co/IrMn bilayer : influence of roughness and temperature*, Nanomagnetism and spintronics colloquium, Grenoble (France) (11/24/2010 – 11/25/2010)

• A. Maitre, D. Ledue and R. Patte, *Monte Carlo simulation of hysteresis loops in Co/IrMn bilayers*, Summer School on "Computational Materials Sciences", San Sebastian (Spain) (06/28/2010 – 07/03/2010)

• A. Maitre, D. Ledue and R. Patte, *Modélisation de bicouche Co/IrMn : Transitions de phase et cycles d'hystérésis*, Colloque Louis Néel 2010, Selestat (France) (03/30/2010 – 04/02/2010)

Bibliographie

[1] W. H. Meiklejohn and C. P. Bean, "New magnetic anisotropy," Phys. Rev. **102**, 1413 (1956).

[2] W. C. Cain and M. H. Kryder, "Investigation of the exchange maechanism in $NiFe - TbCo$ bilayers," J. Appl. Phys. **67**, 5722 (1990).

[3] P. J. van der Zaag, R. M. Wolf, A. R. Ball, C. Bordel, L. F. Feiner, and R. Jungblut, "A study of the magnitude of exchange biasing in [111] Fe_3O_4/CoO bilayers," J. Magn. Magn. Mater. **148**, 346 (1995).

[4] T. Tokunaga, M. Taguchi, T. Fukami, Y. Nakaki, and K. Tsutsumi, "Study of interface wall energy in exchange-coupled double-layer film," J. Appl. Phys. **67**, 4417 (1990).

[5] M. Ali, P. Adie, C. H. Marrows, D. Greig, B. J. Hickey, and R. L. Stamps, "Exchange bias using a spin glass," Nat. Mater. **6**, 70 (2007).

[6] K. D. Usadel and U. Nowak, "Exchange bias for a ferromagnetic film coupled to a spin glass," Phys. Rev. B **80**, 014418 (2009).

[7] K. Olejnik, P. Wadley, J. A. Haigh, K. W. Edmonds, R. P. Campion, A. W. Rushforth, B. L. Gallagher, C. T. Foxon, T. Jungwirth, J. wunderlich, S. S. Dhesi, S. A. Cavill, G. van der Laan, and E. Arenholz, "Exchange bias in a ferromagnetic semiconductor induced by a ferromagnetic metal : $Fe/(Ga, Mn)As$ bilayer films studied by $XMCD$ measurements and $SQUID$ magnetometry," Phys. Rev. B **81**, 104402 (2010).

[8] V. Baltz, B. Rodmacq, A. Zafery, L. Lechevallier, and B. Dieny, "Bimodal distribution of blocking temperature in exchange-biased ferromagnetic/antiferromagnetic bilayers," Phys. Rev. B **81**, 052404 (2010).

[9] J. Nogués and I. K. Schuller, "Exchange bias," J. Magn.,Magn. Mater. **192**, 203 (1999).

[10] W. H. Meiklejohn, "Exchange anisotropy - a review," J. Appl. Phys. **33** (1962).

[11] L. Néel, "Du couplage ferro-antiferromagnétique dans les couches minces," Ann. Phys. **2**, 61 (1967).

[12] D. Mauri, H. C. Siegmann, P. S. Bagus, and E. Kay, "Simple model for thin ferromagnetic films exchange coupled to an antiferromagnetic substrate," J. Appl. Phys. **62**, 3047 (1987).

[13] Y. Irmy and S.-K. Ma, "Random-field instability of the ordered state of continuous symmetry," Phys. Rev. Lett. **35**, 1399 (1975).

[14] A. P. Malozemoff, "Random-field model of exchange anisotropy at rough ferromagnetic-antiferromagnetic interfaces," Phys. Rev. B **35**, 3679 (1987).

[15] K. Takano, R. H. Kodama, A. E. Berkowitz, W. Cao, and G. Thomas, "Interfacial uncompensated antiferromagnetic spins : Role in undirectional anisotropy in polycrystalline $Ni_{81}Fe_{19}/CoO$ bilayers," Phys. Rev. Lett. **79**, 1130 (1997).

[16] N. C. Koon, "Calculations of exchange bias in thin films with ferromagnetic/antiferromagnetic interfaces," Phys. Rev. Lett. **78**, 4865 (1997).

[17] T. C. Schultess and W. H. Butler, "Controlling atom-atom interaction at ultralow temperatures by dc electric fields," Phys. Rev. Lett. **81**, 4596 (1998).

[18] U. Nowak, K. D. Usadel, J. Keller, P. Miltényi, B. Beschoten, and G. Güntherodt, "Domain state model for exchange bias. i. theory," Phys. Rev. B **66**, 014430 (2002).

[19] K. A. Seu, H. Huang, J. F. Lesoine, H. D. Showman, W. F. Egelhoff, L. Gan, and A. C. Reilly, "Co layer thickness dependence of exchange biasing for $IrMn/Co$ and $FeMn/Co$," J. Appl. Phys. **93**, 6611 (2003).

[20] C. Leighton, M. R. Fitzsimmons, A. Hoffmann, J. Dura, C. F. Majkrzak, M. S. Lund, and I. K. Schuller, "Thickness-dependent coercive mechanisms in exchange-biased bilayers," Phys. Rev. B **65**, 064403 (2002).

[21] H. N. Fuke, K. Saito, Y. Kamiguchi, H. Iwasaki, and M. Sahashi, "Spin-valve giant magnetoresistive films with antiferromagnetic $Ir - Mn$ layers," J. Appl. Phys. **81**, 4004 (1997).

[22] A. J. Devasahayam, P. J. Sides, and M. H. Kryder, "Magnetic, temperature, and corrosion properties of the $NiFe/IrMn$ exchange couple," J. Appl. Phys. **83**, 7216 (1998).

[23] R. Jungblut, R. Coehoorn, M. T. Johnson, J. aan de Stegge, and A. Reinders, "Orientational dependence of the exchange biasing in molecular-beam-epitaxy-grown $Ni_{80}Fe_{20}/Fe_{50}Mn_{50}$ bilayers," J. Appl. Phys. **75**, 6659 (1994).

[24] M. F. Toney, M. G. Samant, T. Lin, and D. Mauri, "Thickness dependence of exchange bias and structure in $MnPt$ and $MnNi$ spin valves," Appl. Phys. Lett. **81**, 4565 (2002).

[25] A. L. Kobrinskii, A. M. Goldman, M. Varela, and S. J. Pennycook, "Thickness dependence of the exchange bias in epitaxial manganite bilayers," Phys. Rev. B **79**, 094405 (2009).

[26] K. Hoshino, R. Nakatani, H. Hoshiya, Y. Sugita, and S. Tsunashima, "Exchange coupling between antiferromagnetic $Mn - Ir$ and ferromagnetic ni-fe layers," Jpn. J. Appl. Phys. **35**, 607 (1996).

[27] R. Nakatani, H. Hoshiya, K. Hoshino, and Y. Sugita, "Relationship between film structure and exchange coupling in $Mn - Ir/Ni - Fe$ films," J. Magn. Magn. Mater. **173**, 321 (1997).

[28] J. van Driel, F. R. de Boer, K.-M. H. Lenssen, and R. Coehoorn, "Exchange biasing by $Ir_{19}Mn_{81}$: Dependence on temperature, microstructure and antiferromagnetic layer thickness," J. Appl. Phys. **88**, 975 (2000).

[29] Y.-T. Chen, S. U. Jen, Y. D. Yao, J.-M. Wu, J.-H. Liao, and T.-B. wu, "Exchange biasing observed in the $Co/Ir_{20}Mn_{80}$ system," J. Alloys Compd. **448**, 59–63 (2008).

[30] J. K. W. Yang, Y. Chen, T. huang, H. Duan, N. Thiyagarajah, H. K. Hui, S. H. Leong, and V. Ng, "Fabrication and characterization of bit-patterned media beyond 1.5 tbit/in^2," Nanotechnology **22**, 385301 (2011).

[31] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. N. Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, "Giant magnetoresistance of $(001)Fe/(001)Cr$ magnetic superlattices," Phys. Rev. Lett. **61**, 2472 (1988).

[32] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn, "Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange," Phys. Rev. B **39**, 4828 (1989).

[33] E. du Trémolet de Lacheisserie, *Magnétisme* (1999).

[34] J. R. Childress and R. E. Fontana, "Magnetic recording read head sensor technology," C. R. Physique **6**, 997 (2005).

[35] J-P. Nozières, "Têtes de lecture et mémoires magnétiques," Reflets de la physique **18**, 12 (2010).

[36] A. Schuhl and D. Lacour, "Spin dependent transport : GMR & TMR," C. R. Physique **6**, 945 (2005).

[37] R. C. Sousa and I. L. Prejbeanu, "Non-volatile magnetic random acces memories ($MRAM$)," C. R. Physique **6**, 1013 (2005).

[38] V. Cros, O. Boulle, J. Grollier, A. Hamzic, M. Munoz, L. Gustavo Pereira, and F. Petroff, "Spin transfer torque : a new method to excite or reverse a magnetization," C. R. Physique **6**, 956 (2005).

[39] J. Hutchby and M. Garner, "Assessment of the potential and maturity of selected emerging research memory technologies workshop and ERD/ERM working group meeting (2010)," http ://www.itrs.net/Links/2010ITRS/Home2010.htm.

[40] N. Metropolis, A. Rosenbluth, M. Rosenbluth, A. Teller, and E. Teller, "Equation of state calculations by fast computing machines," J. Chem. Phys. **21**, 1087 (1953).

[41] U. Nowak, R. W. Chantrell, and E. C. Kennedy, "Monte carlo simulation with time step quantification in terms of langevin dynamics," Phys. Rev. Lett. **84**, 163 (2000).

[42] E. Talbot, D. Ledue, and P.-E. Berche, "Magnetization reversal in amorphous Fe/Dy multilayers : A monte carlo study," J. Appl. Phys. **106**, 023901 (2009).

[43] T. J. Moran, J.M. Gallego, and I. K. Schuller, "Increased exchange anisotropy due to disorder at permalloy/CoO interfaces," J. Appl. Phys. **78**, 1887 (1995).

[44] D. Han, J. Zhu, and J. H. Judy, "$NiFe/NiO$ bilayers with high exchange cuopling and low coercive fields," J. Appl. Phys. **81**, 4996 (1997).

[45] D. Han, J. Zhu, J. H. Judy, and J. M. Sivertsen, "Texture and surface/interface topological effects on the exchange and coercive fields of $NiFe/NiO$ bilayers," J. Appl.Phys. **81**, 340 (1997).

[46] J. Nogués, D. Lederman, T. J. Moran, I. K. Schuller, and K. V. Rao, "Large exchange bias and its connection to interface structure in $FeF_2{-}Fe$ bilayers," Appl. Phys. Lett. **68**, 3186 (1996).

[47] J. X. Shen and M.T. Kief, "Exchange coupling between NiO and $NiFe$ thin films," J. Appl. Phys. **79**, 5008 (1996).

[48] C.-M. Park, K.-I. Min, and K. H. Shin, "Effects of surface topology and texture on exchange anisotropy in $NiFe/Cu/NiFe/FeMn$ spin valves," J. Appl. Phys. **79**, 6228 (1996).

[49] S. Soeya, M. Fuyama, S. Tadokoro, and T. Imagawa, "NiO structure-exchange anisotropy relation in the $Ni_{81}Fe_{19}/NiO$ films and thermal stability of its NiO film," J. Appl. Phys. **79**, 1604 (1996).

[50] W. F. Egelhoff, P. J. Chen C. J. Powell, M. D. Stiles, and R. D. McMichael, "Growth of giant magnetoresistance spin valves using indium as a surfactant," J. Appl. Phys. **79**, 2491 (1996).

[51] D. Lederman, J. Nogués, and I. K. Schuller, "Exchange anisotropy and the antiferromagnetic surface order parameter," Phys. Rev. B **56**, 2332 (1997).

[52] C. Leighton, J. Nogués, H. Suhl, and I. K. Schuller, "Competing interfacial exchange and zeeman energies in exchange biased bilayers," Phys. Rev. B **60**, 12837 (1999).

[53] S. F. Cheng, J.P. Teter, P. Lubitz, M. M. Miller, L. Hoines, J. J. Krebs, D. M. Schaefer, and G. A. Prinz, "Factors affecting performance of NiO biased giant magnetoresistance structures," J.Appl. Phys. **79**, 6234 (1996).

[54] T. P. A. Hase, B. D. Fulthorpe, S. B. Wilkins, B. K. Tanner, C. H. Marrows, and B. J. Hickey, "Weak magnetic moment on $IrMn$ exchange bias pinning layers," Appl. Phys. Lett. **79**, 985 (2001).

[55] S. Brück, G. Schütz, E. Goering, X. Ji, and K. M. Krishnan, "Uncompensated moments in the $MnPd/Fe$ exchange bias system," Phys. Rev. Lett. **101**, 126402 (2008).

[56] J. Spray and U. Nowak, "Exchange bias in ferromagnetic/antiferromagnetic bilayers with imperfect interfaces," J. Phys. D : Appl. Phys. **39**, 4536 (2006).

[57] J. Camarero, Y. Pennec, J. Vogel, M. Bonfim, S. Pizzini, F. Ernult, F.Fettar, F. Garcia, F. Lançon, L. Billard, B. Dieny, A. Tagliaferri, and N. B. Brookes, "Perpendicular interlayer coupling in $Ni_{80}Fe_{20}/NiO/Co$ trilayers," Phys. Rev. Lett. **91**, 027201 (2003).

[58] M. Ali, C. H. Marrows, M. Al-Jawad, B. J. Hickey, A. Misra, U. Nowak, and K. D. Usadel, "Antiferromagnetic layer thickness dependence of the $IrMn/Co$ exchange-bias system," Phys. Rev. B **68**, 214420 (2003).

[59] K. Chen, A.M. Ferrenberg, and D.P. Landau, "Static critical behavior of three-dimensional classical heisenberg models : A high-resolution monte carlo study," Phys. Rev. B **48**, 3249 (1993).

[60] D. Ledue, P.-E. Berche, and R. Patte, "Magnetisation switching in a ferromagnetic heisenberg nanoparticle with uniaxial anisotropy : a monte carlo investigation," Physica B **348** (2004).

[61] K. Nishioka, C. Hou, H. Fujiwara, and R. D. Metzer, "Grain size effect on ferro-antiferromagnetic coupling of $NiFe/FeMn$ systems," J. Appl. Phys. **80**, 4528 (1996).

[62] D. Choo, R. W. Chantrell, R. Lamberton, A. Johnston, and K. O'Grady, "A model of the magnetic properties of coupled ferromagnetic/antiferromagnetic bilayers," J. Appl. Phys. **101**, 09E521 (2007).

[63] G. Vallejo-Fernandez, L. E. Fernandez-Outon, and K. O'Grady, "Antiferromagnetic grain volume effects in metallic polycrystalline exchange bias systems," J. Phys. D : Appl. Phys. **41**, 112001 (2008).

[64] K. O'Grady, L. E. Fernandez-Outon, and G. Vallejo-Fernandez, "A new paradigm for exchange bias in polycrystalline thin films," J. Magn. Magn. Mater. **322**, 883 (2010).

[65] A. Kohn, J. Dean, A. Kovacs, A. Zeltser, M. J. Carey, D. Geiger, G. Hrkac, T. Schrefl, and D. Allwood, "Exchange-bias in armophous ferromagnetic and polycrystalline antiferromagnetic bilayers : Strucural study and micromagnetic modeling," J. Appl. Phys. **109**, 083924 (2011).

[66] H. Uyama, Y. Otani, K. Fukamichi, O. Kitakami, Y. Shimada, and J.-I. Echigoya, "Effect of antiferromagnetic grain size on exchange-coupling field of $Cr_{70}Al_{30}/Fe_{19}Ni_{81}$ bilayers," Appl. Phys. Lett. **71**, 1258 (1997).

[67] A. Bollero, V. Baltz, B. Rodmacq, B. Dieny, S. Landis, and J. Sort, "Out-of-plan exchange bias in $[Pt/Co] - IrMn$ bilayers sputtered on prepaterned nanostructures," Appl. Phys. Lett. **89**, 152502 (2006).

[68] C. Hou, H. Fujiwara, K. Zhang, A. Tanaka, and Y. Shimizu, "Temperature dependence of the exchange-bias field of ferromagnetic layers coupled with antiferromagnetic layers," Phys. Rev. B **63**, 024411 (2000).

[69] H. Xi, "Theoretical study of the blocking temperature in polycrystalline exchange biased bilayers," J. Magn. Magn. Mater. **288**, 66 (2005).

[70] X. Y. Lang, W. T. Zheng, and Q. Jiang, "Dependence of the blocking temperature in exchange biased ferromagnetic/antiferromagnetic bilayers on the thickness of the antiferromagnetic layer," Nanotechnology **18**, 155701 (2007).

[71] V. Baltz, G. Gaudin, P. Somani, and B. Dieny, "Influence of edges on the exchange bias properties of ferromagnetic/antiferromagnetic nanodots," Appl. Phys. Lett. **96**, 262505 (2010).

[72] G. Vallejo-Fernandez, B. Kaeswurm, L. E. Fernandez-Outon, and K. O'Grady, "Effect of the ferromagnetic layer thickness on the blocking temperature in $IrMn/CoFe$ exchange couples," IEEE Trans. Magn. **44**, 2835 (2008).

[73] L. E. Fernandez-Outon, G. Vallejo-Fernandez, S. Manzoor, B. Hillebrands, and K. O'Grady, "Interfacial spin order in exchange biased systems," J. Appl. Phys. **104**, 093907 (2008).

[74] G. Vallejo-Fernandez and J. N. Chapman, "Size effects in submicron exchange bias square elements," Appl. Phys. Lett. **94**, 262508 (2009).

[75] G. Vallejo-Fernandez and J. N. Chapman, "Thermal stability of exchange bias nanostructures," J. Appl. Phys. **107**, 09D704 (2010).

[76] G. Vallejo-Fernandez, T. Deakin, K. O'Grady, S. Oh, Q. Leng, and M. Pakala, "Measurement of the antiferromagnet activity in exchange bias systems," J. Appl. Phys. **107**, 09D709 (2010).

[77] G. Vallejo-Fernandez, N. P. Aley, J. N. Chapman, and K. O'Grady, "Measurement of the attempt frequency in antiferromagnets," Appl. Phys. Lett. **97**, 222505 (2010).

[78] E. Fulcomer and S. H. Charap, "Thermal fluctuation aftereffect model for some systems with ferromagnetic-antiferromagnetic coupling," J. Appl. Phys. **43**, 4190 (1972).

[79] T. Jourdan, A. Marty, and F. Lançon, "Multiscale method for heisenberg spin simulations," Phys. Rev. B **77**, 224428 (2008).

[80] L. Néel, "Théorie du trainage magnétique des ferromagnétiques en grains fins avec applications aux terres cuites," Ann. Géophys. **5**, 99 (1949).

[81] D. Ledue, "Discussion privée," .

[82] F. Barbe, L. Decker, D. Jeulin, and G. Cailletaud, "Intergranular and intragranular behavior of polycrystalline aggregates. part 1 : F.e. model," Int J Plasticity **17**, 513 (2001).

[83] R. Lebensohn, M. Montagnat, P. Mansuy, P. Duval, J. Meysonnier, and A. Philip, "Modeling viscoplastic behavior and heterrogeneous intracrystalline deformation of columnar ice polycrystals," Acta Mater **57**, 1405 (2009).

[84] M. G. Mecozzi, J. Sietsma, and S. van der Swaag, "Analysis of $\gamma \rightarrow \alpha$ transformation in a Nb microalloyed $C - Mn$ steel by phase field modeling," Acta Mater **54**, 1431 (2006).

[85] R. Quey, P.R. Dawson, and F. Barbe, "Large-scale $3D$ random polycrystals for the finite element method : Generation, meshing and remeshing," Comput. Methods Appl. Mech. Engrg. **200**, 1729 (2011).

[86] S. Soeya, T. Imagawa, K. Mitsuoka, and S. Narishige, "Distribution of blocking temperature in bilayered $Ni_{81}Fe_{19}/NiO$ films," J. Appl. Phys. **76**, 5356 (1994).

[87] L. Lombard, E. Gapihan, R. C. Sousa, Y. Dahmane, and Y. Conraux et al., "$IrMn$ and $FeMn$ blocking temperature dependence on heating pulse width," J. Appl. Phys. **107**, 09D728 (2010).

[88] D. Kumar and D. Kaur, "Antiferromagnetic thickness dependence of blocking temperature in $SFMO/SFWO$ multilayer," Mater. Chem. Phys. **129**, 802 (2011).

[89] V. Baltz, J. Sort, S. Landis, B. Rodmacq, and B. Dieny.

[90] V. Baltz and B. Dieny, "Influence of Pt as Mn diffusion barrier on the distribution of blocking temperature in $Co/(Pt)/IrMn$ exchange biased layers," J. Appl. Phys. **109**, 066102 (2011).

[91] C. K. Safeer, M. Chamfrault, J. Allibe, C. Carretero, C. Deranlot, E. Jacquet, J.-F. Jacquot, M. Bibes, A. Barthélémy, B. Dieny, H. Béa, and V. Baltz, "Anisotropic bimodal distribution of blocking temperature with multiferroic $BiFeO_3$ epitaxial thin films," Appl. Phys. Lett. **100**, 072402 (2012).

[92] A. Hoffman, "Symmetry driven irreversibilities at ferromagnetic-antiferromagnetic interfaces," Phys. Rev. Lett. **93**, 097203 (2004).