



**HAL**  
open science

# Études des propriétés magnétiques de nanofils de cobalt monocristallins en réseaux ultra-denses

Alexandre Pierrot

► **To cite this version:**

Alexandre Pierrot. Études des propriétés magnétiques de nanofils de cobalt monocristallins en réseaux ultra-denses. Micro et nanotechnologies/Microélectronique. INSA de Toulouse, 2019. Français. NNT : 2019ISAT0019 . tel-02443241

**HAL Id: tel-02443241**

**<https://theses.hal.science/tel-02443241>**

Submitted on 17 Jan 2020

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



# THÈSE

## En vue de l'obtention du DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par l'Institut National des Sciences Appliquées de  
Toulouse

---

Présentée et soutenue par

**Alexandre PIERROT**

Le 22 janvier 2019

**Études des propriétés magnétiques de nanofils de cobalt  
monocristallins en réseaux ultra-denses**

---

Ecole doctorale : **SDM - SCIENCES DE LA MATIERE - Toulouse**

Spécialité : **Nanophysique**

Unité de recherche :

**LPCNO-IRSAMC - Laboratoire de Physique et Chimie des Nano-Objets**

Thèse dirigée par

**Marc RESPAUD et Thomas BLON**

Jury

**M. Thomas HAUET**, Rapporteur

**M. Olivier FRUCHART**, Rapporteur

**Mme Fanny BERON**, Examineur

**M. Luc PIRAUX**, Examineur

**M. Etienne SNOECK**, Examineur

**M. Marc RESPAUD**, Directeur de thèse

**M. Thomas BLON**, Co-directeur de thèse







# Remerciements

Du fait de l'effort commun requis pour mener une thèse de doctorat, je tiens tout d'abord à remercier mes directeurs de thèse Thomas Blon et Marc Respaud qui m'ont accompagné, aidé et supporté durant ces trois (voire quatre) années. Au-delà de ces remerciements formels, j'aimerais souligner ma reconnaissance envers Thomas pour m'avoir permis de participer au monde de la recherche mais surtout pour la considération et la confiance envers mon travail. Ce travail étant issu d'une collaboration avec l'équipe NCO, je tiens également à remercier Katerina Soulantica qui n'a pas manqué de me soutenir aux bons moments. Merci également à Christophe Gatel pour la confiance accordée à mon travail sur un projet annexe à ma thèse.

Je remercie tous les membres du jury qui sont venu de loin pour certain en particulier Luc Piraux qui a traversé la France et Fanny Béron qui elle a traversé l'Atlantique, mais également Thomas Hauet et Olivier Fruchart, rapporteurs de ma thèse et Etienne Snoeck qui a accepté de présider ce jury. Je suis particulièrement reconnaissant envers Fanny Béron qui m'a accueilli dans son laboratoire, au Brésil, m'a formé aux mesures FORC et qui a eu un regard critique sincère et très constructif sur nos recherches. Cette collaboration a permis d'adresser finement les objectifs de la thèse.

Pour tout le soutien que j'ai pu recevoir durant cette thèse, je remercie chaleureusement Laurent Peres qui a été présent autant dans les moments difficiles que dans les meilleurs, faisant preuve d'un esprit critique aiguisé et d'une amitié des plus précieuses. Un grand merci également à tous ceux qui m'ont accompagné, Nico Mille et Nico Hallali, avec qui nous avons partagé notre bureau, mais également Pierre Moritz, Emanuel Courtade, Suhail Usmani, Arnaud Hillion, Stéphane Faure, Seb Pinaud, Mathieu Thene, Deliang Yi et les chefs Julian Carrey et sa bonne humeur permanente, Benjamin Lassagne avec qui nous partageons une profonde passion pour la physique, Guillaume Viau d'un naturel affable avec qui les discussions sont toujours bienvenues et Lise-Marie Lacroix faisant preuve d'une rare finesse d'esprit dans la recherche et d'écoute lors de moments difficiles. Je tiens également à remercier tous ceux avec qui j'ai interagi lors de ma thèse, Simon Cayez, Cathy Crouzet, Francis Chouzenoux, Nuno, Francisco Bonilla, Marta Estrader ainsi que tous ceux que j'oublie ici. Merci également à tous mes amis extérieurs au monde de la recherche ainsi qu'à ma famille qui m'ont permis de rester connecté aux plaisirs de la vie et ainsi conserver un équilibre durant ces trois années. Enfin je ne peux passer sous silence le soutien et l'amour que m'a apporté Barbara Lepage depuis notre rencontre, merci à toi du fond du cœur.



## Résumé

Les travaux réalisés lors de cette thèse ont pour but la caractérisation magnétique et structurale de réseaux ultra-denses de nanofils monocristallins de cobalt de structure *hcp* avec l'axe *c* parallèle à l'axe des nanofils. Ces réseaux sont obtenus par une méthode physico-chimique dite croissance hybride. La partie physique consiste en l'élaboration de film mince de platine monocristallin épitaxié sur un substrat de saphir. Ce film mince de platine sert ensuite de support à la synthèse organométallique des nanofils de cobalt dont la nucléation s'opère sur le film de platine. Le nanomatériau obtenu est un réseau de nanofils monocristallins de Co verticaux épitaxiés sur le film de platine, de diamètres de 6 à 15 nm et enrobés d'une fine couche de ligands organiques permettant de les séparer chimiquement et physiquement. La cristallinité des nanofils induit une forte anisotropie perpendiculaire au réseau faisant émerger des propriétés physiques qui pourraient répondre au cahier des charges pour constituer des média magnétiques à haute capacité.

Le manuscrit s'organise en quatre parties. Il convient dans un premier temps d'exposer une revue de la littérature ainsi que les modèles théoriques et analytiques décrivant le comportement magnétique d'un nano-cylindre isolé puis d'un réseau hexagonal de nano-cylindres. La méthode de magnéto-métrie utilisée pour caractériser ces réseaux est appelée méthode FORC (*First Order Reversal Curves*). La mesure et le traitement associé permettent de tracer des diagrammes dits FORC dans lesquels peuvent être déduits les caractéristiques magnétiques des nanofils et leurs interactions. La lecture de ces diagrammes n'étant pas directe, le chapitre II est consacré à la description de la méthode FORC appliquée à des assemblées d'hystérons. De par sa reproductibilité, la synthèse physico-chimique est un point critique de cette étude qui est détaillée dans le chapitre III. La magnéto-métrie FORC appliquée à deux familles d'échantillons synthétisés est exposée dans le chapitre IV. Cette investigation a demandé d'être soutenue par des simulations micromagnétiques afin d'appuyer les hypothèses formulées lors de l'interprétation des diagrammes FORC mesurés. Il apparaît ainsi une famille en très bon accord avec les modèles théoriques exposés dans le chapitre I, puis une seconde famille dont la description précise nécessite l'ajout d'une interaction magnétisante entre nanofils en plus de l'interaction magnétostatique.

**Mots clés :** nanofils, retournement de l'aimantation, réseau de nanofils magnétiques, microstructures de l'aimantation, domaines magnétiques, FORC, comportement collectif, modèle de Preisach-Krasnoselskii, processus irréversibles, simulations micromagnétiques.



# Abstract

The work carried out during this thesis aims at the magnetic and structural studies of ultra-dense arrays of single crystalline cobalt *hcp* nanowires with the *c* axis parallel to the wires axis. These arrays are obtained by a physico-chemical method called hybrid growth. The physical part aims the epitaxial growth of a single crystalline platinum thin film on a sapphire substrate. This substrate is introduced into the organometallic synthesis of cobalt nanowires that nucleates on platinum. The resulting nanomaterial is an array of vertical Co nanowires epitaxially grown on the platinum film, with diameters of 6 to 15 nm and coated with organic ligands. The crystallinity of the nanowires induces a strong anisotropy perpendicular to the substrate, giving rise to physical properties that could meet the specifications to constitute high density magnetic media.

The manuscript is organized in four parts. First, a review of the literature as well as theoretical and analytical models describing the behavior of isolated magnetic nano-cylinders and dense arrays of nano-cylinders is presented. The magnetometry method used to characterize these arrays is called the FORC (First Order Reversal Curves) method. This measurement and analysis lead to the plot of FORC diagrams which contain the magnetic properties of nanowires and their interactions. The reading of these FORC diagrams being undirect, the chapter II is devoted to the description of the FORC method applied to assemblies of hysterons. Because of its reproducibility, the physico-chemical synthesis is a critical point of this study which is detailed in Chapter III. FORC magnetometry applied to two families of synthesized samples is described in Chapter IV. This investigation has required numerous micromagnetic simulations to support the assumptions made in the interpretation of FORC diagrams. This deep analysis reveals a first family in very good agreement with the theoretical models exposed in chapter I, and a second family for which the precise description requires the addition of a magnetizing interaction between nanowires in addition to the magnetostatic one.

**Key words:** nanowires, magnetization reversal, magnetic nanowires array, magnetic microstructures, magnetic domains, FORC, collective behavior, Preisach-Krasnoselskii model, irreversible processes, micromagnetic simulations.



## Résumé vulgarisé

Les nanotechnologies sont un champ de recherche vaste et encore jeune. Pourtant, à une époque où la miniaturisation est la clé de l'élaboration de nombre d'objets technologiques, il est nécessaire d'approfondir ce champ de connaissance. Cette thèse vise la description d'assemblées très denses de nano-aimants cylindriques appelés nanofils. Ces nanofils sont positionnés et dressés verticalement en un réseau hexagonal plan, appelé réseau ultra-dense de nanofils. Comme tout aimant, ces nanofils magnétiques rayonnent un champ de fuite occasionnant ainsi des interactions. Ces interactions font émerger des comportements de groupe qu'il est nécessaire de connaître du point de vue applicatif, dans l'optique d'exploiter ces réseaux comme des mémoires magnétiques. L'investigation menée lors de cette thèse est ici résumée en quatre parties. Les chapitres I et II portent sur la théorie nécessaire à la compréhension et l'interprétation des mesures magnétiques présentées au chapitre IV, à la suite de la description du processus de fabrication et de la structure des réseaux de nanofils dans le chapitre III.



# Table des matières

Remerciements .....	3
Résumé .....	5
Abstract .....	7
Résumé vulgarisé.....	9
Table des matières .....	10
Introduction générale.....	15
<b>Chapitre I : Nanofil : de l'individuel à l'assemblée.....</b>	<b>19</b>
I. Nano-aimants individuels.....	19
A. L'ellipsoïde.....	19
1. Introduction.....	19
2. Energies magnétiques .....	19
a) L'anisotropie de forme .....	19
b) L'anisotropie magnétocristalline.....	22
c) Energie Zeeman.....	24
d) Autres énergies magnétiques.....	24
3. Hystérésis magnétique d'un ellipsoïde ferromagnétique uniformément aimanté .....	26
a) Modèle de Stoner-Wohlfarth (SW) .....	26
b) Retournement thermiquement assisté: formule de Sharrock.....	29
4. Modes de retournement de l'aimantation .....	31
a) Introduction.....	31
b) Rayon critique : $RC$ .....	32
c) Retournement délocalisé : le mode cohérent.....	34
d) Retournement délocalisé : le curling.....	36
5. Monodomaine ou multidomaine ? .....	36
a) Rayon critique : monodomaine, vortex et multidomaine.....	36
b) Exemple de mesures locales dans des nanoparticules de configurations magnétiques non uniformes .....	39
B. Magnétisme d'un nanofil .....	46
1. Champ dipolaire d'un nanofil.....	46
2. Mode de retournement d'un nanofil .....	47
a) Travaux théoriques.....	48
b) Modélisations micromagnétiques.....	48
c) Mesures et expériences .....	49
II. Assemblée de nanofils.....	49

A.	Interaction en champ moyen .....	49
1.	Description phénoménologique .....	49
2.	Calcul analytique de $H_{int, zz}$ et $N_{int, zz}$ .....	51
3.	Simulations micromagnétiques .....	54
B.	Influence des interactions dipolaires sur la coercivité d'un réseau de nanofils .....	55
1.	Coercivité et champ moyen .....	55
2.	Simulations micromagnétiques de la coercivité de réseaux .....	56
C.	Distribution en champ de retournement .....	59
<b>Chapitre II : Méthode et analyse FORC</b> .....		63
I.	Modèle de Preisach-Krasnoselskii .....	63
II.	Diagramme FORC .....	66
III.	Signatures FORC d'assemblées d'hystérons .....	67
A.	FORC linéaire : champ d'interaction homogène .....	67
B.	FORC linéaire : champ d'interaction de type Ising .....	69
C.	Distribution de champ de retournement sans interaction .....	70
D.	Distribution de champ de retournement et interaction .....	71
1.	Variation du champ coercitif d'une assemblée plongée dans un champ moyen et dispersée en champ de retournement .....	71
2.	Variation de la dispersion en champ de retournement pour une assemblée plongée dans un champ moyen .....	71
3.	Variation de $H_{int}$ pour une assemblée plongée dans un champ moyen et dispersée en champ de retournement .....	77
4.	Variation du champ coercitif d'une assemblée en interaction via un champ de type Ising et dispersée en champ de retournement .....	78
5.	Variation de la dispersion en champ de retournement pour une assemblée en interaction via un champ de type Ising .....	79
6.	Variation de $H_{int}$ pour une assemblée en interaction via un champ de type Ising et dispersée en champ de retournement .....	81
7.	Conclusion : caractéristiques majeures des diagrammes FORC .....	85
<b>Chapitre III : Elaboration de réseaux ultra-denses auto-organisés de nanofils de Co monocristallins <i>hcp</i></b> .....		87
I.	Principes généraux de la croissance de nanofils de Co monocristallins <i>hcp</i> épitaxiés sur Pt(111) .....	87
A.	Synthèse de nanofils de cobalt monocristallins .....	87
B.	Effet des ligands et des solvants .....	90
C.	Elaboration de substrats métalliques .....	91
D.	Protection des échantillons .....	93
II.	Caractérisation des réseaux obtenus par synthèse organométallique .....	94
A.	Réseaux synthétisés dans l'anisole .....	94

B.	Réseaux synthétisés dans le toluène.....	99
1.	Influence du temps de la réaction.....	103
2.	Changement de ligands.....	104
III.	Conclusion .....	106
	<b>Chapitre IV : Propriétés magnétiques des réseaux ultra-denses de nanofils de cobalt</b> .....	109
I.	Réseaux synthétisés dans l'anisole .....	110
A.	Rappels du système.....	110
1.	Cycles M(H).....	110
B.	Mesures et diagrammes FORC .....	116
C.	Conclusion sur les réseaux synthétisés dans l'anisole .....	121
II.	Réseaux synthétisés dans le toluène.....	121
A.	Rappels du système.....	121
B.	Cycles M(H).....	123
C.	Mesures et diagrammes FORC .....	125
III.	Simulations micromagnétiques de FORC .....	131
A.	Système anisole.....	132
B.	Système toluène.....	134
1.	Structure des réseaux simulés.....	135
2.	Diagramme FORC d'un réseau de nanofils dispersés en champ d'anisotropie et couplés uniquement par un champ magnétostatique .....	137
3.	Récapitulatif des simulations des réseaux de nanofils couplé par un champ dipolaire .....	139
4.	Diagramme FORC d'un réseau homogène de nanofils, couplés par interactions dipolaire et d'échange vectorisée par un pseudo-film sous-jacent aux nanofils. ....	142
5.	Diagramme FORC d'un réseau de nanofils non dispersés couplés par interaction dipolaire et interaction d'échange, vectorisée par un pseudo-film formé par des pieds coniques de nanofils. ....	147
6.	Conclusions concernant le diagramme FORC mesuré à 300K.....	154
7.	Evolution en température des diagrammes FORC mesurés .....	155
IV.	Discussion générale comparative.....	157
	Conclusion .....	159
	Perspectives .....	163
	Références.....	167
	Annexe 1. Modèle de Stoner-Wohlfarth.....	177
	Annexe 2. Technique d'holographie magnétique off-axis .....	181
	Annexe 3. Calcul du taux de compacité d'un réseau hexagonal 2D.....	183
	Annexe 4. Calcul général du champ dipolaire rayonné selon l'axe d'un cylindre uniformément aimanté .....	185

Annexe 5. Calcul du facteur de désaimantation d'un réseau hexagonal compact de nanofils .....	189
Annexe 6. Simulations micromagnétiques OOMMF .....	193
Annexe 7. Procédure d'acquisition et de traitement d'un jeu de FORC .....	195

# Introduction générale

Les exigences actuelles des dispositifs demandent une miniaturisation des composants qui s'inscrit pleinement dans le domaine des nanomatériaux. Ainsi, les réseaux ultra-denses de nanofils à anisotropie perpendiculaire sont de bons candidats pour les médias magnétiques à haute capacité. De par leur forme et leur densité, les nanofils sont soumis à de fortes interactions dipolaires. Caractériser leurs effets est un problème qui doit être résolu dans l'optique de rendre ces réseaux fonctionnels et faciliter leur intégration dans des dispositifs. Pour atteindre les propriétés magnétiques globales nécessaires à l'élaboration de dispositifs, le premier prérequis réside dans la connaissance des propriétés du nanofil isolé. Pour autant, le comportement d'un réseau ne peut être résumé seulement à la somme des contributions des individus qui le compose. Et pour cause, certaines propriétés du groupe émergent sans qu'aucun des individus qui composent le réseau n'en soit la cause directe. L'investigation du champ d'interaction et de sa dispersion, mais aussi des propriétés individuelles telles que le champ de retournement de chacun des nanofils, le mode de retournement, anisotropie, etc, et de leur dispersion conduit à la caractérisation d'un réseau de nanocylindres magnétiques.

Cette thèse est la prolongation de développements et d'améliorations de la synthèse chimique de réseaux ultra-denses de nanofils de cobalt ainsi que des méthodes de magnétométrie associées mis en œuvre dans le Laboratoire de Physique et de Chimie des Nano-Objets (LPCNO) [1],[2]. Ces développements ont permis d'obtenir des paramètres de synthèses reproductibles et de mettre en place un protocole de mesure d'échantillons purement métalliques, c'est-à-dire non oxydés. En outre, les caractérisations structurales permettant la connaissance fine des échantillons obtenus, ainsi que les différentes possibilités de croissance sur support et en solution ont été explorées antérieurement à cette thèse. Ainsi les objectifs initiaux de ce travail de thèse étaient de caractériser finement les propriétés magnétiques, notamment la distribution en champ de retournement des échantillons obtenus mais également le champ d'interaction. Pour ce faire, les outils mis en place ont été les simulations micromagnétiques et le développement de magnétométrie fine par la méthode FORC (*First-Order Reversal Curves*). Du point de vue de la synthèse, les objectifs étaient de moduler les caractéristiques structurales des nanofils afin de voir varier le champ d'interaction en vigueur dans les réseaux.

Un tandem entre l'équipe Nanostructures et Chimie Organométallique et l'équipe de Nanomagnétisme du LPCNO a permis la synthèse chimique de réseaux auto-organisés de nanofils monocristallins de Co *hcp*. Ainsi, le contrôle la cristallinité, avec l'axe *c* de la structure *hcp* parallèle à l'axe des nanofils, et un rapport d'aspect élevé (rapport hauteur/diamètre > 10) permettent l'obtention d'une forte anisotropie magnétique. Un diamètre proche de la longueur d'échange et de la largeur de paroi de domaine implique un retournement de l'aimantation cohérent allant de pair avec de forts champs coercitifs. Cet ensemble de caractéristiques induit un cadre théorique approprié développé dans le chapitre I. Il sera également sujet du cycle d'hystérésis de réseaux de nanofils. En effet, la croissance épitaxiale en solution conduit à une auto-organisation des nanofils en réseau 2D avec une remarquable régularité. Les interactions, *via* le champ dipolaire<sup>1</sup>, ainsi que le caractère singulier de chacun des nanofils sont à l'origine du comportement macroscopique du réseau. Leur caractérisation permet d'interpréter le cycle d'hystérésis et c'est dans ce cadre qu'est bâti le modèle théorique menant à sa description.

---

<sup>1</sup> Le champ rayonné par les nano-aimants

Dans le chapitre suivant, la méthode FORC<sup>1</sup> est détaillée. Le choix de consacrer un chapitre entier à la théorie des FORC est justifié par la difficulté de son interprétation et de la lecture des diagrammes qui en émerge. Les principes de cette théorie seront mis en lumière par une prospection, à l'aide d'exemples illustratifs extraits de simulations d'assemblées d'hystérons mathématiques. Ces simulations permettent de faire varier une à une chaque caractéristique (champ de retournement, dispersion, amplitude des interactions, etc) agissant sur le comportement global du réseau et d'en constater les effets sur le diagramme FORC. Également, les simulations hystérons évaluent la validité des méthodes d'extraction des grandeurs d'intérêt dans les diagrammes FORC, telle que la distribution en champ de retournement recherchée expérimentalement.

Le chapitre III est consacré à la description de la synthèse chimique, à l'élaboration des réseaux de nanofils et aux études structurales. Il est à noter que les nanofils obtenus par cette méthode sont monocristallins et épitaxiés sur un substrat de platine. Tout en restant général, les principes de la synthèse chimique seront exposés de façon à faire connaître au lecteur les enjeux et les difficultés rencontrées. La synthèse est de type *bottom up*. Elle utilise un mélange homogène composé d'une amine, d'un acide et d'un précurseur de cobalt. La croissance s'effectue par décomposition du précurseur de cobalt. Cette fonction est assurée par les ligands qui ont aussi pour rôle de contrôler la forme résultante des objets. Afin de profiter pleinement des propriétés magnétiques du cobalt *hcp*, l'axe *c* de la maille cristalline doit être parallèle à la direction de facile aimantation. Pour ce faire, un film mince de platine (111) de qualité épitaxiale est déposé sur les substrats de saphir  $Al_2O_3(0001)$ . La croissance des fils de cobalt *hcp* par synthèse organo-métallique en phase liquide est ensuite épitaxiale et permet d'obtenir l'axe *c* de la structure *hcp* parallèle à l'axe des nanofils. Ceci permet de joindre l'anisotropie magnétocristalline à l'anisotropie de forme dans une même contribution d'anisotropie effective uniaxiale. Désormais, l'affinement des paramètres de cette synthèse l'ont rendu reproductible. Le défi auquel font face les chimistes expérimentateurs est de maîtriser certains aspects de la structure de ces réseaux, par exemple la densité surfacique, en jouant sur les distances interfils ou sur le diamètre des nanofils. Pour ce faire, différents réactifs (ligands et solvants) ont été utilisés. Les résultats des caractérisations réalisées sur ces échantillons sont exposés dans ce chapitre. Suite à ces caractérisations, deux familles d'échantillons modèles ont été identifiés. Du point de vue de la synthèse, ils diffèrent par l'utilisation de l'anisole comme solvant pour la première famille et du toluène pour la seconde.

Le dernier chapitre présente les études avancées de magnétométrie effectuée, entre 5K et 300K, sur les systèmes modèles. Les propriétés magnétiques de chaque famille seront analysées selon le cadre de la théorie FORC. Dans le contexte de ces mesures magnétiques, le diagramme FORC est représentatif des événements irréversibles ayant lieu durant le retournement de l'aimantation du réseau. L'interprétation d'un tel diagramme s'appuie sur des simulations, en considérant les données géométriques établis grâce aux études structurales. Les synthèses dans l'anisole produisent des réseaux de nanofils descriptibles par un formalisme de champ moyen à chaque température mesurée, faisant de ces mesures un cas illustratif des modèles développés durant le chapitre I. La description de la seconde famille d'échantillons, synthétisés dans le toluène, de par la complexité de leur comportement magnétique mesuré entre 100K et 300K, demande la mise en œuvre de simulations micromagnétiques de diagrammes FORC. Le parallèle entre mesure et simulation permet ainsi l'identification des phénomènes à l'origine des signatures présentes dans les diagrammes. En dessous de 100K, les diagrammes FORC changent d'aspect, passant d'une forme linéaire à haute température à une forme dite « wishbone » à basse température, indiquant un changement de comportement

---

<sup>1</sup> La méthode FORC consiste en la classification des caractéristiques individuelles de chacune des entités simulées ou mesurées. En présence d'interactions le diagramme FORC est représentatif du retournement de l'assemblée.

collectif. Le chapitre détaille en particulier comment le comportement magnétique est influencé par la présence d'une pseudo-couche de Co à l'interface entre le film de platine et le réseau de nanofils.



# Nanofil : de l'individuel à l'assemblée

## I. Nano-aimants individuels

### A. L'ellipsoïde

#### 1. Introduction

D'un point de vue théorique, l'ellipsoïde est intéressant dans le domaine du nanomagnétisme de par la simplicité de son comportement magnétique. Pourtant, la géométrie ellipsoïdale implique des manipulations mathématiques généralement peu commodes. La raison pour laquelle l'ellipsoïde est la clé de voûte du nanomagnétisme est l'uniformité de son champ démagnétisant interne. Notamment, Stoner et Wohlfarth ont basé leur célèbre théorie des mécanismes hystérétiques de particule unique sur cette propriété [3]. Ils ont décrit un mode de retournement de l'aimantation appelé le mode cohérent. Ce chapitre aborde, par la théorie de Stoner et Wohlfarth, le comportement de nanoparticules lors de leurs retournements et les limites d'application de cette théorie.

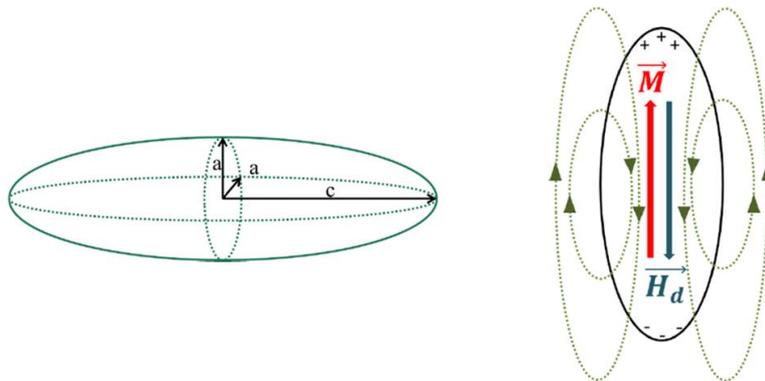


Figure 1.1 : à gauche : représentation schématique d'un ellipsoïde de révolution prolate. A droite : Champ dipolaire interne, dit démagnétisant  $H_d$ , d'un ellipsoïde uniformément aimanté avec une amplitude  $\vec{M}$ . Les signes + et - représentent les pseudo-charges dues aux interfaces à l'origine de l'appellation dipôle.

#### 2. Energies magnétiques

##### a) L'anisotropie de forme

Si un objet est sphérique, alors sa forme est dite isotrope. Toute déviation à la sphéricité induira des directions préférentielles pour l'aimantation. L'action dipolaire dépend de la distribution de l'aimantation et des dimensions de l'échantillon. Elle peut être formulée en termes de champ démagnétisant représenté par la formule :

$$\boxed{\vec{H}_{dip} = -\vec{N}_d \vec{M}_S} \quad (1.1)$$

Le facteur de désaimantation  $\vec{N}_d$  peut être formulé par un tenseur diagonal [4]:

$$\vec{N}_d = \begin{bmatrix} N_a & 0 & 0 \\ 0 & N_b & 0 \\ 0 & 0 & N_c \end{bmatrix} \quad (1.2)$$

Avec la contrainte :

$$N_a + N_b + N_c = 1 \quad (1.3)$$

Des lois analytiques ont été établies pour déterminer  $\vec{N}_d$  pour un ellipsoïde d'aimantation uniforme [4]–[6]. L'énergie sera minimisée suivant la(es) direction(s) possédant le facteur démagnétisant minimum, cela conduit à l'anisotropie dite de forme.

Pour un ellipsoïde prolate, c'est-à-dire lorsque  $c > a = b$ , et avec le rapport d'aspect  $\beta = \frac{c}{a}$  :

$$N_a = N_b = \frac{\beta}{2(\beta^2 - 1)} \times \left[ \beta - \frac{1}{2\sqrt{(\beta^2 - 1)}} \times \ln \left( \frac{\beta + \sqrt{(\beta^2 - 1)}}{\beta - \sqrt{(\beta^2 - 1)}} \right) \right] \quad (1.4)$$

$$N_c = \frac{1}{(\beta^2 - 1)} \times \left[ \frac{\beta}{2\sqrt{(\beta^2 - 1)}} \times \ln \left( \frac{\beta + \sqrt{(\beta^2 - 1)}}{\beta - \sqrt{(\beta^2 - 1)}} \right) - 1 \right] \quad (1.5)$$

Ces relations sont représentées graphiquement Figure 1.2. Pour un cylindre prolate, lorsque le rapport d'aspect  $\beta$  devient grand ( $> 10$ ) l'approximation suivante peut être utilisée :

$$N_a = N_b = \frac{1}{2} \quad N_c = 0$$

L'aimantation aura donc tendance à s'aligner selon le grand axe d'un ellipsoïde prolate afin de minimiser l'énergie dipolaire.

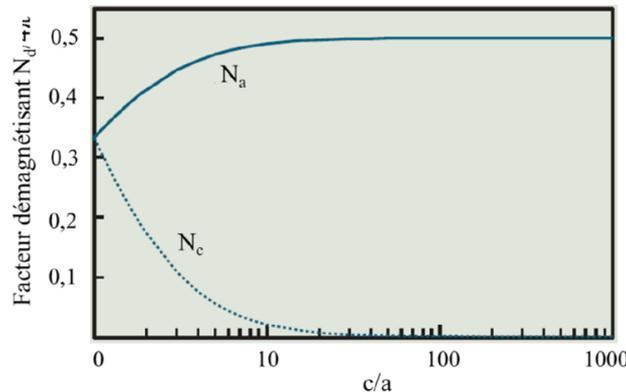


Figure 1.2 : dépendance des facteurs de désaimantation dans la direction perpendiculaire au grand axe avec  $N_a = N_b$ , et dans la direction parallèle au grand axe de l'ellipsoïde  $N_c$ , tracés en fonction du rapport d'aspect  $c/a$ , dans le cas d'un ellipsoïde prolate de révolution (issue de [5]).

A l'aide du système de coordonnées présenté sur la Figure 1.3, il est possible de calculer le champ d'anisotropie dû à la contribution de forme d'un ellipsoïde de volume  $V$ . L'anisotropie étant une densité d'énergie, le point de départ du calcul sera l'expression de l'énergie magnétique magnétostatique ou dipolaire:

$$E_D = -\frac{\mu_0}{2} \int_V (\vec{M} \cdot \vec{H}_d) d^3r \quad (1.6)$$

Avec  $\vec{M} = \begin{pmatrix} M_x \\ M_y \\ M_z \end{pmatrix}$  et  $\vec{H}_d = \begin{pmatrix} -N_a M_x \\ -N_b M_y \\ -N_c M_z \end{pmatrix}$ , soit  $\vec{M} = \begin{pmatrix} \cos \varphi \sin \theta M_S \\ \sin \varphi \sin \theta M_S \\ \cos \theta M_S \end{pmatrix}$ ,  $\vec{H}_d = \begin{pmatrix} -N_a \cos \varphi \sin \theta M_S \\ -N_b \sin \varphi \sin \theta M_S \\ -N_c \cos \theta M_S \end{pmatrix}$  et  $\mu_0$  la perméabilité magnétique du vide.

Ce qui permet de reformuler l'énergie dipolaire :

$$E_D = \frac{\mu_0}{2} \int_V (N_a M_x^2 + N_b M_y^2 + N_c M_z^2) d^3r$$

$$E_D = \frac{\mu_0}{2} (N_a M_x^2 + N_b M_y^2 + N_c M_z^2) V \quad (1.7)$$

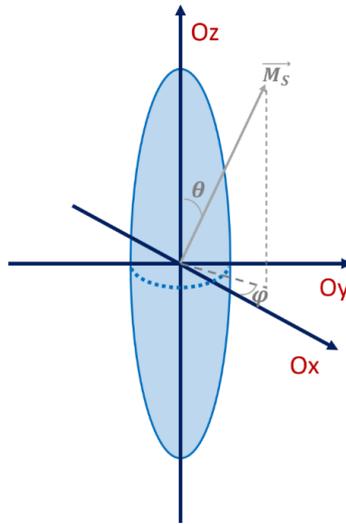


Figure 1.3 : système de coordonnées pour un ellipsoïde uniformément aimanté.

$$E_D = \frac{1}{2} \mu_0 M_S^2 (N_a \sin^2 \theta \cos^2 \varphi + N_b \sin^2 \theta \sin^2 \varphi + N_c \cos^2 \theta) V \quad (1.8)$$

Or pour un ellipsoïde de révolution d'axe Oz,  $N_a = N_b$ , donc :  $2N_a + N_c = 1 \Rightarrow N_a = \frac{1}{2}(1 - N_c)$ .

Ainsi :

$$E_D = \frac{1}{2} \mu_0 M_S^2 (N_a \sin^2 \theta + N_c (1 - \sin^2 \theta)) V$$

$$\begin{aligned}
E_D &= \frac{1}{2} \mu_0 M_S^2 \left( \frac{1}{2} (1 - N_c) \sin^2 \theta - N_c \sin^2 \theta + N_c \right) V \\
E_D &= \frac{1}{2} \mu_0 M_S^2 \left( \frac{1}{2} (1 - 3N_c) \sin^2 \theta + N_c \right) V \\
E_D &= \frac{1}{4} \mu_0 M_S^2 V (1 - 3N_c) \sin^2 \theta + \frac{1}{2} \mu_0 M_S^2 V N_c
\end{aligned} \tag{1.9}$$

Le second terme est invariant en  $\theta$  et n'induit qu'une composante constante qui décale le zéro d'énergie. Le second terme permet d'introduire la densité d'énergie comme une fonction de l'angle  $\theta$ , que l'on appelle l'anisotropie de forme (*i.e. shape*):

$$K_{shape} = \frac{1}{4} \mu_0 M_S^2 (1 - 3N_c) \sin^2 \theta \tag{1.10}$$

Or d'après la formule générale d'une densité d'énergie on peut écrire :

$$K_{shape} = \frac{\mu_0}{2} M_S H_{shape} \tag{1.11}$$

Le champ d'anisotropie associé est :

$$\boxed{\mu_0 H_{K,shape} = \frac{2K_{shape}}{M_S} = \frac{\mu_0 M_S}{2} (1 - 3N_c)} \tag{1.12}$$

Le tenseur de désaimantation est généralement incalculable analytiquement pour des formes irrégulières. Il est cependant connu pour des particules de forme géométrique, en voici quelques exemples :

- La sphère :  $N_c = \frac{1}{3}$ ,  $K_{shape} = 0$ , pas de direction préférentielle pour l'aimantation.
- L'ellipsoïde prolate d'axe  $\vec{e}_z$  :  $N_c < \frac{1}{3}$  et  $K_{shape} = \frac{\mu_0}{2} M_S H_{shape} > 0$ . L'énergie est minimale lorsque l'aimantation est alignée selon le grand axe  $\pm z$ . Un nanofil peut être approximé par un ellipsoïde prolate.
- L'ellipsoïde oblate d'axe  $\vec{e}_z$  :  $N_c > \frac{1}{3}$  et  $K_{shape} = \frac{\mu_0}{2} M_S H_{shape} < 0$ . L'énergie est minimale lorsque l'aimantation est alignée dans le plan (xOy),  $\theta = \frac{\pi}{2}$ . Un film mince peut être approximé par un ellipsoïde oblate.

Ainsi pour un nanofil assimilé à ellipsoïde prolate à grand rapport d'aspect, on retiendra que :  $\mu_0 H_{shape} = \frac{\mu_0 M_S}{2}$  et  $K_{shape} = \frac{1}{4} \mu_0 M_S^2 \sin^2 \theta$ .

## b) L'anisotropie magnétocristalline

Les matériaux magnétiques sont composés d'un ensemble de moments magnétiques couplés au réseau par le champ cristallin qui est lui-même induit par les charges ioniques de l'environnement. En d'autres termes, le mouvement orbitalaire de l'électron est perturbé par le champ électrostatique

résultant du recouvrement des fonctions d'onde des atomes voisins qui composent le cristal. Ce couplage est à l'origine de l'anisotropie magnétocristalline. Dans le cas du cobalt de structure hexagonale compacte (*hcp*), l'anisotropie magnétocristalline est dirigée le long de l'axe *c*, elle est uniaxiale. Elle peut s'exprimer comme une somme de puissances paires de façon à conserver l'invariance de l'énergie par inversion de l'espace :

$$\varepsilon_{mc} = \frac{E_{mc}}{V} = K_{mc,0} + K_{mc,1}\sin^2(\theta) + K_{mc,2}\sin^4(\theta) = K_{mc,1}(1 - \cos^2(\theta)) + K_{mc,2}(1 - \cos^2(\theta))^2 \quad (1.13)$$

Où  $K_{mc,0}$  représente la constante du développement à l'ordre 0,  $K_{mc,1}$  à l'ordre 1 et  $K_{mc,2}$  à l'ordre 2.  $\theta$  est l'angle entre  $\vec{M}$  et l'axe *c* de l'anisotropie magnétocristalline. La contribution de  $K_{mc,0}$  est isotrope, de ce fait elle n'intervient pas dans les processus de changements d'orientation de l'aimantation et sera donc omise. Pour le cobalt *hcp*,  $K_{mc,1}$  est positive entre 0K et 520K, plage pour laquelle l'axe de facile aimantation est la direction [0001] (axe *c*) et les axes difficiles sont [10-10] et [01-10].  $K_{mc,1}$  est une fonction de la température dont l'évolution pour le cobalt massif est donnée en 1990 par Ono [7] :

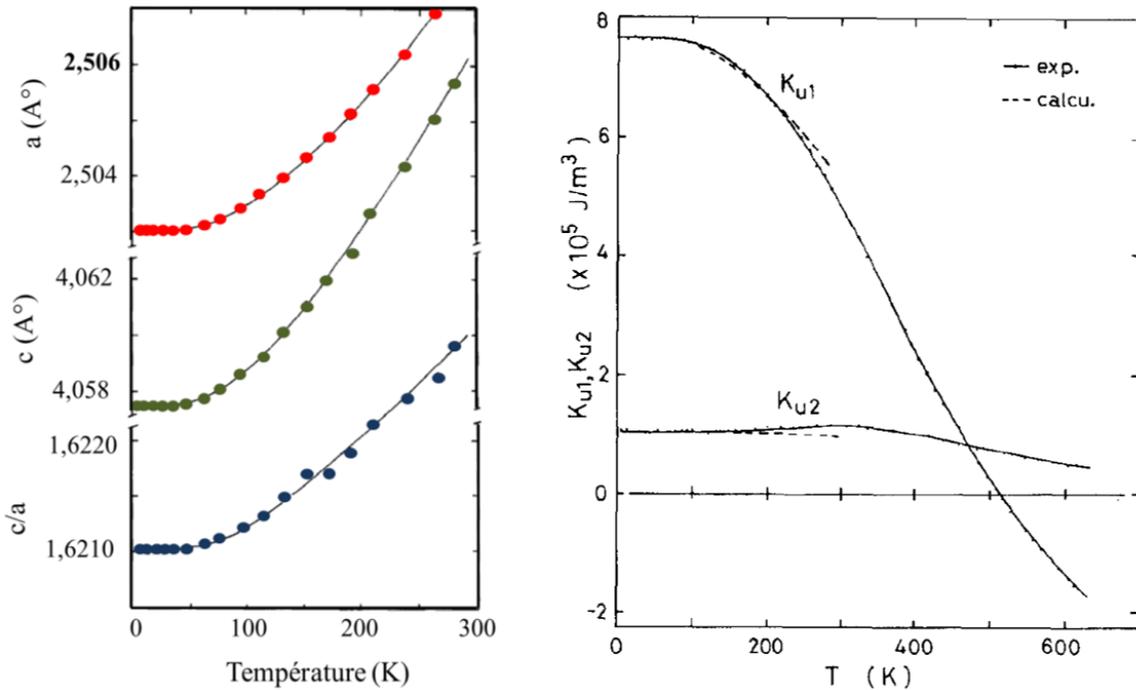


Figure 1.4 : à gauche : variation des paramètres de maille en fonction de la température. A droite : variation de l'anisotropie magnétocristalline ( $K_{mc,1}$  et  $K_{mc,2}$ ) du Co massif de structure *hcp* (d'après [7]).

Le champ d'anisotropie magnétocristallin associé est :

$$\vec{H}_{K_{mc}} = -\frac{1}{\mu_0} \vec{\nabla}_M \cdot \varepsilon_{mc} \quad (1.14)$$

En utilisant :  $\cos(\theta) = \frac{M_z}{M_s}$ , l'expression précédente devient :

$$\frac{\partial \varepsilon_{mc}}{\partial M_z} = -2K_{mc,1} \frac{M_z}{M_s^2} - 4K_{mc,2} \frac{M_z}{M_s^2} + 4K_{mc,2} \frac{M_z^3}{M_s^4} \quad (1.15)$$

D'où :

$$\vec{H}_{K_{mc}} = -\frac{1}{\mu_0} \begin{pmatrix} \frac{\partial \varepsilon_{mc}}{\partial M_x} \\ \frac{\partial \varepsilon_{mc}}{\partial M_y} \\ \frac{\partial \varepsilon_{mc}}{\partial M_z} \end{pmatrix} = -\frac{1}{\mu_0} \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ \frac{\partial \varepsilon_{mc}}{\partial M_z} \end{pmatrix} = \frac{1}{\mu_0} \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 2K_{mc,1} \frac{M_z}{M_s} + 4K_{mc,2} \frac{M_z}{M_s} - 4K_{mc,2} \frac{M_z^3}{M_s^4} \end{pmatrix}$$

En introduisant :  $\vec{H}_{K_{mc,1}} = \frac{2K_{mc,1}}{\mu_0 M_s} \vec{e}_z$  et  $\vec{H}_{K_{mc,2}} = \frac{4K_{mc,2}}{\mu_0 M_s} \vec{e}_z$ , on obtient l'expression suivante :

$$\vec{H}_{K_{mc}} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ (H_{K_{mc,1}} + H_{K_{mc,2}}) \cos(\theta) - H_{K_{mc,2}} \cos^3(\theta) \end{pmatrix} \quad (1.16)$$

L'axe qui minimise l'énergie magnétocristalline correspond à l'angle  $\theta = 0$  c'est-à-dire l'axe Oz. A l'ordre 1 le champ d'anisotropie magnétocristallin s'écrit :

$$\boxed{\vec{H}_{K_{mc,1}} = \frac{2K_{mc,1}}{\mu_0 M_s} \vec{e}_z} \quad (1.17)$$

Afin de maximiser la dureté des nanoaimants en cobalt, l'axe *c* de la maille cristalline *hcp* doit être aligné avec la direction qui minimise l'énergie de l'anisotropie de forme.

### c) Energie Zeeman

Ce terme représente l'énergie de couplage entre un matériau aimanté et le champ qui lui est appliqué  $\vec{H}_{app}$  :

$$\varepsilon_{Zee} = -\mu_0 \vec{M} \cdot \vec{H}_{app}$$

Cette énergie est minimale lorsque l'aimantation et l'excitation magnétique sont colinéaires.

### d) Autres énergies magnétiques

La liste des trois énergies magnétiques citées ci-dessus n'est pas exhaustive (comprenant l'énergie d'origine dipolaire : l'anisotropie de forme, l'énergie d'origine magnétocristalline et l'énergie de Zeeman). Cette courte partie est donc consacrée à une rapide énumération des sources d'énergies magnétiques qui ne seront pas ou peu considérées par la suite.

- L'anisotropie magnéto-élastique : provoquée par une déformation de la maille élémentaire du matériau ayant les mêmes conséquences que l'anisotropie magnétocristalline sur les orbitales atomiques. Cette énergie est souvent due à une rupture de symétrie du champ cristallin.

- L'énergie d'échange : cette énergie provient d'une interaction quantique entre particules indiscernables, ici les électrons. C'est une interaction à très courte portée. Ce sont les interactions entre électrons de valence de la couche  $d$  qui ont le plus de contribution à l'énergie d'échange. Cette énergie est d'autant plus élevée que l'angle entre les spins premiers voisins est grand, d'où la formulation du hamiltonien d'Heisenberg :

$$\hat{H}_{\text{échange}} = - \sum_{i < j} J_{ij} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \quad (1.18)$$

Avec  $\vec{S}_i = S_i^x \vec{e}_x + S_i^y \vec{e}_y$  et  $J_{ij}$  la constante d'échange représentative de l'énergie d'échange entre le spin  $i$  et le spin  $j$ .

$H_{\text{échange}} \in SO(2)$  le groupe des matrices de rotation à deux dimensions. Le rapport  $\frac{\langle J \rangle}{k_B T}$  (avec  $k_B$  la constante de Boltzmann et  $T$  la température) définit la phase du matériau, lorsque l'énergie d'échange devient supérieure à l'agitation thermique, elle a pour effet d'organiser l'assemblée de spins : pour  $J > 0$  les spins sont parallèles, la configuration est dite ferromagnétique, puisque d'après l'hamiltonien d'échange ci-dessus, le produit scalaire positif minimise l'énergie. Lorsque  $J < 0$  les spins sont dans une configuration antiferromagnétique de façon à avoir une résultante négative qui minimise l'énergie.

- L'anisotropie de surface : Dans les systèmes de basse dimensionnalité, la rupture de symétrie du cristal liée à une surface donne lieu à une modification de l'anisotropie magnétocristalline. Cette modification peut parfois être très importante. Elle est souvent définie à partir du modèle phénoménologique initialement développé par Louis Néel en 1954 [8]. L'auteur montre que, dans une couche très mince d'un cristal de symétrie cubique, la brisure de symétrie induit une aimantation avec un axe préférentiel perpendiculaire à la surface de la couche mince magnétique (voire dans le plan de la couche dans certains cas). L'anisotropie effective devient alors la somme des deux contributions, la première volumique ( $K_V$  en  $J/m^3$ ) et une deuxième surfacique ( $K_S$  en  $J/m^2$ ). La symétrie induite est de type uniaxiale avec la direction facile orthogonale au plan de la surface. Localement, l'énergie d'anisotropie induite pour une direction de l'aimantation suivant une direction  $\theta$  par rapport à la normale à la surface peut s'écrire,

$$\varepsilon_s = K_S \sin^2(\theta) \quad (1.19)$$

La valeur de  $K_S$  est généralement estimée à partir de mesures sur des couches minces de différentes épaisseurs présentant des surfaces bien définies [9]. Ces 15 dernières années, à partir des travaux de P. Bruno [10], [11], des approches théoriques basées sur des calculs de structure électronique incluant les effets de couplage spin-orbite permettent d'évaluer l'anisotropie. Celle-ci est liée, en première approximation, à l'anisotropie de la composante orbitale du moment magnétique. Ces études théoriques sont corroborées par les expérimentations, permettant de rendre compte des cas ne répondant pas à la description donnée par L. Néel [12].

Pour une meilleure vue d'ensemble, les principaux termes énergétiques sont placés dans un tableau :

Nature de l'énergie	échange	Anisotropie magnétocristalline	dipolaire	Zeeman
Energie	$A \vec{\nabla} \cdot \vec{m}$	$K_{mc} \sin^2(\theta)$	$\frac{\mu_0 M_s^2}{4} (1 - 3N_c) \sin^2(\theta)$	$-\mu_0 \vec{M} \cdot \vec{H}_{app}$
Champ associé	$\frac{2A \Delta \vec{m}}{\mu_0 M_s}$	$\frac{2K_{mc}}{\mu_0 M_s} (\vec{m} \cdot \vec{e}_z) \vec{e}_z$	$-\vec{N}_d \vec{M}_s$	$\vec{H}_{app}$

Avec  $A$  la rigidité de l'échange qui dépend de la constante d'échange et du paramètre de maille.

### 3. Hystérésis magnétique d'un ellipsoïde ferromagnétique uniformément aimanté

#### a) Modèle de Stoner-Wohlfarth (SW)

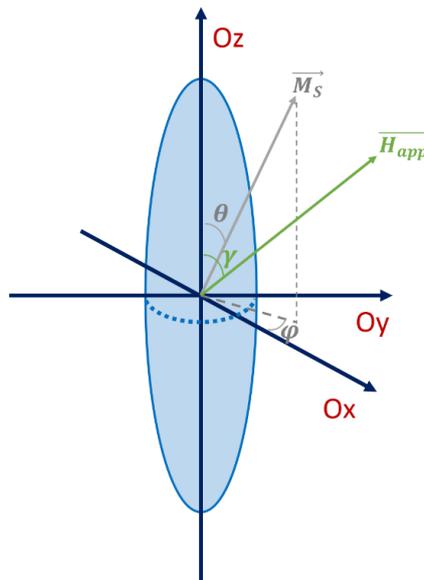


Figure 1.5 : système de coordonnées pour un ellipsoïde uniformément aimanté plongé dans un champ magnétique appliqué.

Du fait de sa simplicité, ce modèle a une forte popularité. Cependant il a été bâti dans un cadre composé de fortes hypothèses qu'il convient d'exprimer avant d'en énoncer les grandes lignes : la particule doit être un ellipsoïde de révolution et son énergie d'échange est toujours minimale, les ellipsoïdes décrits par cette théorie sont d'ailleurs désignés par le terme de macro-spin (*i.e.* approximation du macro-spin), ce qui équivaut à dire que les moments magnétiques qui composent l'ellipsoïde sont tous parallèles entre eux, par conséquent l'ellipsoïde est forcément monodomaine, L'anisotropie effective est uniaxiale et de nature volumique. Les effets thermiques ne sont pas pris en compte, signifiant que la température est fixée à 0 K.

Dans le cas où l'axe  $c$  de la structure cristalline  $hcp$  est aligné avec le grand axe de l'ellipsoïde prolate, le terme de densité d'énergie totale d'un aimant permanent ellipsoïdal comprend une

contribution magnétocristalline, un terme Zeeman et l'anisotropie de forme (d'autres termes additionnels éventuels seront mentionnés par la suite) :

$$\begin{aligned} \varepsilon_{tot} = & K_{mc,1}\sin^2(\theta) + K_{mc,2}\sin^4(\theta) - \mu_0 H_{app} M_s \cos(\gamma - \theta) \\ & + \frac{1}{4} \mu_0 M_s^2 (1 - 3N_c) \sin^2(\theta) \end{aligned} \quad (1.20)$$

Le modèle de Stoner-Wohlfarth (SW) est basé sur une philosophie de minimisation de l'énergie magnétique totale telle qu'exprimée ci-dessus. Dans un premier temps cette démarche permet d'accéder aux positions d'équilibre magnétique de l'aimant permanent monodomaine. Le détail des calculs se trouve en Annexe 1, seules les grandes lignes seront exprimées ici.

Donnons quelques ordres de grandeur pour un aimant permanent ellipsoïdal monodomaine de grand rapport d'aspect, composé de Co hcp massif ( $M_s = 1370 \text{ kA} \cdot \text{m}^{-1}$  à  $300\text{K}$ ,  $K_{mc,1} = 530 \cdot 10^3 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3}$ ,  $K_{mc,2} = 100 \cdot 10^3 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3}$ ) avec l'axe  $c$  parallèle au grand axe de l'ellipsoïde:

$$\mu_0 H_{K_{mc,1}} = \frac{2K_{mc,1}}{M_s} = \frac{2 \times 5,3 \cdot 10^5}{1370 \cdot 10^3} = 0,76 \text{ T} \quad (1.21)$$

$$\mu_0 H_{K_{mc,2}} = \frac{4K_{mc,2}}{M_s} = \frac{4 \cdot 10^5}{1370 \cdot 10^3} = 0,29 \text{ T} \quad (= 0,38 \times \mu_0 H_{K_{mc,1}}) \quad (1.22)$$

$$\mu_0 H_{dip,zz} = -\mu_0 N_c M_s = 0 \text{ T} \quad (1.23)$$

La question de l'influence de l'anisotropie magnétocristalline de second ordre se pose lorsque  $\gamma = 0$  ou  $\frac{\pi}{2}$  (respectivement direction de facile aimantation et difficile). Par la suite, on posera  $m = \frac{M_z}{M_s} = \cos(\theta)$ , application du champ dans la direction de facile aimantation ( $H_{app} // z$ ), i.e.  $\gamma = 0$  :

$$\begin{aligned} \varepsilon_{tot} = & K_{mc,1}(1 - m^2) + K_{mc,2}(1 - m^2)^2 + \frac{1}{4} \mu_0 M_s^2 (1 - 3N_c)(1 - m^2) \\ & - \mu_0 H_{app} M_s m \end{aligned} \quad (1.24)$$

Le champ à appliquer pour passer la barrière d'énergie séparant les deux états d'équilibres :  $\theta = 0$  ou  $\pi$  (direction de facile aimantation) s'écrit :

$$\mu_0 H_{app} = \frac{2K_{mc,1}}{M_s} m - \frac{4K_{mc,2}}{M_s} m + \frac{4K_{mc,2}}{M_s} m^3 + \frac{1}{2} \mu_0 M_s (1 - 3N_c) m$$

Pour faire passer l'aimantation d'un minima à l'autre dans la direction de facile aimantation, i.e.  $M_s = M_z$  et donc  $m = 1$ , il faut appliquer un champ égal au champ d'anisotropie :

$$\boxed{\mu_0 H_k = \frac{2K_{mc,1}}{M_s} + \frac{1}{2} \mu_0 M_s (1 - 3N_c)} \quad (1.25)$$

Il apparait ainsi que le second ordre des contributions magnétocristallines n'influe pas sur la hauteur de la barrière de potentiel à franchir pour renverser l'aimantation suivant l'axe facile. Autrement dit, le champ de renversement dans la direction facile n'est pas influencé par la valeur de  $K_{mc,2}$ . Ce champ d'anisotropie est une formule générale pour les formes pouvant être approximées par un ellipsoïde. On peut donner quelques exemples des objets pour lesquels cette formule est applicable :

- Pour un cylindre d'une hauteur infini en Co :  $N_c = 0 \Rightarrow \mu_0 H_k = \frac{2K_{mc,1}}{M_s} + \mu_0 \frac{M_s}{2} = 1,619 T$  pour le cobalt *hcp*.
- Pour un aimant permanent sphérique en Co :  $N_c = \frac{1}{3} \Rightarrow \mu_0 H_k = \frac{2K_{mc,1}}{M_s} = 0,759 T$

Le calcul des effets du premier et second ordre de l'anisotropie magnétocristalline sur la direction difficile ( $\gamma = \pi/2$ ) est joint dans l'Annexe 1. A la saturation, lorsque  $M_x = M_s$  il vient  $\mu_0 H_{app} = \mu_0 H_{sat}$  :

$$\boxed{\mu_0 H_{sat} = \frac{2K_{mc,1}}{M_s} + \frac{4K_{mc,2}}{M_s} + \frac{1}{2} \mu_0 M_s (1 - 3N_c)} \quad (1.26)$$

On peut reprendre les exemples précédents :

- Pour un cylindre de longueur infinie en Co :  $N_c = 0 \Rightarrow \mu_0 H_{sat} = \frac{2K_{mc,1}}{M_s} + \frac{4K_{mc,2}}{M_s} + \mu_0 \frac{M_s}{2} = 1,911 T$  pour le cobalt
- Pour un aimant permanent sphérique en Co :  $N_c = \frac{1}{3} \Rightarrow \mu_0 H_{sat} = \frac{2K_{mc,1}}{M_s} + \frac{4K_{mc,2}}{M_s} = 1.05 T$

Afin de mieux visualiser les effets du premier et second ordre de l'anisotropie magnétocristalline, des simulations ont été réalisées à l'aide d'un code Matlab sur un macro-spin unique plongé dans un champ appliqué. En résolvant les jeux d'équations (A.96 et A.97 de l'Annexe 1) du modèle de SW *via* l'algorithme présenté Figure 1.6, on obtient, Figure 1.7, les cycles d'hystérésis  $M(H_{ext})$  pour différents angles  $\gamma$ , avec et sans  $K_{mc,2}$ .

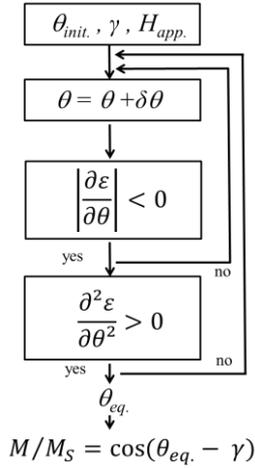


Figure 1.6 : algorithme du calcul par minimisation de l'énergie  $\varepsilon_{tot} \times V$  de l'angle d'équilibre  $\theta_{eq}$ , de l'aimantation pour chaque pas en champ appliqué.

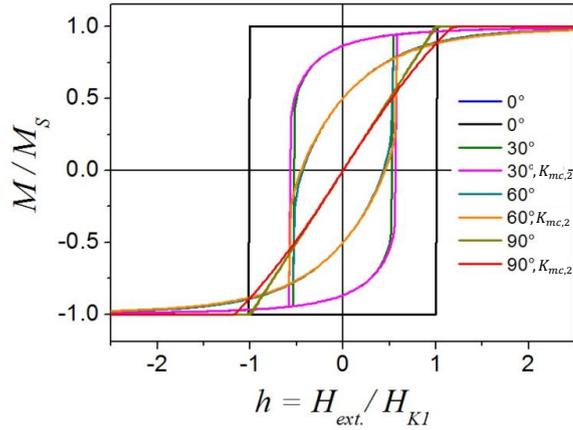


Figure 1.7 : résultat de la minimisation de l'énergie magnétique en fonction de l'angle  $\gamma$  et de l'amplitude du champ appliqué normalisé par  $H_{K,1} = \frac{2K_{mc,1}}{M_S} + \frac{1}{2}\mu_0 M_S(1 - 3N_c)$ . En ordonnée est représentée l'aimantation totale projetée sur l'axe d'application du champ.

Ce jeu de simulations montre que l'influence du second ordre de l'anisotropie magnétocristalline n'est visible que pour des angles  $\gamma$  qui s'écartent de 0. Cette contribution magnétocristalline a pour effet de courber légèrement la courbe  $M(H)$  proche de la saturation lorsque  $\gamma > 0$ .

La dépendance du champ d'anisotropie par rapport à l'angle d'application du champ externe est détaillée dans l'Annexe 1 et abordée dans la partie I.4.c). La variation de la hauteur de la barrière de potentiel d'une particule magnétique ellipsoïdale, formulée dans le cadre du modèle de Stoner-Wohlfarth, par rapport au champ externe s'exprime de la façon suivante :

- Les deux minima :

$$\begin{cases} \varepsilon_{tot\,min}(\gamma = 0) = -\mu_0 H_{app} M_S \\ \varepsilon_{tot\,max}(\gamma = \pi) = \mu_0 H_{app} M_S \end{cases}$$

- Le maximum de l'énergie est donné par :

$$\frac{\varepsilon_{tot\,max}}{V} \left( \gamma = \arccos \left( \mu_0 \frac{H_{app} M_S}{2K_{eff}} \right) \right) = 4K_{eff} + \frac{(\mu_0 H_{app} M_S)^2}{4K_{eff}} = K_{eff} \left( 1 - \frac{(\mu_0 H_{app} M_S)^2}{2K_{eff}} \right)$$

La hauteur de barrière à franchir pour passer d'un minima à l'autre est donnée par la différence entre le minimum et le maximum de la hauteur de la barrière :

$$\Delta\varepsilon_{tot} = K_{eff} V \left( 1 - \frac{(\mu_0 H_{app} M_S)^2}{2K_{eff}} \right)^2 \quad (1.27)$$

#### b) Retournement thermiquement assisté: formule de Sharrock

Les effets thermiques ont une influence sur les caractéristiques intrinsèques du matériau, notamment sur l'aimantation à saturation et l'anisotropie magnétocristalline. Une forte variation de

la coercivité est attendue puisqu'elle est fonction de l'anisotropie magnétocristalline [7]. Mais la température engendre également de l'agitation thermique qui provoque des fluctuations énergétiques d'amplitude aléatoire permettant parfois de franchir la barrière de potentiel séparant deux états d'aimantation [13], [14]. Pour un nanofil, l'énergie de barrière s'écrit (équation 1.27) :

$$E_A = E_0 \left(1 - \frac{H_{app}}{H_k}\right)^m \quad (1.28)$$

$H_k$  le champ d'anisotropie tel que  $\mu_0 H_k = \frac{2K_{eff}}{\mu_0 M_S}$ ,  $E_0$  l'énergie de la barrière à champ nul :  $E_0 = K_{eff} V$  ( $K_{eff}$  étant l'anisotropie effective, somme de toutes les contributions uniaxiales s'exprimant en  $\sin^2(\theta)$ ),  $m$  est un paramètre égal à 2 dans le cas du modèle Stoner-Wohlfarth, prenant d'autres valeurs comme  $\frac{3}{4}$  dans le cas d'une assemblée aléatoire et  $\frac{3}{2}$  dans le cas d'un profil énergétique non symétrique [15]–[17]. A l'aide de la loi d'Arrhenius, il est possible de formuler un temps de relaxation de l'aimantation dû à l'agitation thermique [13], [18] :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_0} e^{-\frac{E_A}{k_B T}} \quad (1.29)$$

Où  $\tau$  est le temps caractéristique de relaxation de l'aimantation,  $\tau_0$  est le facteur de fréquence, temps caractéristique entre deux collisions atomiques (effet stérique) où  $f_0 = \frac{1}{\tau_0}$  la fréquence de tentative de retournement d'un moment magnétique, liée à la fréquence des collisions, temps que l'on considère ici indépendant de la température (en général, entre  $10^{-9}$  à  $10^{-10}$ s).

Des deux expressions précédentes on obtient :

$$E_A = k_B T \ln\left(\frac{\tau}{\tau_0}\right) = E_0 \left(1 - \frac{H_{app}}{H_k}\right)^m \quad (1.30)$$

Ce qui amène directement à la formule de Sharrock [19]:

$$H_c = H_k \left[1 - \left(\frac{k_B T}{K_{eff} V} \ln\left(\frac{\tau}{\tau_0}\right)\right)^{\frac{1}{m}}\right] \quad (1.31)$$

Cependant cette formule théorique n'est pas suffisante pour rendre compte de nos données expérimentales. C'est pourquoi cette relation sera ajustée pour justifier une chute du champ coercitif dû, notamment, à un alignement imparfait du champ avec l'axe facile (coefficient  $a_\gamma$ , équation 1.36-1.23), et un paramètre  $\alpha$  de diminution de la barrière du fait d'impuretés et imperfections (cf. paradoxe de Brown). Egalement  $K_{eff}$  pourra être considéré comme une fonction de la température  $K_{eff}(T)$  variant comme sur la Figure 1.4 [7] :

$$H_c = \alpha a_\gamma H_k \left[1 - \left(\frac{k_B T}{\alpha K_{eff}(T) V_{eff}} \ln\left(\frac{\tau}{\tau_0}\right)\right)^{\frac{1}{m}}\right] \quad (1.32)$$

L'ajustement itératif de courbe  $H_c(T)$  permet l'extraction de paramètres tel que le volume effectif concerné par le retournement :  $V_{eff}$ . En comparant celui-ci au volume de la particule qui voit son aimantation se retourner, il est possible de conclure sur la nature du retournement (délocalisé :  $V_{eff} \approx V$  ou localisé  $V_{eff} < V$ ) [16], [20]–[22].

#### 4. Modes de retournement de l'aimantation

##### a) Introduction

En présence d'un champ nul, une particule magnétique ellipsoïdale non sphérique a toujours au moins deux configurations stables puisque l'énergie magnétique reste invariante par inversion de l'espace  $\vec{M} \rightarrow -\vec{M}$ . Ainsi lorsque la première configuration stable est connue, cette opération de symétrie permet de déduire la seconde. En faisant continûment varier un champ extérieur, le profil énergétique de la particule magnétique est également modifié de façon continue. A terme, l'énergie apportée par le champ externe sera suffisante pour rendre instable l'état d'équilibre local qui minimise l'énergie de la particule. Ce champ critique est appelé champ d'anisotropie. Lorsque le champ externe atteint cette valeur, la moindre perturbation que subit la nanoparticule peut emmener son état très loin de la configuration de départ pour finalement atteindre un équilibre stable. Ce phénomène est appelé retournement de l'aimantation. Tous les arguments développés dans cette partie sont valables pour des objets idéaux, sans défauts.

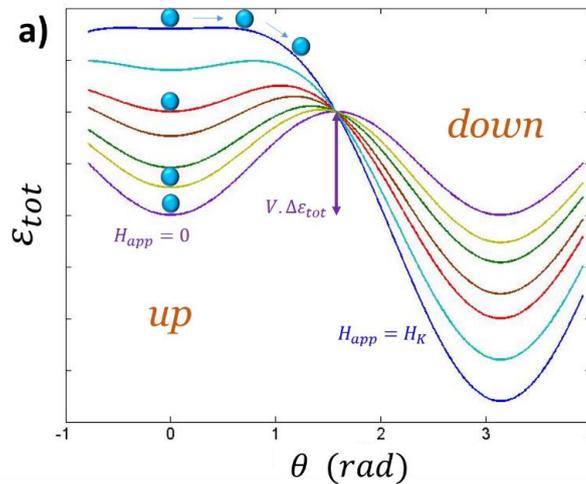


Figure 1.8 : évolution du profil énergétique avec l'augmentation du champ externe. Initialement la particule est aimantée selon  $+z$  (i.e. *up*) et le champ externe est selon  $-z$ . Pour un champ externe compris entre 0 et  $-H_K(\theta_{eq})$  la particule est dans le puit métastable *up*, tandis que pour un champ externe inférieur ou égal à  $-H_K(\theta_{eq})$  l'aimantation se retourne et tombe dans le puit *down*.

On distinguera deux types de retournements : délocalisé et localisé. Ces deux natures contiennent eux-mêmes différents modes de retournements. Connaître les configurations spatiales de l'aimantation durant son renversement au sein d'une nanoparticule revient à savoir de quelle origine est l'énergie qui prédomine. Il est donc nécessaire de formuler une expression de l'énergie libre ( $E_{tot} = \varepsilon_{tot}V$ ), tel que  $\frac{\partial E_{tot}}{\partial X} = 0$  et  $\frac{\partial^2 E_{tot}}{\partial X^2} > 0$  avec :

$$E_{tot}(\vec{M}, \vec{H}_{app}) = \int_V \left( A(\vec{\nabla} \cdot \vec{m})^2 + \varepsilon_{mc}(\vec{m}) - \frac{\mu_0}{2} M_S \vec{m} \cdot \vec{H}_{app} - \mu_0 M_S \vec{m} \cdot \vec{H}_{app} \right) dr^3 \quad (1.33)$$

La difficulté étant que la variable n'est pas un simple scalaire mais le champ vectoriel de l'aimantation. Le problème revient donc à déterminer les positions pour lesquelles une variation infinitésimale  $\delta \vec{M}$  n'induit pas de variation positive de  $E_{tot}$ . La formulation variationnelle de l'équation précédente consiste à écrire :  $\delta E_{tot}(\vec{M}, \vec{H}_{app})$ . Elle s'exprime en introduisant :  $\vec{m}(\vec{r}) \rightarrow \vec{m}(\vec{r}) + \delta \vec{m}(\vec{r})$ . C'est en développant cette approche que Brown a exprimé ses célèbres équations [23]. Un mode de retournement comprend un jeu de solutions qui minimise l'énergie libre, c'est-à-dire une expression spatiale paramétrée de l'aimantation.

### b) Rayon critique : $R_C$

La problématique de cette partie consiste à comprendre le ou les critère(s) qui déterminent le mode de retournement d'un ellipsoïde. Lorsque le champ externe atteint une valeur critique, l'aimantation commence à varier. Cette valeur critique est connue comme le champ de nucléation. Rappelons qu'un phénomène de nucléation n'a pas forcément besoin de « nucléus », c'est-à-dire d'une hétérogénéité comme point de départ. Un phénomène de nucléation peut donc être cohérent et/ou non local. Dans un cristal ferromagnétique une fois le champ de nucléation atteint, l'aimantation adopte brutalement une configuration qui est un mode propre des équations de Brown [23]. Le modèle de Stoner-Wohlfarth est un exemple représentatif de nucléation délocalisée. La Figure 1.8 fait l'analogie bien connue entre une bille pouvant se déplacer dans le profil d'énergie potentielle et le renversement de l'aimantation vu par le modèle Stoner-Wohlfarth. A mesure que le champ externe s'approche de l'amplitude du champ de nucléation, la dépression dans le puits où la bille se trouve initialement se réduit. Ainsi lorsque la barrière de potentiel est de hauteur nulle, la saturation peut être atteinte suite à une perturbation faisant passer la bille dans le puits de plus basse énergie. Cependant, il est démontrable que le profil énergétique visible Figure 1.8 est en fait multidimensionnel. Dans le principe, toutes les fonctions propres des équations de Brown doivent être prises en compte. Les auteurs *Forster et al.* [24] ont par ailleurs effectué des simulations dans lesquelles le champ externe est appliqué avec une variation infinie, exprimée par une fonction de Heaviside. Ceci est bien sûr irréalisable expérimentalement, puisque la variation d'un champ ne peut être infinie. La simulation montre que l'apport d'énergie magnétique à la nanoparticule permet d'emprunter un autre chemin énergétique que celui prédit par la théorie de Stoner-Wohlfarth et ainsi, observer dans le même objet, plusieurs modes de retournement différents. Bien sûr les modes propres ne peuvent se manifester en même temps.

En 1956, Brown formule le problème de nucléation [23] en linéarisant les équations qu'il a mis en forme dans un autre contexte 17 ans plus tôt [25]. Il donne deux solutions analytiques. La première correspond à un potentiel homogène dans tout l'ellipsoïde : le retournement cohérent, d'abord appelé retournement à l'unisson par *Frei et al.* [26]. Ce mode est en fait le mode décrit dans le modèle de Stoner-Wohlfarth (juillet 1947) qui représente un mode propre des équations de Brown linéarisées. Le second mode est également découvert par Brown [23] mais également par *Frei et al.* [26]. Brown passe par la résolution de l'équation différentielle en coordonnées cylindriques et en appliquant des contraintes arbitraires postulées sur l'énergie libre qu'il justifie comme valables puisqu'elles permettent la résolution analytique. Ces contraintes réduisent le problème du retournement de

l'aimantation en 3 dimensions à un problème à deux dimensions plus facilement soluble. De leur côté, *Frei et al.* minimisent la fonctionnelle de l'énergie libre qu'ils comparent avec d'autres modèles et présentent leur solution comme une solution valable pour le cylindre infini et la sphère. A l'écriture de cet article *Frei et al.* ne savent pas qu'ils ont trouvé la même solution que celle des équations de Brown. Cependant le succès de l'article de *Frei et al.* est bien plus important que celui de Brown pour la simple raison qu'ils ont labélisé ce mode de retournement : le mode curling. Il en résulte que la majeure partie des physiciens penseront que les deux articles sont équivalents. Cependant il n'en est rien puisque le curling n'est pas un modèle comme l'affirme *Frei et al.* mais bien un mode propre des équations de Brown. La signification est importante car le curling ne peut pas être comparé à d'autres modèles, c'est un mode de nucléation du renversement de l'aimantation au même titre que le mode cohérent.

Plus haut il a été énoncé que lorsque l'énergie d'échange est minimisée, l'aimantation varie de la même façon en tous points de la particule, le retournement est cohérent, tandis que si l'énergie magnétostatique est minimisée, les moments s'organisent pour neutraliser les effets dipolaires. Le rayon de transition entre ces deux modes peut donc être trouvé en comparant l'énergie magnétostatique et l'énergie d'échange en fonction du rayon de la particule (ici un cylindre infini) [5], [27]–[30]:

$$R_c = \frac{q}{M_S} \sqrt{\frac{A}{\mu_0 N_a}} \quad (1.34)$$

Le tout étant à exprimer en unité SI (système international). Avec  $q$  la première racine de la fonction de Bessel  $J_1$  ( $q=1.8412$ , pour un cylindre infini) et  $N_a$  le facteur de désaimantation du plan de difficile aimantation (équation (1.4)). L'application numérique pour un cylindre de cobalt nous amène à un diamètre de 15nm. Tracer les courbes (1.25) et (1.38) sur un même graphe permet de visualiser le mode de retournement qui possède le plus faible champ de nucléation :

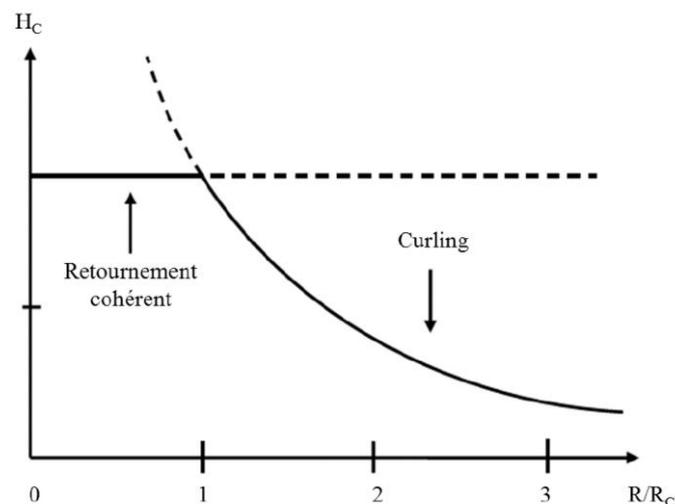


Figure 1.9 : Variation du champ de nucléation d'un cylindre infini en fonction du rayon normalisé et à  $T=0K$ . On peut distinguer deux modes différents, tous deux délocalisés.

Sur ce graphe on voit explicitement que la valeur du champ de nucléation d'une particule soumise au retournement cohérent ne dépend pas de sa taille. Ce qui n'est pas le cas pour une particule soumise au retournement curling. Précisons qu'actuellement aucun autre mode n'a été observé ou calculé dans des ellipsoïdes. D'autres modes propres des équations différentielles existent mais les champs de nucléation de ces modes sont physiquement inatteignables du fait du champ de

nucléation inférieure des deux autres modes propres curling et cohérent. Il existe tout de même le cas limite du cylindre infini qui peut admettre un retournement de type « buckling ». Les modes locaux ne pouvant exister dans le cylindre infini, le mode buckling est probablement une manifestation de l'infini [29]. D'abord découvert par Frei *et al.* [26], dans la publication de janvier 1957, le calcul analytique du champ de nucléation du mode buckling dans un cylindre infini est effectué en mars 1958 par Aharoni et Shtrikman [31].

### c) Retournement délocalisé : le mode cohérent

Ce mode de retournement concerne les particules ellipsoïdales et monodomaines. Les conditions pour que l'aimantation d'une particule puisse être considérée monodomaine seront étudiées dans la partie suivante. Dans un retournement de type cohérent les moments restent parallèles. Cela est favorable en termes d'énergie d'échange mais cela induit des (pseudo)charges magnétiques sur la surface lorsque l'aimantation se trouve normale à l'axe de l'ellipsoïde (à la moitié du retournement) ce qui induit un coût magnétostatique. Ainsi l'énergie magnétique externe à fournir à un ellipsoïde monodomaine pour provoquer son renversement doit être suffisante pour vaincre les effets magnétostatiques cités ci-dessus ainsi que l'anisotropie uniaxiale. Lorsque l'ellipsoïde atteint un diamètre critique, le retournement s'opère *via* le mode curling (Figure 1.10) qui est également un mode de retournement délocalisé.

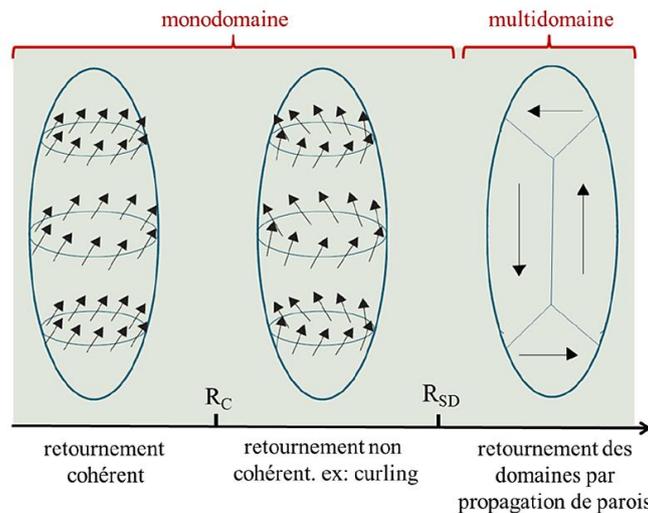


Figure 1.10 : Illustration des différents modes de retournement de l'aimantation dans les ellipsoïdes.  $R_C$  représente le rayon critique de la transition entre mode uniforme et le mode curling .  $R_{SD}$  représente le rayon critique au-dessus duquel l'aimantation de la particule s'organise en domaines. Issue de [5]

Stoner et Wohlfarth [3] sont les premiers à exprimer la solution qui minimise l'énergie libre sous la contrainte de garder l'énergie d'échange constante durant le renversement de l'aimantation. Dans ce modèle, le potentiel ne dépend que de  $\theta$  et est périodique de période  $\pi$  (équation (1.20)). Les positions d'équilibres sont données dans la partie 1,3.a), p.26 et développée en Annexe 1. Il est également possible de déduire une expression du champ de retournement de l'aimantation  $H_{SW}$  (*switching field*), ici identique à  $H_c$ , en fonction de l'angle d'application du champ externe. Pour ce faire, il est nécessaire d'exprimer la variable  $\theta$ , l'angle entre l'aimantation et l'axe de facile aimantation, en fonction de la variable  $\gamma$ , l'angle entre le champ externe et l'axe de facile aimantation (Figure 1.5). Le calcul est bien détaillé par Sun *et al.* [5] en partant de l'équation (1.20) :

$$\varepsilon_{tot} = K_{eff} \sin^2(\theta) - H_{app} \cos(\theta - \gamma) \quad (1.35)$$

Pour un angle d'application du champ externe compris entre 0° et 45° le résultat obtenu est :

$$H_{SW} = \frac{2K_{eff}}{\mu_0 M_S} \frac{1}{(\sin^{2/3}(\gamma) + \cos^{2/3}(\gamma))^{3/2}} = \frac{2K_{eff}}{\mu_0 M_S} a_\gamma \quad (1.36)$$

Pour un angle d'application du champ externe compris entre 45° et 90° le résultat obtenu est :

$$H_{SW} = \frac{2K_{eff}}{\mu_0 M_S} (\sin(\gamma) \cos(\gamma)) \quad (1.37)$$

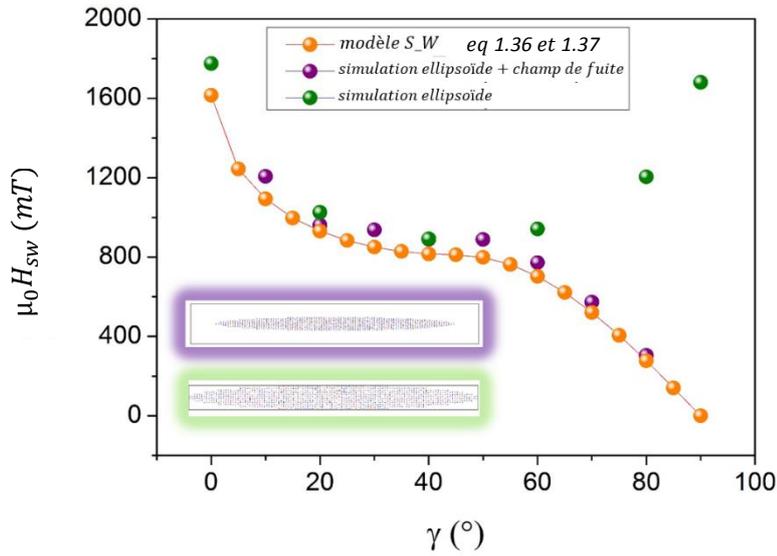


Figure 1.11 : Ces trois courbes représentent la variation du champ  $H_{SW}(\gamma)$  en fonction de l'angle d'application du champ, pour un ellipsoïde de 50 nm de grand axe et 3 nm de petit axe, calculée de différentes manières : En orange : De 0° à 45° : eq. 1.36 , et de 45° à 90° eq. 1.37 , en violet : courbe issue d'une simulation micromagnétique d'un ellipsoïde prolate de dimension :  $c = 50 \text{ nm}$  et  $a = 3 \text{ nm}$  dans un espace de dimension :  $z = 120 \text{ nm}$ ,  $x = y = 18 \text{ nm}$ . En vert : courbe issue d'une simulation d'un ellipsoïde :  $c=50\text{nm}$  et  $a=3\text{nm}$  dans un espace de dimensions :  $z = 100 \text{ nm}$ ,  $x = y = 6\text{nm}$ , les bords de l'espace simulé sont aussi les bords de l'ellipsoïde. Simulations micromagnétiques OOMMF : espace discrétisé en cellules  $1\text{nm} \times 1\text{nm} \times 1\text{nm}$ .  $M_S = 1370 \text{ kA/m}$ ;  $K_{mc} = 530.10^3 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3}$ , calcul de l'aimantation par intégration de l'équation Landau-Lifshitz-Gilbert par un algorithme d'Euler.

La Figure 1.11 montre l'évolution de l'amplitude du champ  $H_{SW}(\gamma)$  en fonction de l'angle  $\gamma$ , calculée à partir des relations (1.36) et (1.37), superposées aux résultats issus de simulations micromagnétiques d'ellipsoïde effectuées avec OOMMF (Annexe 6). Il apparaît que le mode de retournement obtenu par simulations micromagnétiques diffère suivant la présence ou non d'espace vide, pris en compte dans la simulation, autour de l'ellipsoïde calculée, c'est-à-dire suivant le calcul ou non du champ dipolaire rayonné à l'extérieur de l'objet aimanté. En effet, lorsque le champ dipolaire rayonné par la nanoparticule est calculé (points violets Figure 1.11), la courbe violette est obtenue, signature d'une rotation cohérente de l'aimantation. Lorsque les lignes de champ ne peuvent être calculées à l'extérieur (points verts, Figure 1.11), la courbe verte est obtenue, signature du mode de retournement curling. Il est donc primordial de laisser un espace autour des nano-objets simulés de façon à ce que l'énergie associée au champ de fuite et à l'échange se rapproche le plus possible des conditions d'une expérience.

#### d) Retournement délocalisé : le curling

Une particule soumise au retournement curling a toujours un rayon inférieur à  $R_{SD}$ , le rayon critique de transition entre une particule monodomaine et une particule multidomaine. Cependant les dimensions de la particule sont suffisantes pour que, durant le retournement, l'angle autorisé entre moments voisins permette à l'aimantation de se décomposer en deux régions distinctes, par exemple une région où  $M$  est alignée dans le plan équatoriale de l'ellipsoïde et une seconde où  $M$  est alignée selon  $Oz$ . Durant le renversement de l'aimantation, en opposition avec la rotation cohérente, c'est la contribution de l'énergie démagnétisante qui domine. Les moments magnétiques adoptent des configurations qui compensent localement les charges magnétostatiques et ainsi minimisent leurs contributions énergétiques : les moments contenus dans le plan transverse de l'ellipsoïde forment des cercles autour de l'axe de la particule afin d'assurer la fermeture du flux magnétique (Figure 1.10). Le champ de nucléation d'une particule soumise à un retournement curling est calculé par la minimisation de l'énergie libre en introduisant cette fois un terme associé à l'échange. Dans le mode cohérent, les moments restent tous parallèles entre eux et l'échange a donc une contribution énergétique constante. Ici l'énergie de barrière contient un terme dû à l'interaction d'échange. La minimisation de l'énergie libre a été réalisée par de nombreux auteurs [29], [32], [33], et le champ de retournement déduit s'écrit:

$$\mu_0 H_{SW} = \frac{2K_{eff}}{M_S} - N_c \mu_0 M_S + \frac{k A}{M_S R^2} \quad (1.38)$$

Avec  $k$  une fonction du facteur de désaimantation  $N_c$  et  $R$  le rayon de l'ellipsoïde de révolution.

Le mode de retournement curling s'identifie par l'aspect de la courbe  $H_{SW}(\gamma)$ , courbe verte de la Figure 1.11.

### 5. Monodomaine ou multidomaine ?

#### a) Rayon critique : monodomaine, vortex et multidomaine

Il est intéressant de se poser la question des échelles de longueur de prédominance de chaque énergie. Pour ce faire, il suffit d'étudier le rapport des densités d'énergie magnétostatique et de l'énergie d'échange. La grandeur  $A$  représente la rigidité de l'échange résultant de l'interaction d'échange entre un atome et ses plus proches voisins, grandeur exprimée en  $J.m^{-1}$ . Elle est à comparer avec l'anisotropie de forme, *i.e.*  $K_{shape}$  exprimée en  $J.m^{-3}$ . On définit ainsi la longueur d'échange qui représente la longueur sur laquelle l'échange prédomine. C'est la longueur minimale nécessaire pour voir apparaître un gradient de l'angle que fait l'aimantation avec l'axe facile dans un ellipsoïde à grand rapport sans anisotropie magnétocristalline [34]–[37] :

$$l_{ech} = \sqrt{\frac{A}{\mu_0 M_S^2}} \quad (1.39)$$

$A$  est la rigidité de l'échange :  $A = \frac{S^2 J a^2 N_v}{2}$  et s'exprime en  $J \cdot m^{-1}$ ,  $S$  : la moyenne du spin électronique des atomes du matériau (ici  $\frac{1}{2}$ ),  $J$  : la constante d'échange,  $N_v$  : le nombre de premiers voisins, et  $a$  : la distance entre premiers voisins.

L'anisotropie magnétocristalline est minimale lorsque les moments sont alignés avec la direction cristallographique préférentielle. L'énergie d'échange s'oppose au gradient de l'aimantation. C'est pourquoi dans la description d'une paroi séparant deux domaines de Weiss ces deux énergies sont antagonistes : l'énergie magnétocristalline tend à réduire la largeur de la paroi de domaine alors que l'échange tend à la faire croître. La largeur d'une paroi de Bloch est donc :

$$\delta = \sqrt{\frac{A}{K_{mc}}} \quad (1.40)$$

Le tableau suivant indique les valeurs de ces paramètres pour des matériaux magnétiques usuels [32]:

matériau	$\delta$ (nm) $T = 300K$	$l_{ech}$ (nm) $T = 300K$	$M_s$ ( $kA \cdot m^{-1}$ ) $T = 300K$	$K_{mc,1}$ ( $kJ \cdot m^{-3}$ ) $T = 300K$	$T_c$ (K) <sup>1</sup>	$A$ ( $pJ \cdot m^{-1}$ ) $T = 300K$
<i>Co</i>	14	2	1448	520	1360	30
<i>Ni</i>	82	3.4	485	-5.7	627	9
<i>Fe</i>	40	1.5	1711	48	1044	21
<i>SmCo<sub>5</sub></i>	3.6	4.9	830	17200	1020	22
<i>Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B</i>	3.9	1.9	1281	4900	588	8

Tableau 1.12 : valeurs numériques de  $\delta$  et  $l_{ech}$  pour des métaux de transition et des terres rares (issu de *Permanent Magnetism*, R. Skomski and J. M. D. Coey [32]).

On pourrait penser qu'une particule d'un rayon inférieur à la largeur de parois ne peut être multi domaine puisque l'espace est insuffisant pour séparer les domaines. C'est évidemment vrai mais l'argument n'est pas suffisant. Ce qui détermine la limite entre mono domaine et multi domaine est la différence entre l'énergie libre d'une particule avec aimantation uniforme et l'énergie libre d'une aimantation non uniforme. Dans le cas d'une énergie d'anisotropie magnétocristalline faible, la taille critique se présente en fait comme une longueur d'échange, puisqu'elle est calculée comme le rapport de l'énergie d'échange et de l'énergie magnétostatique. Frei *et. al.* [26] ont réalisé ce calcul pour un ellipsoïde prolata. Le calcul est mené en supposant un ellipsoïde en configuration vortex-curling (appelé ring model). La configuration vortex impose une fermeture de flux magnétique et donc minimise l'énergie magnétostatique au détriment de l'énergie d'échange. Frei *et. al.* calculent la densité d'énergie d'échange entre moments voisins contenue sur le rayon du plan équatorial de l'ellipsoïde pour ensuite l'intégrer sur le volume de l'ellipsoïde, trouvant le résultat suivant :

$$E_{échange} = \frac{3A}{R^2} \left[ \ln \left( \frac{4R}{a} \right) - 1 \right] \quad (1.41)$$

Qui est à comparer à l'énergie magnétostatique d'un ellipsoïde monodomaine (Eq. 1.9) :

<sup>1</sup>  $T_c$  (K) : Température critique de transition ferromagnétique-paramagnétique

$$E_D = \frac{\mu_0}{2} N_c M_S^2 \quad (1.42)$$

Le rayon critique est déterminé lorsque :

$$E_{\text{échange}} = E_D \frac{\mu_0}{2} N_c M_S^2 = \frac{3A}{R_{SD}^2} \left[ \ln \left( \frac{4R_{SD}}{a_1} \right) - 1 \right] \quad (1.43)$$

Le rayon critique  $R_{SD}$  pour lequel la particule passe de mono-domaine à vortex :

$$R_{SD} = \sqrt{\frac{6\mu_0 A}{N_c M_S^2} \ln \left( \frac{4R_{SD}}{a_1} - 1 \right)} \quad (1.44)$$

Avec  $a_1$  la distance entre atomes 1<sup>er</sup> voisins.

Ces travaux montrent que dans le cas d'un ellipsoïde prolata (Figure 1.1), la configuration magnétique est mono-domaine si le rayon (équivalent à  $a$  dans l'ellipse) est inférieur à un rayon critique de transition  $R_{SD}$ . Sun *et al.* [5] appliquent ce modèle à des nanofils et calculent avec l'équation (1.44) le rayon critique d'un nanofil de cobalt, assimilé à un ellipsoïde prolata, de rapport d'aspect minimum :  $\frac{c}{a} = 10$  et trouvent  $R_{SD} = 70 \text{ nm}$ . Bertotti [38] calcule le rayon critique d'un matériau ayant un faible facteur de qualité  $Q = \frac{2K_{mc}}{\mu_0 M_S^2}$  comprenant l'énergie libre d'une particule monodomaine et d'une particule vortex. Contrairement à Frei *et al.*, la comparaison entre l'énergie des deux configurations se fait sur les termes d'anisotropie magnétocristalline, d'échange et d'énergie magnétostatique. Le rayon critique trouvé est donné par :

$$R_{SD} = \frac{2\sqrt{3}}{\sqrt{1-3Q}} l_{ech} \quad (1.45)$$

Récemment la transition entre l'état monodomaine et l'état vortex a été mesuré et simulé dans des nanoparticules de Fe de symétrie cubique [39]–[42], (Figure 1.13) et ce dans le cadre d'une collaboration entre le CEMES (Centre d'Elaboration de Matériaux et d'Etudes Structurales) et le LPCNO (Laboratoire de Physique et chimie des Nano Objets). A noter que dans un tel nanoaimant non-ellipsoïdal, l'aimantation n'est pas rigoureusement uniforme et présente une courbure du flux magnétique aux sommets du cube. De ce fait la configuration monodomaine non parfaitement uniforme est nommée « fleur » (*i.e.* « flower ») dans la littérature.

L'état vortex étant un état intermédiaire entre la structure multi domaine et la structure monodomaine, il convient de prolonger ces idées et de déterminer la limite au-dessus de laquelle la particule ne pourra plus être dans un état mono domaine. Des solutions par des méthodes numériques sont alors proposées, d'abord par Stapper en utilisant les équations de Brown pour une particule sphérique [43]. Il compare l'énergie en fonction du rayon de la sphère pour des configurations monodomaines et bi-domaines séparées par une paroi de Bloch [43]. Dans cette configuration, la largeur de paroi est un paramètre essentiel dans la description de la structure magnétique de la particule qui ne peut être déterminée que par la minimisation de l'énergie libre totale de la nanoparticule.

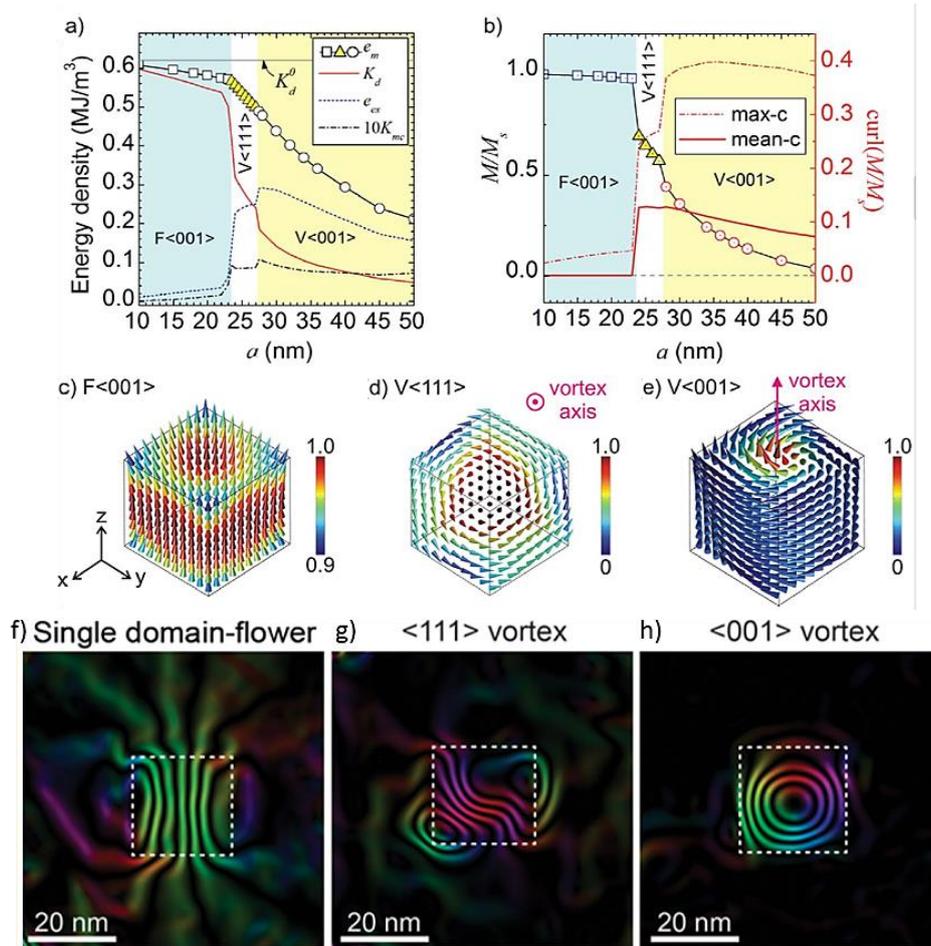


Figure 1.13 : a) densité d'énergie magnétique de l'état fondamental en fonction de la longueur de l'arête  $a$  d'un nanocube parfait de Fe massif: courbe avec les symboles : densité d'énergie totale où les carrés, triangles et ronds représentent respectivement l'état monodomaine (flower)  $\langle 001 \rangle$ , l'état vortex  $\langle 111 \rangle$  et l'état vortex  $\langle 001 \rangle$ , courbe rouge : densité d'énergie magnétostatique, courbe pointillés bleue : densité d'énergie d'échange, courbe pointillés noire : densité d'énergie magnétocristalline. b) aimantation normalisée et vorticit  de l'aimantation trac e en fonction de la taille. Configurations 3D de l'aimantation simul e dans des nanocubes : c) configuration monodomaine (flower)  $\langle 001 \rangle$  pour un cube de 20nm, d) configuration vortex  $\langle 111 \rangle$  pour un cube de 25nm, e) configuration vortex  $\langle 001 \rangle$  pour un cube de 30nm. Mesure des lignes d'induction par holographie  lectronique: f) configuration flower  $\langle 001 \rangle$ , g) configuration vortex  $\langle 111 \rangle$ , h) configuration vortex  $\langle 001 \rangle$ .

## b) Exemple de mesures locales dans des nanoparticules de configurations magn tiques non uniformes

Dans le cadre d'une collaboration entre les  quipes Nanostructures et Chimie organom tallique, et Nanomagn tisme du LPCNO d'une part, et le CEMES d'autre part, nous nous sommes int ress s   l' tude de particules isol es d'une forme originale que l'on nommera octopodes (Figure 1.14). La synth se organom tallique de ces octopodes monocristallins de FeCo a  t  r alis e par Cyril Garnero [44]. L' tude de ces nanostructures complexes a requis une approche combin e d'observations MET<sup>1</sup>, de mesures par holographie  lectronique, de tomographie  lectronique et de simulations micromagn tiques. Pour une bonne repr sentation en trois dimensions de ces

<sup>1</sup> MET : microscopie  lectronique en transmission.

nanoparticules, la tomographie électronique a d'abord été réalisée. Grâce à l'acquisition d'une série d'images STEM-HAADF<sup>1</sup> sous différents angles, compris ici entre  $-67^\circ$  et  $+71,5^\circ$ , la morphologie 3D de l'objet a pu être reconstruite. Cette tomographie a été réalisée dans le cadre du LIA<sup>2</sup>, TALEM<sup>3</sup>, par Raul Arenal à l'INA de Saragosse (Figure 1.15). La géométrie de ces octopodes peut s'inscrire dans un cube dont l'arête est de l'ordre de la centaine de nanomètre. Le cœur de symétrie cubique est d'une taille d'environ 40 nm en moyenne.

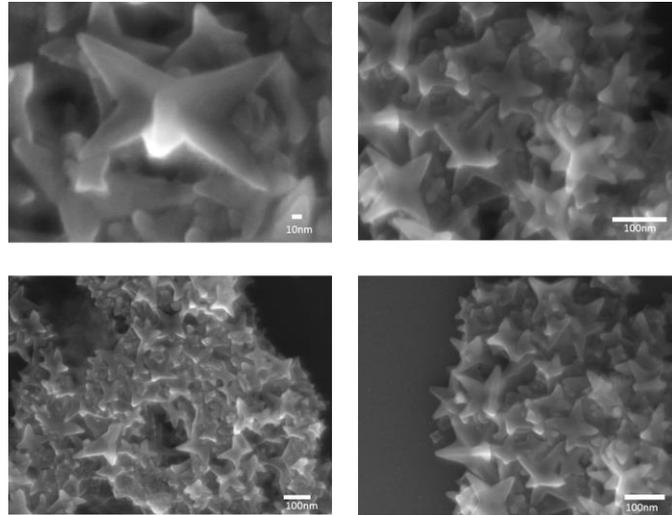


Figure 1.14 : Images MEB d'octopodes composés d'un alliage FeCo et issues d'une synthèse organométallique.

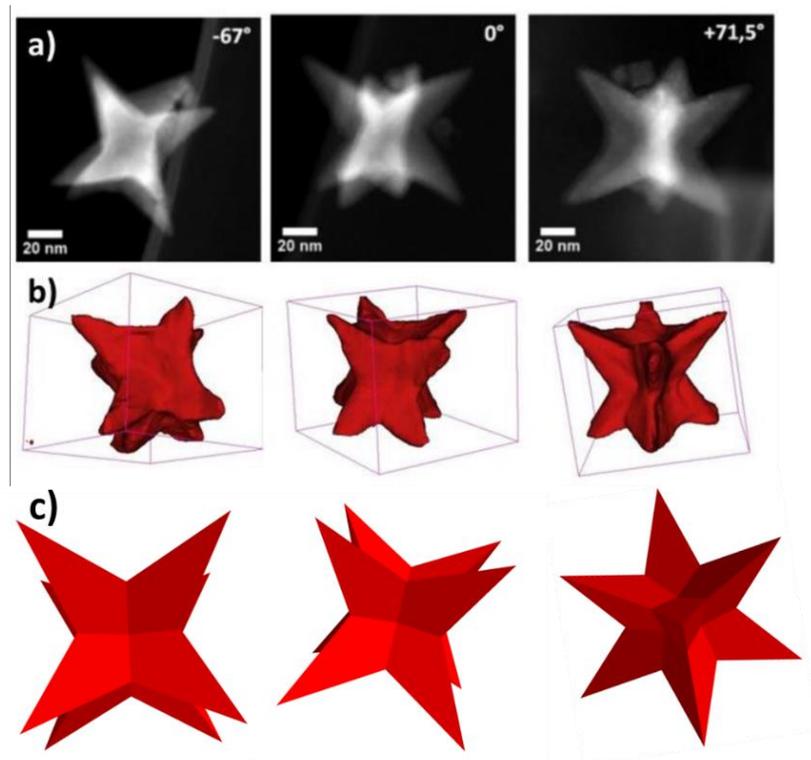


Figure 1.15 : a) images tomographie-MET d'un octopode isolé prises à différents angles d'observation. b) reconstruction 3D de la géométrie de l'octopode. c) modélisation 3D d'un octopode pour les simulations micromagnétiques.

<sup>1</sup> STEM-HAADF : Scanning Transmission Electron Microscopy - High Angle Annular Dark Field

<sup>2</sup> LIA : Laboratoire International Associé

<sup>3</sup> TALEM : Transpyrenean Associated Laboratory for Electron Microscopy

Ces objets ont été étudiés expérimentalement par holographie électronique afin de mesurer des cartographies de l'aimantation locale. La technique d'holographie est inventée et développée par Denis Gabor et publiée en 1948. Ces travaux lui vaudront le prix Nobel de physique 1971. C'est une technique permettant une étude quantitative avec une résolution spatiale atteignant quelques nm, très bien adaptée à l'observation des états rémanents de l'aimantation. C'est une méthode d'imagerie de l'induction magnétique réalisable dans un MET. Les électrons de haute énergie du faisceau incident sont déphasés du fait de l'interaction avec le potentiel vecteur traversé<sup>1</sup>, il est ainsi possible de cartographier l'induction magnétique associée à un objet magnétique. La technique d'holographie est basée sur l'interférence de deux faisceaux électroniques cohérents afin de produire un hologramme. Ce signal doit être traité afin de reconstruire le déphasage accumulé par le faisceau ayant traversé l'échantillon. Différents modes d'acquisitions sont connus. Les mesures présentées ici ont été réalisées avec le mode off-axis electron holography dont l'illustration et les détails sont présentés en Annexe 2. On notera particulièrement que les données issues de mesures par holographie électronique sont des images de déphasage magnétique, images qui peuvent éventuellement être dérivées afin d'obtenir les cartographies d'induction. L'opération de dérivation augmentant le bruit expérimental, les images de phases sont souvent seulement présentées. Il est à noter que la mesure n'est sensible qu'aux composantes magnétiques dans le plan de l'échantillon. Les cartographies d'induction obtenues, et plus spécifiquement les images de phases associées, ont été confrontées à des cartographies magnétiques simulées. Les simulations sont effectuées le plus fidèlement possible aux mesures en suivant les dimensions des objets mesurables sur les clichés MET (Figure 1.16). Ces simulations ont été réalisées avec le code micromagnétique OOMMF<sup>2</sup> (Annexe 6) [42] et consistent à cartographier l'induction aussi bien à l'intérieur qu'à l'extérieur d'un octopode. Les paramètres utilisés sont ceux de l'alliage fer-cobalt massif [45]:  $A = 1,7 \cdot 10^{-11} J \cdot m^{-1}$ ,  $M_S = 1950 kA \cdot m^{-1}$ ,  $K_{mc} = 0 J \cdot m^{-3}$ . L'espace simulé représente  $200 \times 200 \times 200 nm^3$  et est segmenté en cellules cubiques de  $1 nm^3$ . La simulation est réalisée en minimisant l'énergie magnétique par la méthode du gradient conjugué en différences finies. La géométrie simulée est représentée Figure 1.15.c). Précisons tout de même que les facettes des branches ne sont parfaitement planes dans la simulation, contrairement à l'image Figure 1.15, mais crénelées du fait de la discrétisation de l'espace.

Au préalable de la mesure par holographie électronique, la même grille de microscopie comportant les octopodes a été observée dans un MET conventionnel. Dans ce cas, l'échantillon a été exposé au champ magnétique de la lentille objectif de ce microscope, d'une amplitude d'environ  $1T$  perpendiculairement au plan de la grille, *i.e.* la direction  $Oz$ . Il est à noter que le microscope ensuite utilisé pour les mesures d'holographie électronique induit, quant à lui, un champ magnétique négligeable sur l'échantillon. L'histoire magnétique de ces étoiles est alors prise en compte dans les simulations: en partant d'une configuration magnétique où chaque moment est orienté aléatoirement, l'aimantation est relaxée, puis, un champ externe de  $1T$  est appliqué le long de la direction  $Oz$ . L'état rémanent consécutif est comparé avec les mesures. En sortie d'une simulation, sont obtenues les cartographies 3D de l'aimantation et du champ dipolaire, qui sont alors sommés pour obtenir l'induction. De façon à obtenir le même résultat qu'expérimentalement, il est nécessaire d'intégrer l'induction selon la direction du faisceau électronique  $Oz$ . Cette intégration est effectuée par un algorithme d'Euler codé avec Matlab. L'image de phase est enfin calculée par un programme codé dans le logiciel Digital Micrograph, Gatan.

Ces octopodes de symétrie cubique peuvent être classés en trois groupes correspondant chacun à un axe de zone, *i.e.* axe d'observation (Figure 1.16), correspondant à trois positions d'étoiles

---

<sup>1</sup> effet Aharonov-Bohm

<sup>2</sup> OOMMF : Object Oriented Micro-Magnetic Framework

sur la grille de microscopie. Ces trois orientations sont nommées par la direction cristalline correspondant à l'axe de zone. Un hologramme pour chaque groupe a été réalisé par Christophe Gatel, CEMES, sur un Hitachi HF3300 (dit I2TEM).

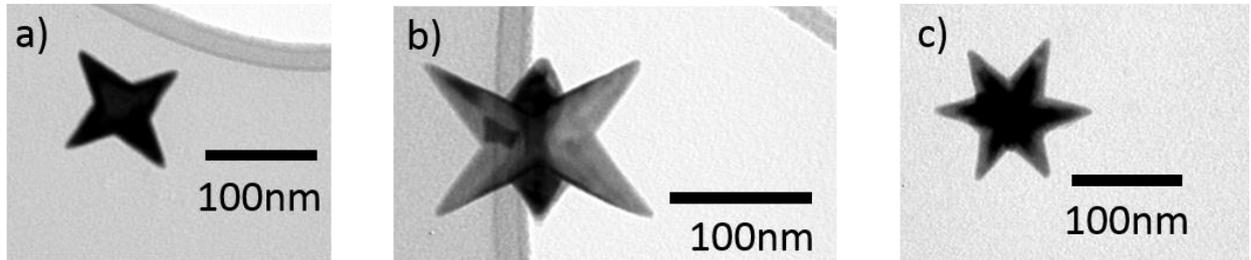


Figure 1.16 : clichés MET des octopodes vues sous les trois axes de zone différents : a)  $\langle 001 \rangle$ , b)  $\langle 110 \rangle$  et c)  $\langle 111 \rangle$ .

- **axe de zone  $\langle 001 \rangle$**

Comme évoqué précédemment la mesure holographique est en fait une projection de tous les moments dans un même plan perpendiculaire à la direction z. Les acquisitions d'hologrammes dans cet axe de zone (Figure 1.16.a) n'ont révélé aucun déphasage dû au magnétisme. La configuration magnétique simulée est représentée Figure 1.17.a. Cette configuration se rapproche de l'état « flower » du nanocube (Figure 1.13), avec une forte rémanence suivant  $Oz$ . La Figure 1.17 indique que la projection de l'induction suivant z donne une résultante nulle. Cela signifie que les électrons incidents ont accumulés un déphasage nul dans le cœur de l'octopode (induction suivant z), et des déphasages qui se compensent lors de la traversée de deux branches successives.

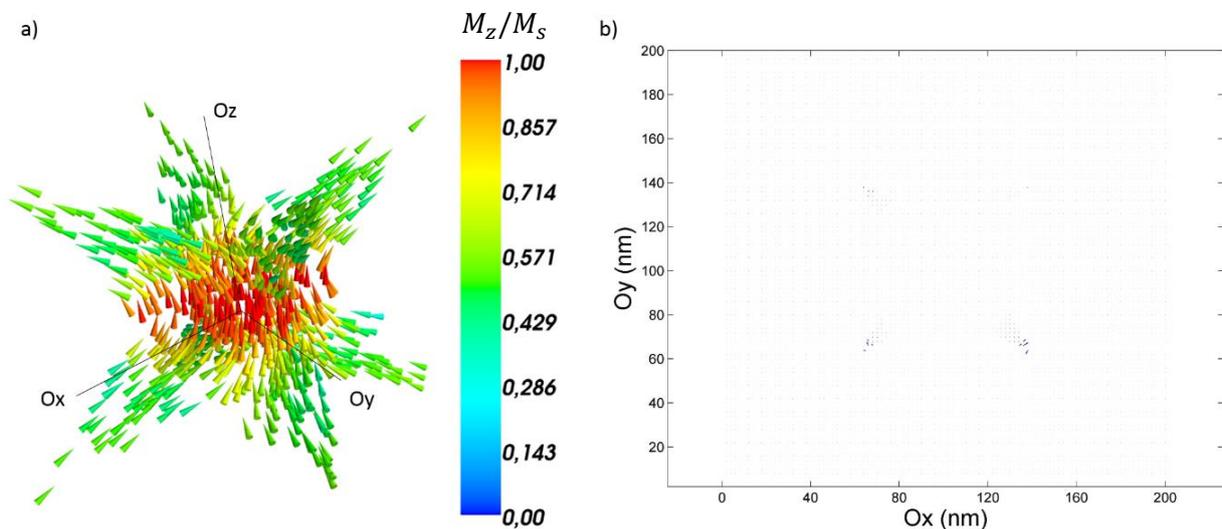


Figure 1.17 : a) cartographie 3D simulée de l'aimantation d'un octopode à la rémanence suite à une saturation par un champ externe de 1T suivant l'axe  $Oz$ , i.e  $\langle 001 \rangle$  (échelle de couleurs :  $M_z/M_s$ ). b) cartographie 2D des composantes de l'induction magnétique  $B_x$  et  $B_y$  issue d'une intégration de la configuration 3D selon la direction z de propagation des électrons.

Le signal mesuré par holographie étant nul, les images issues des données expérimentales ne présentent pas d'intérêt et ne sont donc pas présentées concernant cet axe de zone. Nous concluons tout de même sur un accord entre simulations et mesures.

- **Axe de zone <110>**

Rappelons qu'avant de mesurer les hologrammes, cet octopode a subi un champ appliqué de 1 T suivant la direction cristalline <110>, i.e. suivant la direction perpendiculaire à Figure 1.16.b. La cartographie de l'induction mesurée montre que les moments s'alignent suivant les directions des branches afin de minimiser les effets polaires sur la surface.

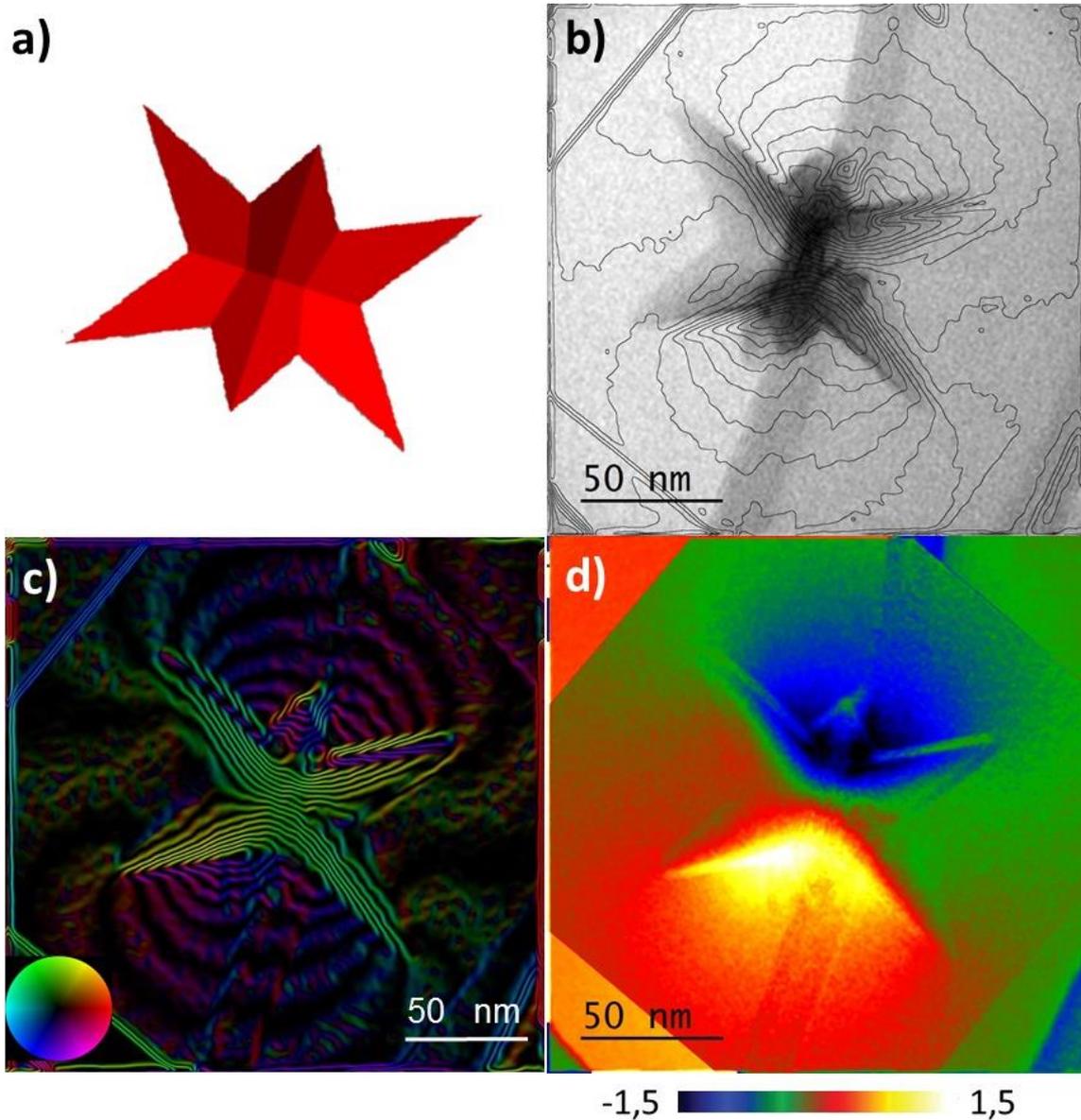


Figure 1.18 : L'octopode mesuré est celui présenté Fig. 1.17.b). a) reconstruction 3D de la géométrie de l'octopode dans cette orientation. b) image MET d'amplitude superposée aux lignes d'induction mesurées. c) Cosinus de l'image de phase expérimentale correspondant aux lignes d'induction. Le cercle coloré indique la direction de l'induction. d) image de phase magnétique mesurée.

Les simulations n'ont pas abouti sur un accord satisfaisant avec les mesures et demandent des investigations supplémentaires avant d'être présentées : la configuration magnétique mesurée ne correspond pas à l'histoire magnétique de l'objet. D'autres mesures seront effectuées par la suite afin

de connaître la reproductibilité de ces images de phase et d'avoir des indices supplémentaires sur l'aimantation de ces octopodes de façon à améliorer les simulations.

- **Axe de zone  $\langle 111 \rangle$**

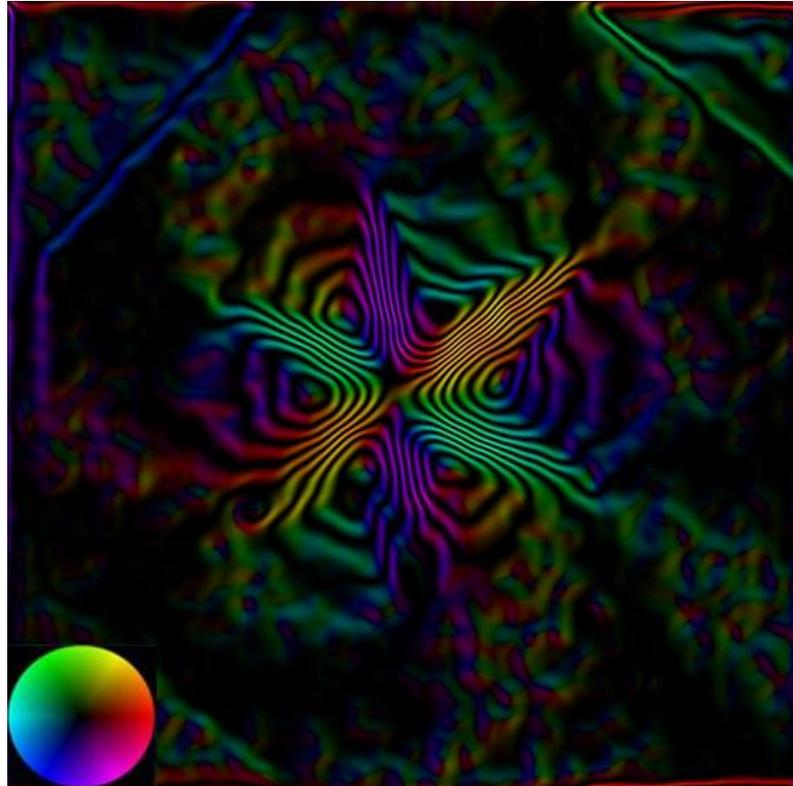


Figure 1.19 : L'octopode mesuré est celui présenté Figure 1.16.c. Cosinus de l'image de phase expérimentale correspondant aux lignes d'induction. Le cercle coloré indique la direction de l'induction.

Les résultats présentés Figure 1.19 et Figure 1.20 ont été obtenus sur l'octopode présenté Figure 1.16.c. Les mesures semblent montrer que les moments sont colinéaires aux bras de l'octopode. Les lignes de champ indiquent un couplage entre bras voisins. Les deux branches parallèles au faisceau d'électron ne sont pas visibles sur les mesures. Les simulations révèlent que ces deux bras sont saturés dans la direction Oz, direction d'application du champ avant la mesure à la rémanence. Les profils comparés sur les images de phase mesurées/calculées présentés Figure 1.20.g, montrent un très bon accord entre la simulation et la mesure, permettant de valider la configuration de l'aimantation dans cet octopode. La simulation 3D indique que le flux magnétique boucle d'une branche à l'autre, donnant ainsi une configuration exotique au cœur de l'octopode visible Figure 1.20.h. Cette configuration est de symétrie  $C_3$  d'axe z tandis que les moments s'orientent progressivement selon z en approchant le centre.

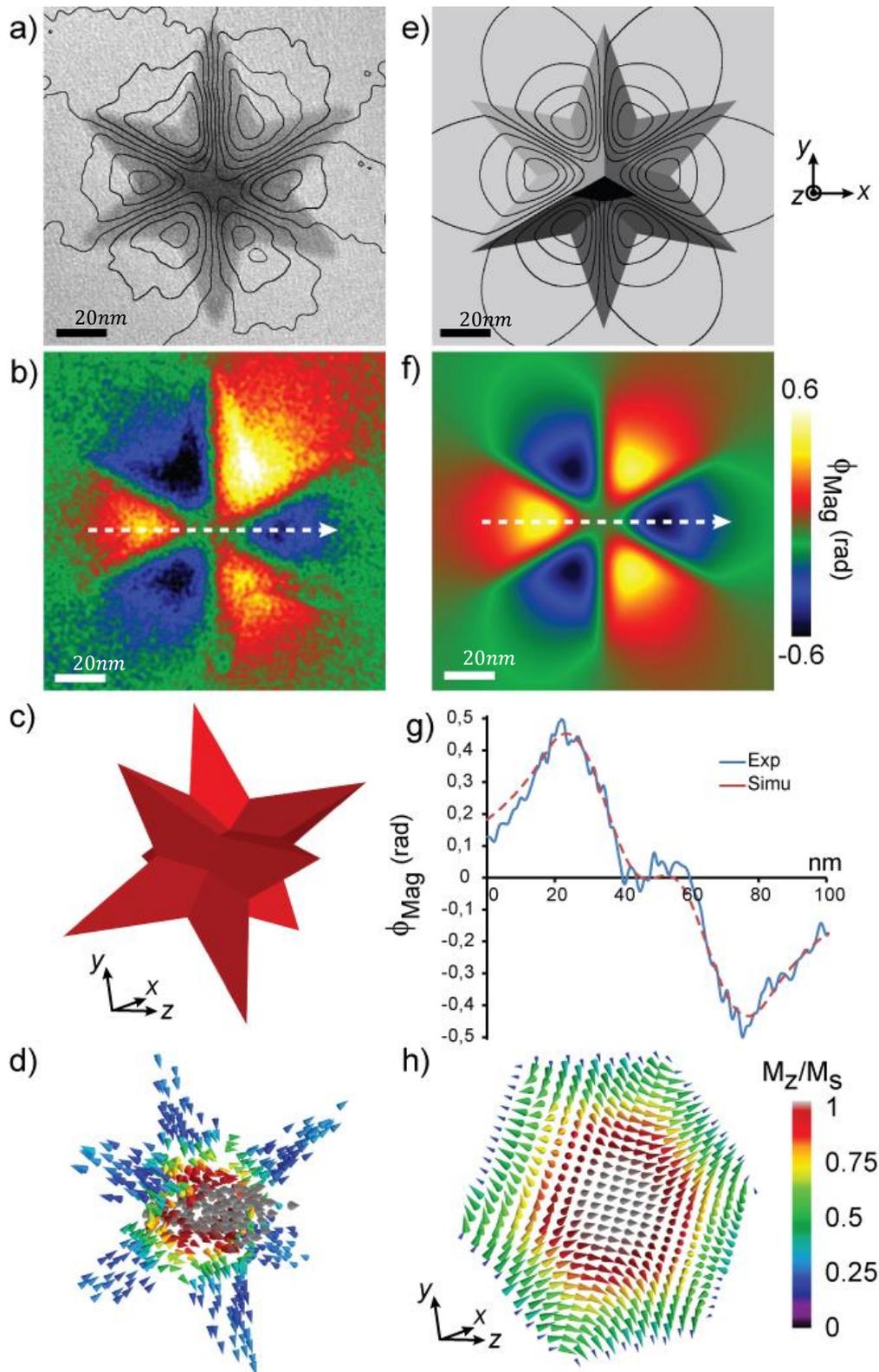


Figure 1.20 : a) image d'amplitude superposée aux lignes d'induction mesurées et e) simulées. b) image de phase magnétique mesurée et f) simulée. c) octopode simulé. Barre d'échelle : 20nm. g) profils expérimental et simulé le long de la direction indiquée sur les images b) et f). d) configuration magnétique 3D simulée de l'aimantation. h) coupe de d) perpendiculaire à la direction z (i.e.  $\langle 111 \rangle$ ) de l'octopode qui le sépare en deux parties égales.

Ces mesures illustrent la complexité que peut prendre la configuration de l'aimantation lorsqu'une particule n'est pas monodomaine. Il est tout de même difficile de parler de domaines

concernant cette configuration, qui comporte bien des zones d'aimantation uniformes mais qui ne sont pas délimitées par une paroi conventionnelle dite de Bloch ou de Néel. Cette paroi est actuellement étudiée par l'équipe Nanomagnétisme du LPCNO. Le calcul du nombre topologique de cette distribution d'aimantation donne -2 et semble s'apparenter à un  $4\pi$  anti-vortex. Cependant même si cette distribution est abordée *via* des modèles adaptés aux distributions d'aimantation 2D, elle est stabilisée par une organisation de spin en trois dimensions.

## B. Magnétisme d'un nanofil

### 1. Champ dipolaire d'un nanofil

Lorsque la géométrie s'écarte de la forme ellipsoïdale, comme pour un nanofil cylindrique, la première difficulté consiste à calculer le facteur de désaimantation dû à la forme de l'objet. La première étape est le calcul sur l'axe du champ dipolaire rayonné par un cylindre uniformément aimanté, présenté en Annexe 4. Cette grandeur est directement liée au champ démagnétisant d'un cylindre uniformément aimanté.

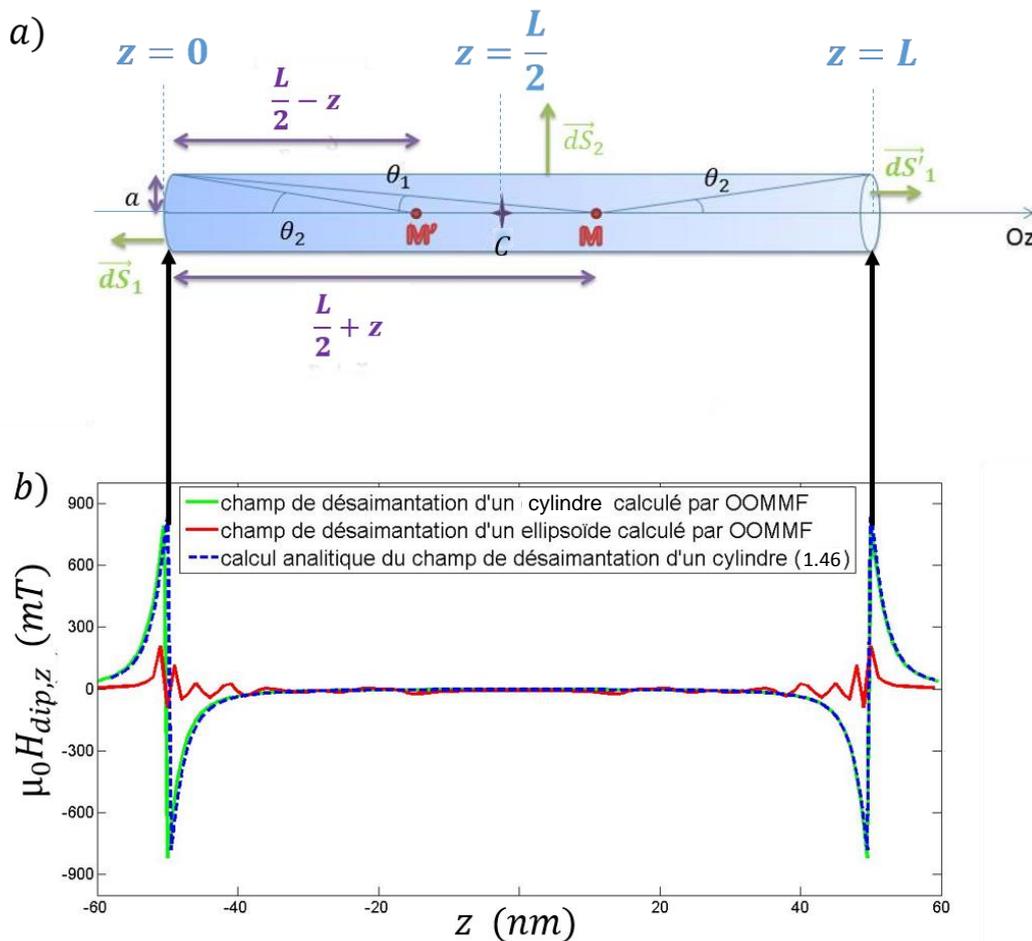


Figure 1.21 :a) illustration du calcul du champ dipolaire rayonné par un cylindre de Co ( $\mu_0 M_s = 1759 \text{ mT}$ ) aimanté selon  $+z$  de rapport d'aspect 16.6 de 6nm de diamètre. b) champ dipolaire  $H_{dip,z}$  calculé par l'équation (1.46) (bleu), simulé avec OOMMF pour un cylindre uniformément aimanté avec une taille de cellule de  $1 \text{ nm} \times 1 \text{ nm} \times 1 \text{ nm}$  (vert), simulé avec OOMMF pour un ellipsoïde uniformément aimanté de même rapport d'aspect que le cylindre avec une taille de cellule de  $1 \text{ nm} \times 1 \text{ nm} \times 1 \text{ nm}$  (rouge).

$$\mu_0 H_{dip,z}(z) = \begin{cases} \frac{\mu_0 M_S}{2} \left( \frac{z + \frac{L}{2}}{\sqrt{a^2 + \left(z + \frac{L}{2}\right)^2}} - \frac{z - \frac{L}{2}}{\sqrt{a^2 + \left(z - \frac{L}{2}\right)^2}} \right) & \text{à l'extérieur du cylindre} \\ \frac{\mu_0 M_S}{2} \left( \frac{z + \frac{L}{2}}{\sqrt{a^2 + \left(z + \frac{L}{2}\right)^2}} - \frac{z - \frac{L}{2}}{\sqrt{a^2 + \left(z - \frac{L}{2}\right)^2}} - 2 \right) & \text{à l'intérieur du cylindre} \end{cases} \quad (1.46)$$

Les Figure 1.21 et Figure 1.22 montrent explicitement que le champ dipolaire axial interne, *i.e.* le champ démagnétisant, n'est pas homogène le long de l'axe  $z$ , en particulier lorsque le rapport d'aspect devient inférieur à 10 (Figure 1.22). Ceci constitue la principale différence entre un cylindre et un ellipsoïde uniformément aimanté. Théoriquement, le champ dipolaire d'un ellipsoïde à fort rapport d'aspect ( $\frac{c}{a} > 10$ ) (courbe rouge) doit être faible et uniforme :  $N_c = 0.097$  ( $\frac{c}{a} = 16.6$ ), ce qui donne un champ démagnétisant :  $\mu_0 H_d = -N_c M_S = -170 \text{ mT}$ . Cependant, du fait de la discrétisation de l'espace rendant l'ellipsoïde imparfait, un champ démagnétisant qui n'est pas en accord avec celui attendu théoriquement émerge aux extrémités avec localement un champ de  $-210 \text{ mT}$ .

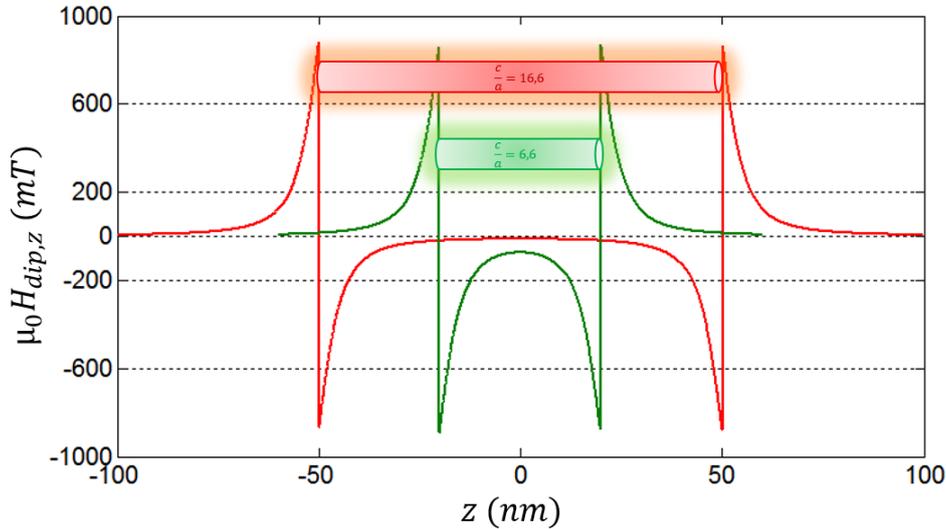


Figure 1.22 : champ dipolaire  $H_{dip,z}(z)$  émis par un cylindre de Co uniformément aimanté suivant  $z$ , calculé à partir de l'équation (1.46). En rouge : cylindre de rapport d'aspect 16.6, en vert : cylindre de rapport d'aspect 6.6.

Sun *et. al* [5] affirment qu'à partir d'un rapport d'aspect de  $\frac{c}{a} = 10$  le cylindre peut être considéré comme un cylindre infini. Cependant cet argument reste discutable puisque cette inhomogénéité peut avoir des effets non négligeables sur la valeur que prend le champ de nucléation d'une part et sur le mode de retournement d'autre part. Ainsi les calculs du champ dipolaire du cylindre de rapport d'aspect 16.6 ( $L = 100 \text{ nm}$  et  $a = 3 \text{ nm}$ ) donnent un champ presque nul au centre et de  $-0.87 \text{ T}$  aux extrémités en  $z = \pm \frac{L}{2}$ . Pour un rapport d'aspect réduit à 6.6 (Figure 1.23), le champ au centre n'est clairement pas nul alors que la valeur aux extrémités reste inchangée.

## 2. Mode de retournement d'un nanofil

La question qui vient naturellement suite aux arguments précédents serait donc : qu'en est-il du comportement magnétique d'un cylindre fini monodomaine ? Plus précisément, quel est son mode de retournement et comment est affecté le champ de nucléation ?

Plusieurs contributions ont été apportées à ces questions. Pour le cas du cylindre fini, les observations expérimentales et simulations micromagnétiques s'imposent face aux modèles théoriques qui peinent à analyser de façon exhaustive le retournement de l'aimantation dans un cylindre fini.

#### a) Travaux théoriques

Les modèles théoriques rendent rarement compte des résultats expérimentaux. Leur rareté est explicite quant à la difficulté de résoudre analytiquement des problèmes de physique non linéaires en présence de conditions de bords. Et quand bien même, lorsque certains articles se démarquent et concluent sur des résultats remarquables par des méthodes analytiques, un fort désaccord persiste avec les données issues d'expériences du fait de l'influence des imperfections sur la coercivité et la nucléation. Ce désaccord est connu comme le paradoxe de Brown et reste ignoré dans la majorité des articles théoriques de magnétisme. Il existe tout de même des contre-exemples telle que la publication de A. Arrott, B. Heinrich et A. Aharoni [47] en 1979, dans laquelle les auteurs montrent que le retournement de l'aimantation dans un cylindre fini peut s'effectuer par la nucléation et la propagation d'un point de Bloch, ce qui est mesuré et simulé par S. Da Col *et al.* en 2014 lors du retournement de l'aimantation d'un nanofil [48]. A ce jour, les contributions majeures concernant les modes de retournement de l'aimantation dans un cylindre fini sont issues du micromagnétisme computationnel.

#### b) Modélisations micromagnétiques

En 2001, Hertel montre par simulations micromagnétiques, basées sur une résolution de l'équation LLG par une méthode de type éléments finis, que le renversement de l'aimantation d'un cylindre fini se fait par propagation de une ou deux parois d'une épaisseur  $\delta_B$  qui nucléé(ent) à chaque extrémité [49]. Différentes géométries de parois sont calculées par cette méthode. En 2002, Hertel publie d'autres résultats de simulations qui montrent la façon dont se propagent des parois transverses le long de l'axe du nanofil. Ce mode est nommé mode transverse [50], il apparaît dans des objets avec une longueur  $L/2 \gg \delta_B$  et peut être considéré comme le mode de retournement local analogue au mode cohérent. Hertel observe également un mode local analogue au mode curling pour lequel le retournement s'effectue par nucléation de vortex à une ou chaque extrémité du cylindre puis propagation le long de l'axe. Enfin dans un article de 2004, Hertel et Kirschner publient un résultat de simulation dans laquelle ils observent la propagation d'un point de Bloch [51]. Cette dernière publication met en lumière les critères de transition d'un mode de retournement à un autre en simulant un cône. Ainsi le diamètre se réduit à mesure que la paroi se propage ce qui engendre le changement de géométrie de la paroi.

A l'aide d'un modèle accompagné de simulations, Landeros *et al.* [52] montrent en 2007 que le mode de retournement d'un cylindre fini est local, et suivant son diamètre (*cf.* eq. 1.34), soit transverse soit vortex. Dans ces modes, le champ de nucléation évolue en fonction de la géométrie des objets, contrairement au mode cohérent (Figure 1.9). Par la suite Lavin *et al.* [53] montrent que l'aspect de la courbe  $H_N(\gamma)$ , avec  $H_N$  le champ de nucléation et  $\gamma$  l'angle d'application du champ externe par rapport à la direction de facile aimantation, est le même pour le retournement cohérent et pour le retournement transverse, seule l'amplitude de ce champ est affecté. En 2008, Allende *et al.* [54] montrent, à l'aide de simulations Monte-Carlo, que lorsque le diamètre du cylindre est inférieur au rayon critique (1.34) le mode de retournement sera un mode transverse. Lorsque le diamètre

devient supérieur au rayon critique (1.34) le renversement se fait par la nucléation de deux vortex, un à chaque extrémités, et propagation de ces vortex qui jouent le rôle de paroi de domaine. Ces vortex étant chiraux ils s'annihilent lorsqu'ils se rencontrent au centre du cylindre. Les auteurs montrent également que l'angle d'application du champ peut également influencer le mode de retournement. Au-delà de  $60^\circ$  d'inclinaison avec l'axe facile et un diamètre correspondant théoriquement aux conditions du mode curling, ils observent une transition depuis le mode transverse vers le mode vortex.

### c) Mesures et expériences

En 1996, W. Wernsdorfer *et al.* ont réussi la mesure de l'évolution de la coercivité en fonction de l'angle  $\gamma$  d'application du champ sur des nanofils isolés de différents diamètres [20]. Ces mesures, réalisées avec un nano-SQUID, révèlent un mode de retournement par propagation de vortex d'après l'allure de la courbe  $H_c(\gamma)$ . Le mode de retournement non local comme le curling est écarté du fait du très faible volume d'activation déduit d'ajustements itératifs, à l'aide de la formule de Sharrock (1.32), effectués sur les courbes  $H_c(T)$  issues de mesures à différentes températures [21], [22].

En 2011, les auteurs M. Vazquez *et al.* [27] ont relevé, à partir d'expériences et de simulations micromagnétiques, un mode de retournement local, appelé mode transverse, dans des nanofils de Co de 35nm de diamètre. Ils montrent que les dépendances en angle du retournement par propagation de paroi transverse et le mode cohérent sont identiques.

Concernant le cylindre fini, la conclusion qui s'impose à l'issue de cette courte revue de la littérature, serait un retournement de l'aimantation nécessairement local du fait de l'inhomogénéité de l'aimantation, du type paroi transverse ou vortex suivant le diamètre, et, contrairement à la théorie Stoner-Wohlfarth pour des objets de dimensions similaires (Figure 1.9), le champ de nucléation dépend du rayon du cylindre, au même titre que le mode de retournement.

## II. Assemblée de nanofils

### A. Interaction en champ moyen

#### 1. Description phénoménologique

Un nanofil appartenant à une assemblée est plongé dans le champ rayonné par cette assemblée. Par conséquent, le champ dipolaire ressenti par un nanofil est composé de la somme du champ externe et du champ dipolaire externe rayonné par l'assemblée [55]. Le champ dipolaire est ici déterminé dans l'approximation du champ moyen dont le principe est de considérer l'ensemble des interactions comme équivalent à un champ spatialement uniforme dont l'amplitude est pondérée par  $m = \frac{M}{M_s}$ .

Considérons un réseau parfait 2D de nanofils identiques disposés verticalement. Dans le cadre de la théorie du champ moyen, la principale signature des interactions entre nanofils est le cisaillement du cycle d'hystérésis mesuré dans la direction  $z$  perpendiculaire au réseau, *i.e.* parallèle aux nanofils. Ce cisaillement provient du fait que l'amplitude du champ dipolaire progresse à chaque retournement

de l'aimantation d'un nanofil. La progression du champ moyen rayonné par l'assemblée étant opposée au champ externe, une itération supplémentaire de champ externe est nécessaire pour observer de nouveaux renversements [56]–[58]. Ainsi, en écrivant le champ total :

$$\vec{H}_{tot}(\vec{M}) = \vec{H}_{int} + \vec{H}_{ext} = -\vec{N}_{int} \cdot \vec{M} + \vec{H}_{ext} \quad (1.47)$$

$\vec{H}_{int}$  le champ dipolaire externe généré par l'assemblée de nanofils,  $\vec{N}_{int}$  le tenseur de désaimantation dû aux interactions dipolaires interfils et  $\vec{H}_{ext}$  le champ externe appliqué.

En dérivant (1.47),  $\frac{d\vec{H}_{tot}}{dM} = -\vec{N}_{int}$ , si bien que la pente du cycle d'hystérésis obtenu selon  $z$ , c'est-à-dire la susceptibilité différentielle, s'exprime comme l'inverse du facteur de désaimantation dû aux interactions :

$$\frac{dM_z}{dH_{tot,z}} = -\frac{1}{N_{int,zz}} \quad (1.48)$$

Cependant connaître le facteur de désaimantation  $N_{int,zz}$  nécessite le calcul du champ dipolaire externe généré par l'assemblée de nanofils  $H_{int,zz}$ . Par analogie avec le champ démagnétisant exprimé comme le produit d'un tenseur démagnétisant multiplié par l'aimantation, le champ d'interaction peut être formulé comme le facteur démagnétisant de forme de l'assemblée multiplié par l'aimantation moyenne du réseau :

$$H_{int,zz} = -N_{int,zz} M_z^{réseau} \quad (1.49)$$

Considérons le réseau de nanofils comme un film mince poreux avec les mêmes dimensions que le réseau ou film poreux. On peut alors écrire :

$$M^{réseau} = \pm \frac{V_{réseau}}{V_{film}} (f_1 - f_2) M_S^{NF} \quad (1.50)$$

Avec  $f_1$  et  $f_2$  les fractions de nanofils respectivement d'aimantation  $+M_S \vec{e}_z$  et  $-M_S \vec{e}_z$ ,  $(f_1 - f_2) = M/M_S^{NF}$  l'aimantation moyenne normalisée avec  $M$  l'aimantation moyenne de l'ensemble des nanofils,  $V_{réseau}$  et  $V_{film}$  respectivement le volume de matière magnétique contenu dans le réseau et dans le film continu. Le rapport  $\frac{V_{réseau}}{V_{film}} = P$  est appelé taux de compacité, avec  $P \rightarrow 0$  pour un fil isolé et  $P = 1$  pour un film continu. Le calcul du taux de compacité d'un réseau triangulaire de cylindres de rayon  $R$  et distants (bord à bord) de  $d$  est  $P = \frac{4\pi}{2\sqrt{3}} \frac{R^2}{(2R+d)^2}$  (Annexe 3).

Combiner (1.49) et (1.50) permet de déduire une expression du champ d'interaction :

$$\vec{H}_{int} = -P (f_1 - f_2) \vec{M}_S^{NF} = -P \vec{M} \quad (1.51)$$

En substituant dans (1.47) et en dérivant l'expression on déduit la susceptibilité différentielle :

$$\frac{dM}{dH} = -\frac{1}{P} \quad (1.52)$$

La pente du cycle d'hystérésis est donc directement égale à l'inverse du taux de compacité du réseau. Les expressions finales (1.48) et (1.52) laissent conclure que le taux de compacité et le facteur de désaimantation sont égaux pour un réseau infini de nanofils :

$$N_{int,zz} = P \quad (1.53)$$

## 2. Calcul analytique de $H_{int,zz}$ et $N_{int,zz}$

Afin d'évaluer les interactions au sein d'un réseau de nanofils, le champ dipolaire de l'assemblée est ici calculé explicitement afin de déduire  $N_{int,zz}$  en posant :

$$\vec{H}_{int} = -\vec{N}_{int} \vec{M}^{réseau} \quad (1.54)$$

L'objectif est alors de déterminer quels paramètres du réseau, tels que  $P$ , influencent  $N_{int,zz}$  et donc l'intensité des interactions. La Figure 1.23 illustre et indexe les grandeurs nécessaires au calcul de l'interaction entre deux cylindres. Les hypothèses de départ consistent à considérer le réseau 2D de nanofils comme infini dans le plan ( $xOy$ ), les nanofils sont approximés comme des macrospins,  $N_c = 0$  et le mode de retournement est cohérent. Dans un premier temps explicitons l'expression la plus générale du champ d'interaction dipolaire interfil [32], [57], [59] :

$$\vec{H}_{int} = \frac{1}{4\pi r_{ij}^5} [3(\vec{m}_j \cdot \vec{r}_{ij}) \cdot \vec{r}_{ij} - r_{ij}^2 \cdot \vec{m}_j] - \frac{1}{3} \vec{m}_j \delta_{\vec{r}_i, \vec{r}_{ij}} \quad (1.55)$$

Les notations utilisées dans cette expression sont celles indiquées sur la Figure 1.23.  $\delta_{\vec{r}_i, \vec{r}_{ij}}$  est le symbole de Kronecker qui vaut 1 quand  $\vec{r}_{ij} = \vec{r}_i$  et 0 sinon.  $\vec{m}_j$  est l'aimantation du nanofil  $j$  qui rayonne le champ dipolaire.

Le modèle utilisé ici a été mis au point par Clime *et al.* [60] puis repris et généralisé au réseau triangulaire par Carignan *et al.* [56]. L'idée ici est de sommer la contribution au champ dipolaire de chacun des nanofils. Le réseau, étant considéré comme infini dans le plan ( $xOy$ ), nous amène à une infinité de nanofils apportant une contribution au champ dipolaire. Le calcul exact du champ dipolaire ne peut pas être abordé tel quel par des méthodes computationnelles, c'est pourquoi, pour la résolution du calcul, l'espace sera séparé en deux parties, l'une dite discrète pour laquelle la contribution au champ dipolaire de chaque nanofil est prise en compte, et la seconde, considérée comme un continuum, dont la contribution au champ d'interaction est formulée comme une intégrale.

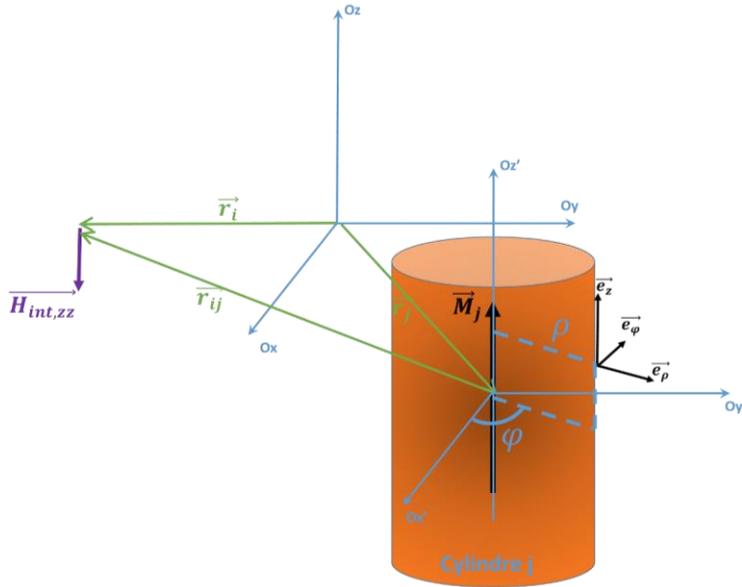


Figure 1.23 : illustration du calcul du champ dipolaire rayonné par un fil. L'observateur est à l'origine du repère, le cylindre  $j$  est la source.  $\vec{r}_{ij} = \vec{r}_i - \vec{r}_j$ .

Le potentiel magnétique induit par le cylindre  $j$  sur un second cylindre  $i$  est repris de l'Annexe 4 :

$$\phi_{m_j}(z) = \frac{M_S}{4\pi} \int_0^{2\pi} \int_0^a \left( \frac{\rho}{\sqrt{\rho_{ij}^2 + \left(z + \frac{L}{2}\right)^2}} - \frac{\rho}{\sqrt{\rho_{ij}^2 + \left(z - \frac{L}{2}\right)^2}} \right) \rho d\rho d\varphi \quad (1.56)$$

Où  $\rho_{ij}$  est la distance entre deux nanofils  $i$  et  $j$  dans le plan  $(xOy)$ .

$$\phi_{m_j}(z) = \frac{M_S}{2} \left( \frac{a^2}{2\sqrt{\rho_{ij}^2 + \left(z + \frac{L}{2}\right)^2}} - \frac{a^2}{2\sqrt{\rho_{ij}^2 + \left(z - \frac{L}{2}\right)^2}} \right) \quad (1.57)$$

$$\frac{\partial \phi_{m_j}(z)}{\partial z} \vec{e}_z = \vec{H}_{dip} = \frac{M_S}{4} \left( \frac{a^2 \left(z + \frac{L}{2}\right)}{\left(\rho_{ij}^2 + \left(z + \frac{L}{2}\right)^2\right)^{3/2}} - \frac{a^2 \left(z - \frac{L}{2}\right)}{\left(\rho_{ij}^2 + \left(z - \frac{L}{2}\right)^2\right)^{3/2}} \right) \quad (1.58)$$

Cette dernière expression représente la composante selon la direction  $z$  du champ dipolaire émis à une distance  $\rho_{ij}$  dans le plan  $(xOy)$  d'un nanofil  $j$  uniformément aimanté. Dans ce cas le facteur de désaimantation dû au champ rayonné par l'assemblée sur le fil  $i$  est :

$$N_{int,zz}(z) = \frac{1}{M_S} \sum_{j \neq i} \frac{\partial \phi_{m_j}(z)}{\partial z} \quad (1.59)$$

Ce calcul, repris de [61], est détaillé dans l'Annexe 5.

La contribution au champ dipolaire de la région discrète sera évaluée grâce à la somme suivante :

$$\frac{N_{int,zz}^{(1)}(\vec{r}_1 = 0)}{P} = \sum_{m_j=1}^{m_{max}} \frac{m_j s}{(m_j^2 + s^2)^{\frac{3}{2}}} \quad (1.60)$$

Avec  $m_j = \frac{\rho_j}{d}$  ou  $\rho_{max}$  est le diamètre de la zone discrète et  $s = \frac{L}{2d}$ .

La contribution de la zone considérée comme continue sera évaluée comme le champ dipolaire rayonné par l'assemblée retranchée de la région discrète [60]:

$$\frac{N_{int,zz}^{(2)}(\vec{r} = 0)}{P} = \frac{s}{\sqrt{m_{max}^2 + s^2}} \quad (1.61)$$

Ce qui nous amène, en sommant la contribution des deux régions à :

$$\frac{N_{int,zz}(\vec{r} = 0)}{P} = \sum_{m_j=1}^{m_{max}} \frac{m_j s}{(m_j^2 + s^2)^{\frac{3}{2}}} + \frac{s}{\sqrt{m_{max}^2 + s^2}} \quad (1.62)$$

Cette équation est tracée Figure 1.24, superposée à la contribution de chacune des deux régions.

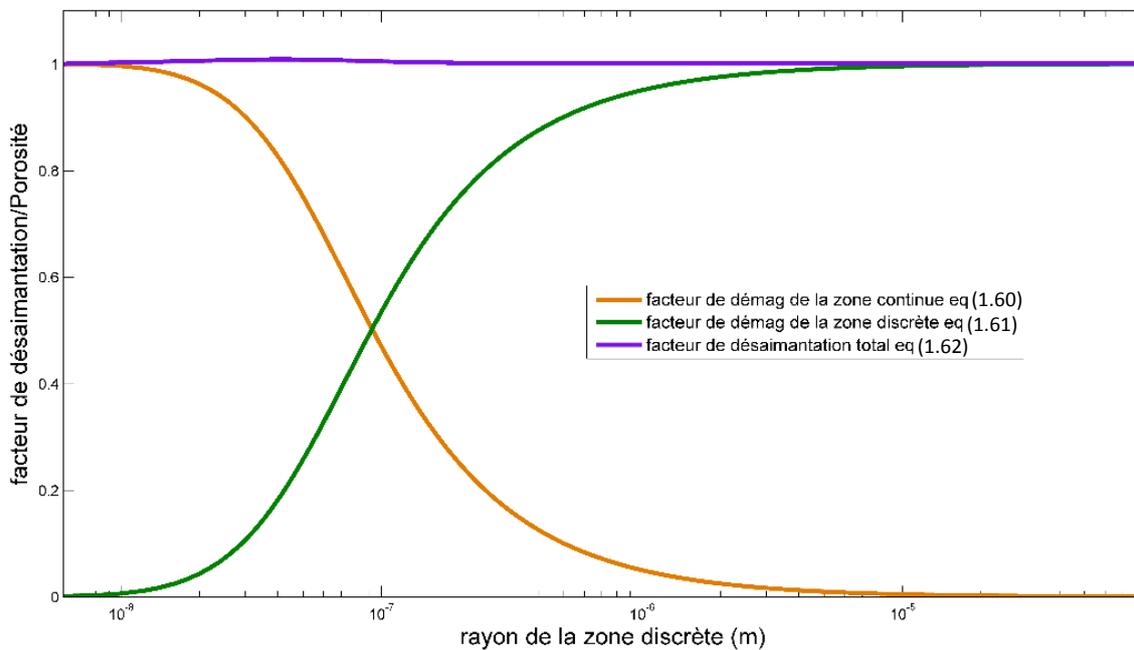


Figure 1.24 : représentation des équations (1.60), (1.61) ainsi que (1.62).

La Figure 1.24 montre que

$$\frac{P}{N_{int,zz}} = 1 \quad (1.63)$$

Pour un cycle d'hystérésis effectué selon  $z$  par un réseau parfait triangulaire de cylindres tous identiques et avec un grand rapport d'aspect,  $N_{int,zz}$  est égal au taux de compacité du réseau  $P = \frac{4\pi}{2\sqrt{3}} \frac{R^2}{(2R+d)^2}$  (Annexe 3). L'ensemble des caractéristiques requises énoncées ci-dessus constituent ce qui est nommé le régime monopolaire et résumé dans la condition suivante :

$$L \gg 2d \quad (1.64)$$

$L$  étant la longueur d'un nanofil et  $d$  la distance bord à bord entre nanofils.

### 3. Simulations micromagnétiques

Afin de vérifier le résultat analytique précédent,  $P = N_{int,zz}$ , des cycles d'hystérésis de réseaux 2D de nanofils de différentes distances interfil sont simulés.

#### Paramètres des simulations

- longueur d'un nanofil (direction  $z$ ):  $L = 100$  nm,
- diamètre d'un nanofil :  $D = 6$  nm, rayon  $R = 3$  nm, rapport d'aspect : 16.6,
- distance inter-fils (bord à bord) :  $d$  variable de 1 nm à 50 nm. Le taux de compacité  $P = \frac{4\pi}{2\sqrt{3}} \frac{R^2}{(2R+d)^2}$  est alors variable telle que  $0.01 < P < 0.67$ .
- l'espace simulé contient 39 fils ce qui constitue un réseau de  $48nm \times 49.5nm$  pour une distance interfil bord à bord de  $1nm$ , jusqu'à  $336nm \times 346nm$  pour une distance interfil centre à centre de  $50nm$ .
- anisotropie magnétocristalline uniaxiale:  $0 J.m^{-3} < K_{mc} < 9.3 \times 10^5 J.m^{-3}$  parallèle à l'axe du fil,
- aucune distribution d'anisotropie n'est introduite
- constante d'échange du cobalt massif :  $A = 30 \times 10^{-12} J/m$ ,
- aimantation à saturation du cobalt massif :  $\mu_0 M_S = 1759 mT$ ,
- l'espace est discrétisé en cellules parallélépipédiques de  $1nm \times 1nm \times 6nm$ . Du fait du nombre important de cellules nécessaires pour reproduire une forme cylindrique des nanofils avec des cellules parallélépipédiques, ces simulations ont un coût numérique important et une des limitations de ces simulations est l'erreur due aux formes des nanofils générés.
- $T=0K$ .
- Le module PBC (Periodic Boundary Conditions) est utilisé afin d'apporter une correction au champ dipolaire permettant de simuler le champ dipolaire d'un réseau étendu [62]. Les conditions aux bords périodiques utilisées ici reproduisent l'espace simulé 200 fois dans chaque directions planaires  $x,y$  du réseau, 200 étant déterminé par itération jusqu'à atteindre une valeur constante du champ coercitif.
- La méthode de calcul utilisée est la minimisation de l'énergie libre par la méthode du gradient conjugué avec comme critère d'arrêt  $|m \wedge H \wedge m| = 0.2 A/m$  (Annexe 6).

La Figure 1.25 montre des cycles issus de ces simulations. Les nombreuses marches visibles lors du retournement proviennent du retournement d'un ou plusieurs nanofils, ici en faible nombre. La Figure 1.25 compare le taux de compacité introduit dans les simulations à l'inverse de la susceptibilité

différentielle extrapolée au champ coercitif ( $\chi_{Hc} = (dM/dH)_{Hc}$ ), en fonction de la distance interfil  $d$ . Le taux de compacité de l'espace simulé, appelée taux de compacité réel, est déterminée en faisant le rapport :

$$P_{réelle} = \frac{\text{nombre de cellules magnétiques}}{\text{nombre de cellules total}} \quad (1.65)$$

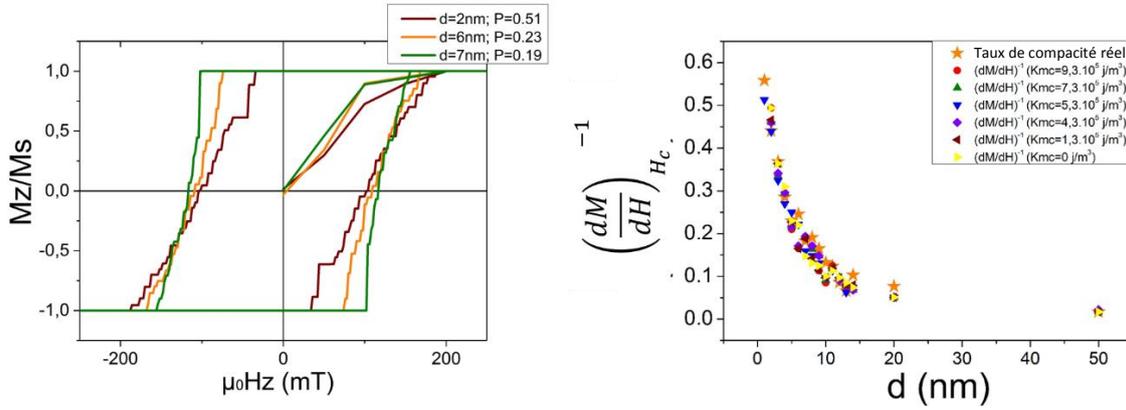


Figure 1.25 : à gauche : cycles simulés avec le code OOMMF pour différentes distances interfil; À droite : comparaison du taux de compacité du réseau simulé et de l'inverse de la susceptibilité différentielle autour de  $H_c$  des cycles simulés, pour différentes distances interfil  $d$  et différentes valeurs de  $K_{mc}$ .

De ces simulations, il apparaît une très bonne corrélation quantitative entre le taux de compacité  $P$  du réseau et l'inverse de  $\chi_{Hc} = (dM/dH)_{Hc}$ , ce qui corrobore l'équation (1.52), et ce quelle que soit l'amplitude de l'anisotropie magnétocristalline.

Ceci achève la démonstration par les simulations avec comme conclusion :

$$N_{int,zz} = P = \left( \frac{dM}{dH} \right)^{-1}_{Hc} \quad (1.66)$$

Gardons en tête que cette expression est valable pour des nanofils ayant un grand rapport d'aspect et en régime monopolaire, c'est-à-dire lorsque  $\frac{L}{2} \gg d$ .

Ce sujet sera à nouveau abordé dans le contexte de l'analyse et la lecture des diagrammes FORC.

## B. Influence des interactions dipolaires sur la coercivité d'un réseau de nanofils

### 1. Coercivité et champ moyen

La condition de renversement d'un fil est remplie lorsque la somme du champ externe avec tous les autres champs rayonnés atteint le champ d'anisotropie  $H_K$  :

$$H_{ext} + H_{int} = H_{ext} - N_{int,zz}M = H_K = \frac{2K_{eff}}{M_S} \quad (1.67)$$

$K_{eff}$  étant l'anisotropie effective contenant tous les termes variant comme une fonction de  $\sin^2\theta$ , avec  $\theta$  l'angle entre l'aimantation et l'axe de facile aimantation. Le champ coercitif étant défini à  $M = 0$  impose  $H_{ext} = H_c = H_K$ . Il apparaît clairement que dans le contexte du champ moyen, le champ coercitif n'est pas affecté par les interactions dipolaires.

## 2. Simulations micromagnétiques de la coercivité de réseaux

Pour un réseau, parfait et infini, un moyen de minimiser son énergie interne est d'organiser géométriquement son aimantation de façon à minimiser l'énergie dipolaire. La configuration qui minimise l'énergie magnétostatique est la configuration antiferromagnétique afin de fermer les lignes de flux magnétique entre proches voisins, ce qui constitue un résultat bien connu du modèle d'Ising. Cependant le réseau triangulaire n'étant pas bipartite, la configuration antiferromagnétique ne peut être satisfaite entre tous les premiers voisins. On peut supposer que la configuration magnétique à la coercivité forme des microstructures de façon à maximiser les interfaces entre nanofils d'aimantation antiparallèle [63], [64]. Plus la distance entre nanofils diminue, plus l'énergie magnétostatique augmente et modifie ainsi le paysage énergétique de sorte que la quantité d'énergie magnétique à apporter *via* le champ externe pour annuler l'aimantation diminue. Dans le domaine des verres de spin, les auteurs montrent que les interactions longues portées ont une grande importance dans la géométrie de la configuration magnétique à la coercivité et à la rémanence [65] [66], [67]. Dans les réseaux de nanofils simulés, du fait que l'énergie magnétostatique est la seule énergie de couplage entre nanofils, microscopiquement l'état désaimanté est structuré par les interactions polaires [63], [68], [69]. Hertel a montré par des simulations micromagnétiques que le champ coercitif d'une assemblée diminue avec l'augmentation du nombre de nanofils du fait de la possibilité de former des microstructures accessibles pour une énergie apportée au réseau inférieure à celle nécessaire pour retourner l'aimantation d'un fil unique [49]. *Zighem et al.* [70] ont montré l'évolution de la configuration magnétique d'une assemblée de nanofils en fonction du champ externe et à la rémanence : on peut aisément voir la formation de microstructures de l'aimantation comprenant plusieurs nanofils. Le même groupe de recherche montre également que le champ coercitif est dépendant du taux de compacité selon une variation linéaire [71]. Récemment *Li et al.* [72] ont montré l'impact des interactions sur le champ coercitif d'une assemblée de nanofils simulés avec OOMMF. Ils concluent également sur une évolution linéaire de la coercivité avec la variation du taux de compacité du réseau de différente façon (augmentation du diamètre des fils et espacement centre à centre). Une contribution majeure à ce problème a également été apportée par *P. Sergelius et al.* [73]. Dans cette publication, les auteurs ont mesuré par magnétométrie les caractéristiques macroscopiques d'un réseau de nanofils électrodéposés et ont ensuite mesuré les nanofils de ce réseau un par un de façon à évaluer les différences entre comportement collectif et comportement de fil isolé. Pour ce faire ils ont dissout la matrice contenant les nanofils et en répétant des mesures MOKE (Magneto Optical Kerr Effect) sur différents nanofils isolés (toutefois fragmentés), les auteurs ont reconstruit une statistique du champ de retournement des nanofils isolés. Ils trouvent un  $H_{c,réseau}$  diminué de 10% par rapport au  $H_{c,fil\ unique}$  moyen. Ils expliquent cette différence par la formation, à la coercivité, de microstructures de l'aimantation composées de plusieurs nanofils générant un champ d'interaction local non nul.

Dans le cadre de cette thèse, des simulations micromagnétiques de réseaux de nanofils ont été réalisées en utilisant le code OOMMF (Annexe 6) ainsi que le code Nmag pour adresser l'influence des interactions magnétostatiques sur la valeur du champ coercitif. Nmag est un code qui résout

l'équation LLG par une méthode des éléments finis [74]. L'avantage par rapport à OOMMF est une meilleure représentation de la géométrie grâce au maillage composé de tétraèdres irréguliers. Cependant le temps de calcul est bien supérieur avec les éléments finis (Nmag) qu'avec les différences finies (OOMMF), de plus la quantité de mémoire vive sollicitée par la méthode des éléments finis est également bien supérieure.

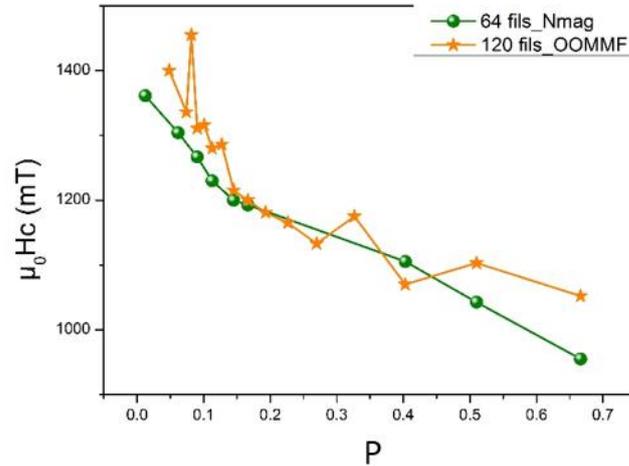


Figure 1.26 : Champ coercitif de réseaux de nanofils simulés (paramètres définis p54) en fonction du taux de compacité P.

Il apparait clairement que la coercivité varie avec le taux de compacité du réseau, c'est-à-dire avec l'amplitude des interactions dipolaires. Les résultats issus des calculs OOMMF sont plus dispersés, probablement du fait de la forme imparfaite des fils cylindriques discrétisés par des cellules parallélépipédiques.

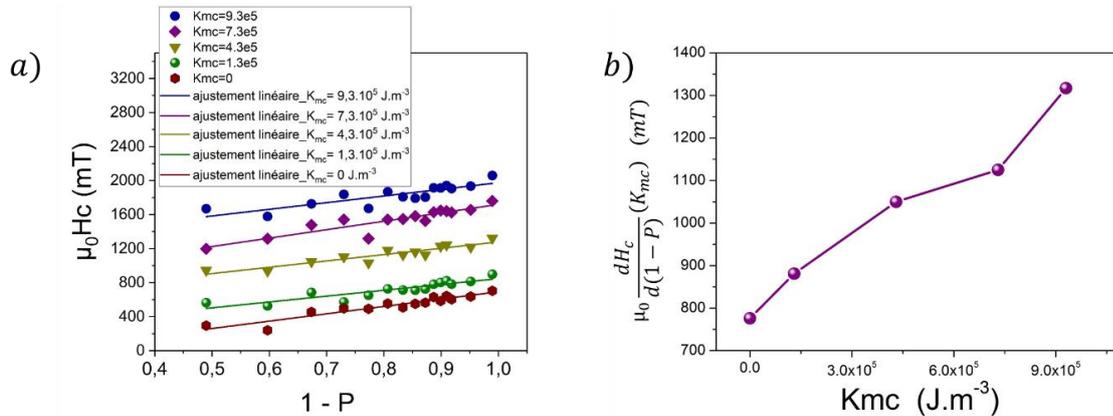


Figure 1.27 : a) dépendance du champ coercitif au taux de compacité d'une assemblée de 39 fils simulés avec le code OOMMF. b) variation de  $\frac{dH_c}{dP}$  en fonction de l'anisotropie magnétocristalline uniaxiale.

La Figure 1.27 montre la généralisation de la figure précédente pour différentes amplitudes de l'anisotropie magnétocristalline uniaxiale. Néel a proposé en 1947 que le champ coercitif de grains (sans anisotropie magnétocristalline) dans une poudre magnétique présentant des cavités de volume relatif  $v$  s'exprimerait :  $H_c = 0,26 \pi M_s (1 - v)$ , avec  $v = \frac{d}{d_0}$ ,  $d$  et  $d_0$  étant respectivement la densité apparente de la poudre et celle du métal. Ce raisonnement appliqué au cas d'un réseau de nanofils d'un taux de compacité  $P$ , et en négligeant l'anisotropie magnétocristalline, donne:  $\mu_0 H_c = A(1 - P)$ , avec  $A = \frac{\mu_0 M_s}{2}$  dans le cadre du modèle de Stoner-Wohlfarth [71]. Panagiotopoulos *et. al.* traitent

ainsi la coercivité simulée de réseaux de nanofils simulés sous  $N_{mag}$  en fonction de  $P$  par l'expression :  $H_c = a_\gamma \left( \frac{M_s}{2} (1 - P) + H_k \right)$ , où  $H_k$  représente le champ d'anisotropie magnétocristallin :  $H_k = \frac{2K_{mc}}{M_s}$ , et  $a_\gamma$  représente l'atténuation du champ coercitif dû au défaut d'alignement du champ appliqué avec l'axe facile (équations 1.36 -1.37) [71]. Les données présentées ici montrent que la variation linéaire de la coercivité avec le taux de compacité est acceptable. Cependant, au vu des courbes sur le graphe  $a$ ), la variation du champ coercitif à très faible taux de compacité semble montrer une variation non linéaire. Cette variation a été observée expérimentalement plusieurs fois, notamment par Umeki *et al.* [75] et Ching Ray Chang *et al.* [76], ainsi que, Li *et al.* [72] et Tonson *et al.* [77] qui ont un résultat similaire issu de simulations micromagnétiques. En considérant une variation linéaire de  $H_c(P)$ , les données peuvent être exprimées par la fonction suivante :

$$\mu_0 H_c = a_\gamma a_{K_{mc}} \left( \frac{\mu_0 M_s}{2} (1 - P) + \mu_0 H_k \right) \quad (1.68)$$

Où  $a_{K_{mc}}$  est une fonction à déterminer de façon à rendre compte de la variation de la pente de  $H_c(P)$  avec la variation de l'anisotropie magnétocristalline. En effet, alors que le champ est appliqué dans la direction de facile aimantation, *i.e.*  $a_\gamma = 1$ , un ajustement linéaire sur les courbes de la Figure 1.27.a montre que la pente de  $H_c(P)$  varie avec l'anisotropie magnétocristalline. Cette variation est reportée Figure 1.27.b. Chaque point de cette courbe s'obtient donc en dérivant l'équation (1.68) par rapport au taux de compacité:

$$\frac{dH_c}{d(1-P)} = a_{K_{mc}} \frac{M_s}{2} \quad (1.69)$$

La Figure 1.28b suggère que  $a_{K_{mc}}$  est directement proportionnel à  $K_{mc}$ , telle que  $a_{K_{mc}} = \beta \cdot K_{mc}$ , avec  $\beta$  une constante. Une analyse aux dimensions de la grandeur  $\frac{d^2 H_c}{d(1-P) dK_{mc}}$ , montre que celle-ci est homogène à l'inverse d'une aimantation:

$$\left[ \frac{d^2 H_c}{d(1-P) dK_{mc}} \right] = [M^{-1}] \quad (1.70)$$

Par ailleurs d'après (1.69),  $\frac{d^2 H_c}{d(1-P) dK_{mc}} = \beta \frac{M_s}{2}$  si bien que  $[\beta] = [M^{-2}]$ . Il apparait donc que  $[a_{K_{mc}}] = \frac{[K_{mc}]}{[M^2]}$ . Ainsi  $a_{K_{mc}}$  constitue un ratio entre l'anisotropie magnétocristalline et un terme a priori dipolaire puisque proportionnel à l'aimantation au carré.  $a_{K_{mc}}$  représenterait donc la compétition entre l'anisotropie magnétocristalline et les effets magnétostatiques.

Ce raisonnement propose donc d'aller au-delà du champ moyen en montrant les effets des interactions sur le champ coercitif. La conclusion est que plus les interactions sont fortes (*i.e.* réseau dense) plus le champ coercitif chute (eq. 1.68). Ceci signifie que l'état désaimanté demande moins d'énergie externe pour être atteint à mesure que le champ d'interaction augmente. D'autre part il est également montré que l'augmentation de l'anisotropie magnétocristalline a une influence sur la fonction  $\frac{dH_c}{d(1-P)}$  qui amène à appréhender les effets de l'énergie magnétocristalline en compétition avec les effets magnétostatiques.

## C. Distribution en champ de retournement

Une multitude de justifications font qu'un réseau parfait reste une expérience de pensée. Autrement dit chaque réseau de nanoparticules comporte des imperfections et des défauts. La conséquence directe de ces défauts est l'émergence d'une grandeur appelée distribution intrinsèque en champs de retournements : iSFD (intrinsic Switching Field Distribution). Elle trouve son origine dans des distributions en géométrie ou en anisotropie magnétocristalline du fait de la présence de défauts cristallins, impuretés, etc. Elle constitue l'un des objets principaux d'étude pour le domaine des médias magnétiques. La largeur de cette distribution constitue la figure de mérite des média magnétiques, définissant la stabilité magnétique et la densité d'enregistrement atteignable. Détecter sa largeur et sa forme par des mesures magnétiques est un enjeu important mais difficile. La difficulté réside dans la capacité à établir un modèle permettant la déconvolution des effets des interactions (cisaillement, inhomogénéité du champ d'interaction, effets des bords du réseau, ...) pour atteindre la dispersion des caractéristiques intrinsèques des nanoaimants d'une assemblée. Les méthodes et modèles d'extraction de l'iSFD ont fait l'objet de nombreuses publications [78]–[83].

La Figure 1.28 présente trois cycles d'hystérésis effectués par une assemblée simulée, composée de 1000 hystérons<sup>1</sup>, soumis à *a*) un champ d'interaction moyen seul, *b*) une distribution de champ de retournement seule, et *c*) les deux combinés. Un hystéron (introduit largement au chapitre II) est une entité purement mathématique représentée par un cycle rectangulaire, servant ici à modéliser le cycle d'hystérésis d'un nanofil. Ces résultats sont issus d'un programme Matlab, publié dans la thèse de Fanny Béron [84], simulant une assemblée d'hystérons, définis chacun par un champ de retournement, plongés dans un champ appliqué et un champ d'interaction, ici uniforme, représentant le rayonnement de l'assemblée (algorithme Figure 1.29). Il est important de préciser ici que ce programme est essentiellement utilisé pour comprendre les aspects mathématiques des cycles d'hystérésis. En effet beaucoup d'arguments physiques ne sont pas pris en compte (champ de démagnétisation, énergie d'échange ...), ainsi le choix des paramètres physiques peut-être arbitraire.

La condition de renversement d'un hystéron est réalisée lorsque la somme du champ appliqué et du champ d'interaction est égale à son champ de retournement (négatif ou positif suivant la branche du cycle). Le balayage en champ appliqué est effectué par une boucle *for*, lors de laquelle le champ rayonné est systématiquement mis à jour dès qu'un retournement à lieu. Dans ces simulations le champ d'interaction de type moyen est le même pour tous les hystérons et s'écrit :

$$\mu_0 H_{int} = (f_1 - f_2) \alpha_m \quad (1.71)$$

Avec  $\alpha_m$  une grandeur, homogène à un champ et ici exprimée en T, contrôlant l'amplitude et le signe du champ d'interaction,  $(f_1 - f_2)$  correspond à l'aimantation adimensionnée :  $\frac{M}{M_s} = (f_1 - f_2)$ . La contribution au cycle  $M(H)$  des interactions de type champ moyen (*i.e.* champ uniforme) est linéaire, tandis que la répercussion de l'iSFD gaussienne est non linéaire. Le champ coercitif est le même pour ces trois cycles, ce qui est en accord avec la vision du champ moyen dans laquelle les interactions n'ont aucun rôle sur la coercivité.

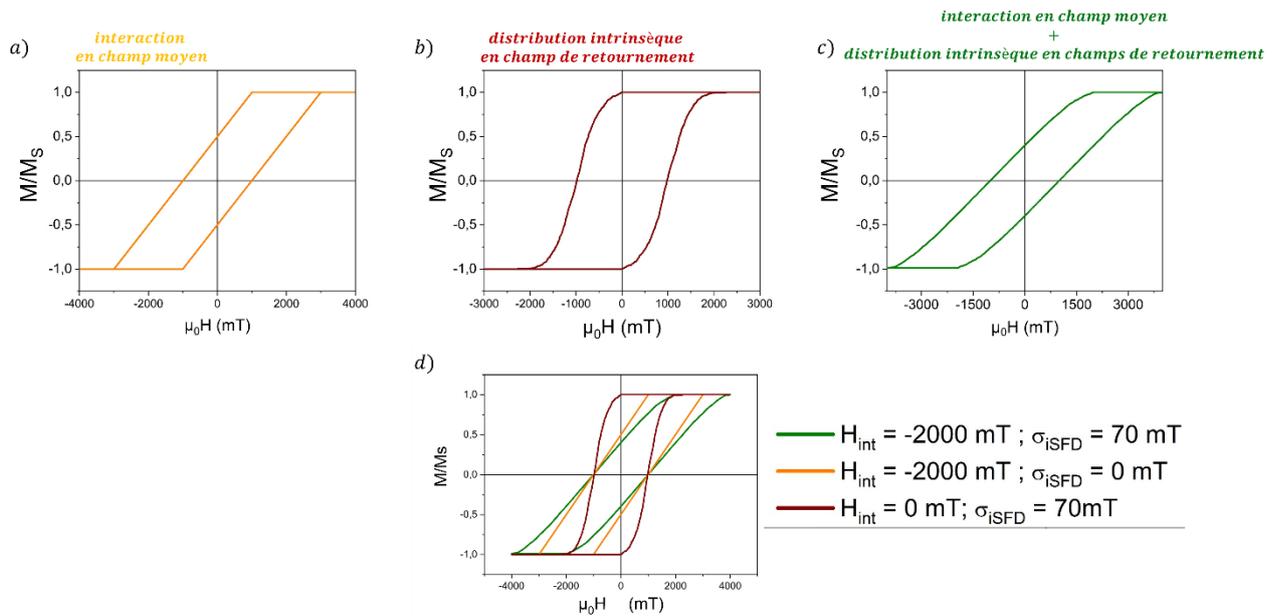


Figure 1.28 : simulation d'une assemblée de 1000 hystérons avec  $\mu_0 H_c = 1000$  mT, l'écart type de la distribution gaussienne en champ d'anisotropie est de 70mT, le champ d'interaction moyen et uniforme s'écrit  $\mu_0 H_{int} = -\frac{M}{M_s} \times 2000$ , ( $\alpha_m = -2000$  mT) . a) cycle d'hystérésis simulé effectué par une assemblée d'hystérons homogènes en champ de retournement et en interaction via le champ d'interaction moyen, b) cycle d'hystérésis simulé effectué par une assemblée d'hystérons sans interaction dispersés en champ de retournement par une distribution gaussienne, c) cycle d'hystérésis simulé effectué par une assemblée d'hystérons dispersés en champ de retournement par une distribution gaussienne et en interaction via le champ d'interaction moyen, d) superposition des trois cycles simulés.

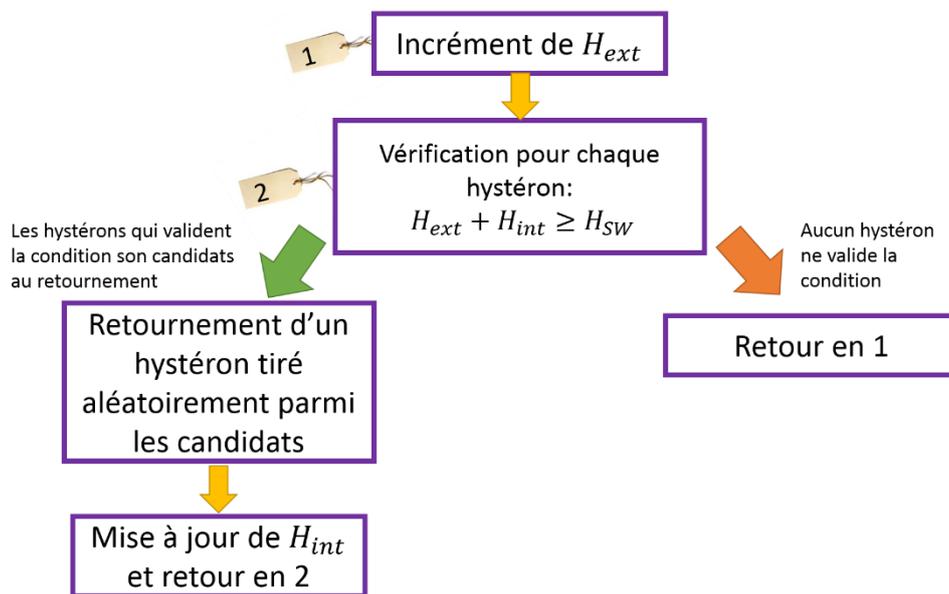


Figure 1.29 : algorithme de simulation d'un cycle d'hystérésis d'une assemblée d'hystérons.

Au sein d'une assemblée de particules sans interaction, lorsqu'un pas de champ externe  $\delta H_{ext}$  est effectué, chaque particule dont le champ de renversement  $H_{Sw}$  se trouve dans l'intervalle  $H_{ext} \leq H_{Sw} \leq H_{ext} + \delta H_{ext}$  verra son aimantation se retourner. Dans le cas où l'assemblée est dispersée en champ de retournement, la variation de  $M$  en fonction de  $H_{ext}$  suit la forme de la distribution selon laquelle les particules sont distribuées. Si  $f_1$  la proportion d'hystérons  $up$  (selon  $+z$  par analogie entre

nanofils et hystérons) et  $f_2$  la proportion *down*, avec  $f_{tot} = f_1 + f_2 = 1$  soit  $f_1 = 1 - f_2$ , alors pour une branche de cycle partant de la saturation négative selon  $z$  :

$$f_2 = \int_{-\infty}^{-|H_{ext}+H_{int}|} D(H_{SW}) dH_{SW} \quad (1.72)$$

Avec  $D(H_{SW})$  la distribution en champ de retournement des hystérons. Donc  $\int_{-\infty}^{-|H_{ext}+H_{int}|} D(H_{SW}) dH_{SW}$  représente le nombre de fils qui ont un champ coercitif inférieur ou égal à  $H_{ext} + H_{int}$  et  $D(H_{SW}) dH_{SW}$  le nombre d'hystérons ayant un champ de retournement compris dans l'intervalle  $[H_{SW} ; H_{SW} + \delta(H_{ext} + H_{int})]$ . Ainsi on peut définir l'aimantation comme [78]:

$$\begin{aligned} \frac{M}{M_S} &= f_1 - f_2 \\ M &= 1 - 2f_2 \\ M &= 1 - 2 \int_{-\infty}^{-|H_{ext}+H_{int}|} D(H_{SW}) dH_{SW} \end{aligned} \quad (1.73)$$

L'équation 1.73 montre que la distribution en champ de retournement est liée à la dérivée de l'aimantation de  $M(H_{SW}) = M(H_{ext} + H_{int})$ . La Figure 1.30 montre une application de ce raisonnement sur une assemblée de 100 000 hystérons dispersés en champ d'anisotropie selon une loi normale :

$$D(H_{SW}) = \frac{1}{\sigma_{iSFD} \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(H_{SW} - \langle H_{SW} \rangle)^2}{2\sigma_{iSFD}^2}} \quad (3.74)$$

Avec  $\sigma_{iSFD}$  l'écart type du tirage gaussien utilisé pour assigner le champ de retournement  $H_{SW}$  intrinsèque à chaque hystérons et  $\langle H_{SW} \rangle$  la valeur moyenne des champs de retournement sur toute l'assemblée. Les paramètres de la distribution utilisée pour implémenter la simulation sont  $\sigma_{iSFD} = 450 \text{ mT}$  et  $\langle \mu_0 H_{SW} \rangle = 1000 \text{ mT}$ . Les caractéristiques relevées à l'aide de l'ajustement itératif de  $\frac{dM}{dH}$  sont  $\sigma_{iSFD} = 455 \pm 2 \text{ mT}$  et  $\langle \mu_0 H_{SW} \rangle = 996 \pm 1 \text{ mT}$ .

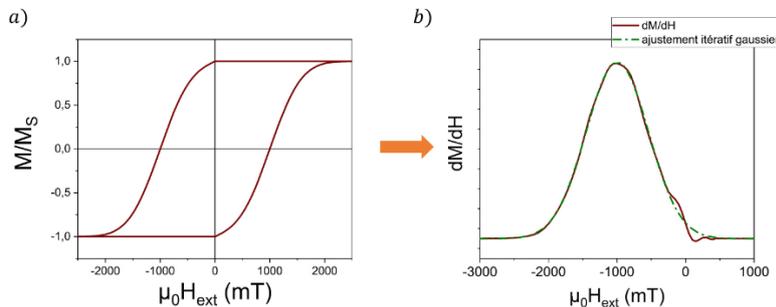


Figure 1.30 : a) cycle d'hystérésis effectué par une assemblée de 100 000 hystérons simulés sans interaction, distribués en champ de retournement selon une loi normale avec  $\sigma_{iSFD} = 450 \text{ mT}$  et  $\langle \mu_0 H_{SW} \rangle = 1000 \text{ mT}$ , correspondant à une dispersion  $\frac{\sigma_{iSFD}}{\langle H_{SW} \rangle}$  de 45% ; b) dérivée de la branche gauche du cycle superposée à un ajustement itératif gaussien permettant l'extraction des grandeurs caractérisant la distribution en champ de retournement.

Dans le cas d'une assemblée d'hystérons en interaction, il est possible de corriger le cycle d'hystérésis de la contribution linéaire de champ moyen en traçant la fonction  $M(H_{tot})$ , où  $H_{tot}$  représente la somme du champ externe et du champ d'interaction. Il ne reste ensuite qu'à extraire les caractéristiques de la distribution en champ de retournement intrinsèque par un ajustement itératif gaussien appliqué sur la dérivée de la même façon que sur la Figure 1.30.b).

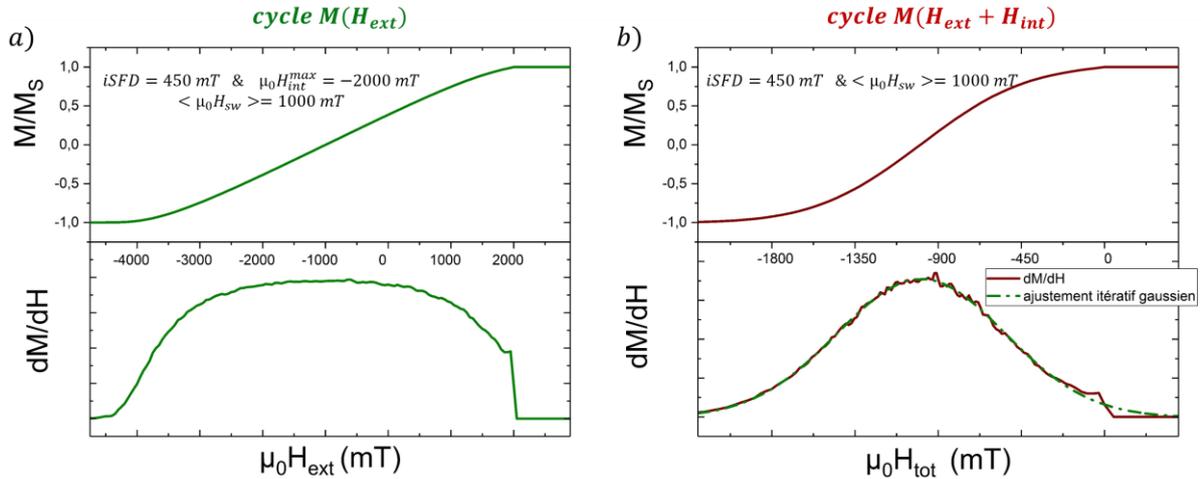


Figure 1.31 : a) cycle d'hystérésis  $M(H_{ext})$  calculé pour une assemblée de 100 000 hystérons, distribués en champ d'anisotropie selon une loi normale avec  $\sigma_{iSFD} = 450 \text{ mT}$  et  $\langle \mu_0 H_{sw} \rangle = 1000 \text{ mT}$  (dispersion  $\frac{\sigma_{iSFD}}{\langle H_{sw} \rangle} = 45\%$ ), et soumis à un champ d'interaction identique pour chaque hystéron  $\mu_0 H_{int} = -\frac{M}{M_s} \times 2000$ . b) Cycle d'hystérésis de a) corrigé  $M(H_{tot})$  avec  $H_{tot} = H_{ext} - \frac{M}{M_s} \times 2000$  et superposé à l'ajustement itératif gaussien permettant l'extraction de paramètres de la distribution en champ de retournement.

Lorsque le champ d'interaction implique des variations non linéaires de l'aimantation en fonction du champ externe, comme dans le cas d'un champ d'interaction de type Ising ou en présence d'interaction d'une autre nature que les interaction dipolaires (interaction d'échange) ou encore en présence d'un champ d'interaction magnétisant, il devient difficile d'identifier  $H_{int}$  et ainsi de tracer le cycle  $M(H_{tot})$ . Diverses méthodes d'extraction de distribution intrinsèque de champ de retournement plus élaborées ont été publiées notamment à la suite de l'article de Tagawa et Nakamura [81]. La méthode  $\Delta H(M, \Delta M)$  proposée par A. Berger et directement extrapolée des travaux de Tagawa et Nakamura est un outil intéressant [78], [82], [85]. Toutefois, cette méthode présuppose la forme de la distribution recherchée. Nous nous sommes intéressés particulièrement à la méthode FORC (First-Order Reversal Curves) puisque ce type de mesure et analyse permet d'adresser le comportement de groupe d'assemblées d'hystérons associés aux nanoparticules magnétiques isolées ou en assemblée ainsi que les caractéristiques des distributions associées [79]. Dans ce contexte, nous avons développé une collaboration avec Fanny Béron afin d'initier puis développer des analyses FORC au LPCNO.

# Méthode et analyse FORC

## I. Modèle de Preisach-Krasnoselskii

En 1932, le mathématicien Preisach propose un modèle scalaire des effets hystérétiques fondé sur des hypothèses concernant différents mécanismes d'aimantation [86]. Trente ans plus tard, un mathématicien du nom de Krasnoselskii reprit l'idée derrière le modèle de Preisach et en dégagait un modèle mathématique d'hystérésis complètement affranchi de toutes considérations physiques [87]. Le modèle de Preisach-Krasnoselskii [88] met en jeu un signal d'entrée  $u(t)$ , de sortie  $f(t)$ , les opérateurs (hystérons)  $\hat{\gamma}_{\alpha\beta}$  dont les paramètres  $\alpha$  et  $\beta$  sont définis sur la Figure 2.32.

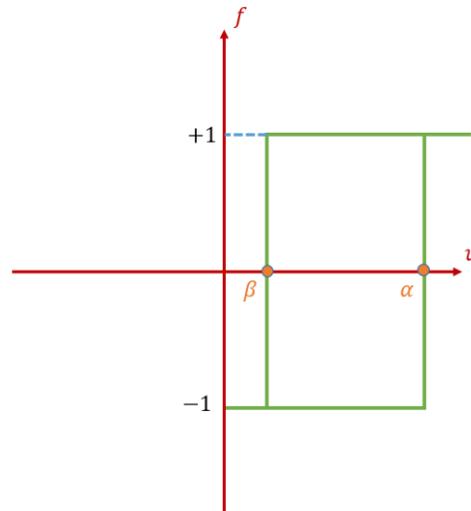


Figure 2.32 : représentation d'un opérateur  $\hat{\gamma}_{\alpha\beta}$ .

L'opérateur hystérésis  $\hat{\Gamma}$  représentant l'assemblée complète d'hystérons, est défini comme :

$$f(t) = \hat{\Gamma} u(t) = \iint_{\alpha > \beta} \mu(\alpha, \beta) \hat{\gamma}_{\alpha\beta} u(t) d\alpha d\beta \quad (2.75)$$

Les notations utilisées sont reprises de [89]. Dans le cas appliqué à la magnétométrie,  $f(t) \rightarrow M(t)$  et  $u(t) \rightarrow H(t)$ . L'interprétation géométrique de l'équation (2.75) consiste à placer chacun des opérateurs  $\hat{\gamma}_{\alpha\beta}$  dans le plan dont les axes sont les valeurs  $\alpha$  et  $\beta$  de façon à classer les hystérons.

Afin de déterminer les caractéristiques intrinsèques à l'assemblée, il est nécessaire de calculer la fonction de pondération  $\mu(\alpha, \beta)$  associée à chaque hystéron, donnée par l'équation (2.76). L'idée sous-jacente est de faire l'acquisition d'autant de courbes du renversement du premier ordre qu'il y a d'hystérons dans l'assemblée, afin d'obtenir un jeu de courbes entre lesquelles un seul opérateur s'est retourné, ce qui permet d'en déduire sa pondération. Selon l'hypothèse que le système est constitué d'un nombre fini d'opérateurs, de telle sorte qu'il soit possible de les placer tous en position *up* pour une valeur d'entrée assez grande (saturation), une courbe de renversement du premier ordre est obtenue en diminuant  $u$  jusqu'à une certaine valeur  $\beta$ , puis en augmentant  $u$  jusqu'à la valeur initiale d'entrée, *i.e.* la saturation : la Figure 2.33 montre en orange un exemple d'acquisition d'une courbe de renversement du premier ordre.

Une assemblée de particules magnétiques est sensible à l'histoire magnétique qu'elle a subie, ce qui fausse l'évaluation de la fonction de pondération. L'histoire magnétique doit donc être effacée après l'acquisition d'une FORC en saturant l'assemblée, de façon à ne pas affecter l'acquisition des FORC suivantes. Ceci constitue donc la première condition à l'évaluation de  $\mu(\alpha, \beta)$ . La seconde étant la congruence. En effet, pour deux mêmes chemins de la variable  $u(t)$ , la configuration finale de l'aimantation doit être identique. Cette dernière condition n'est que très rarement respectée dans une assemblée composée d'un très grand nombre de particules magnétiques en interactions ou dans un matériau continu tel qu'une couche mince magnétique. Le premier à proposer une méthode de mesure de la fonction de pondération est Mayergoyz en 1985 [88]. Depuis cette publication, de nombreux modèles ont été formulés pour s'affranchir de la contrainte de la congruence [90]–[92]. Dans l'application, l'acquisition de cent courbes de renversement du premier ordre semble suffisante pour rendre compte de la signature du comportement magnétique d'une assemblée.

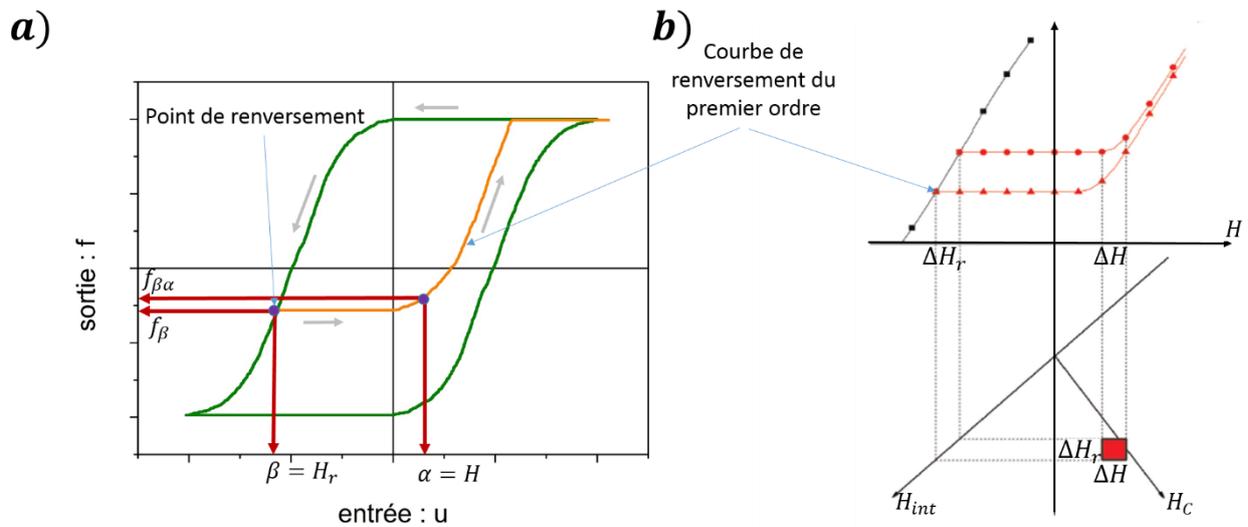


Figure 2.33 : a) exemple de courbe de renversement du premier ordre appliquée au magnétisme, b) illustration de la construction d'un diagramme FORC.

Afin de trouver une expression de la fonction de pondération on injecte l'équation (2.75) dans l'expression suivante :

$$F(\alpha, \beta) = f_{\beta} - f_{\beta\alpha}$$

$$F(\alpha, \beta) = 2 \int_{\beta}^{\alpha} \left( \int_{\beta}^y \mu(\alpha, \beta) dx \right) dy$$

Une expression de la fonction de pondération peut maintenant être déduite :

$$\mu(\alpha, \beta) = -\frac{1}{2} \frac{\partial^2 F(x, y)}{\partial \beta \partial \alpha} \Big|_{x=\alpha ; y=\beta} \quad (2.76)$$

Le terme « hystéron mathématique » est employé pour représenter un opérateur  $\hat{\gamma}_{\alpha\beta}$ . Dans le domaine du magnétisme, les paramètres  $\alpha$  et  $\beta$  sont respectivement remplacés par les variables  $H$  et  $H_r$  (Figure 2.34). Les hystérons peuvent ainsi être caractérisés par leur demi-largeur  $H_c$  et un champ de décalage  $H_u$  selon lesquels :

$$H = H_c + H_u$$

$$H_r = -(H_c - H_u)$$

(2.77)

$$H_c = (H - H_r)/2$$

$$H_u = (H + H_r)/2$$

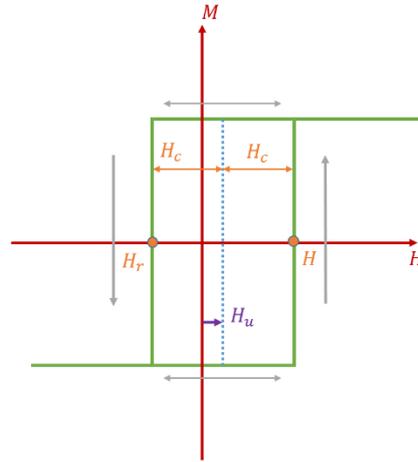


Figure 2.34 : hystéron mathématique correspondant au modèle de Preisach, appliqué au magnétisme ( $H_c$  et  $H_u > 0$ ).

Le modèle de Preisach- Krasnoselskii est appelé modèle classique de Preisach. Ce modèle est apte à décrire les phénomènes hystérétiques tant que les deux conditions, congruence et effacement de la mémoire, sont respectées. De plus, le cycle individuel des particules de l'assemblée, mesurées selon leur axe de facile aimantation, doit être rectangulaire et les particules non corrélées entre elles [93], [94]. En effet pour accéder à la distribution de Preisach, c'est-à-dire la distribution des paramètres  $\alpha$  et  $\beta$  de l'assemblée d'hystérons, l'amplitude des interactions ne doit pas dépendre de l'état de l'assemblée, puisque si tel est le cas les événements ne se produisent pas en accord avec les paramètres intrinsèques des hystérons. Si ces conditions ne sont pas respectées l'interprétation du diagramme selon le modèle classique de Preisach, c'est-à-dire comme une cartographie des événements irréversibles comme des événements réels, n'est plus valable. C'est pourquoi, une appréciation qualitative de la coercivité et de l'interaction entre les particules ne peut être que rarement effectuée. Il existe tout de même un modèle appelé *moving Preisach model* [94] permettant d'accéder à la distribution de Preisach dans le cas où les interactions peuvent se formuler comme une fonction linéaire de l'aimantation. Ce modèle se formule en remplaçant la variable d'entrée  $H$  par une variable effective que l'on peut appeler  $H_{tot}$  et qui s'exprime selon l'idée formulée dans la partie II.C. Cette méthode, qui a permis d'extraire les caractéristiques intrinsèques de l'assemblée d'hystérons simulée comme l'illustre la Figure 1.31, repose sur l'évaluation du paramètre appelé facteur de mouvement  $\alpha_m$ , ici homogène à un champ :

$$\mu_0 H_{tot} = \mu_0 H_{ext} + \alpha_m \frac{M}{M_s} \quad (2.78)$$

Ce modèle est applicable à l'analyse FORC et certains auteurs l'ont utilisé comme tel pour évaluer des caractéristiques intrinsèques ainsi que des comportements collectifs d'assemblées en soustrayant les contributions du champ moyen démagnétisant (*i.e.*  $\alpha_m < 0$ ) de façon à ne garder que les contributions non linéaires [92], [95]–[101].

En 1999, la première mesure de la fonction de pondération d'un système magnétique est réalisée avec des courbes de renversement du premier ordre par C.R. Pike et A.P. Roberts [102]. Par la suite elle fut très utilisée pour des datations en géologie, permettant de savoir si les échantillons contenaient plusieurs distributions de particules ferromagnétiques [103]–[110]. Aujourd'hui les

courbes de renversement ont été utilisées pour caractériser un très large éventail de structures magnétiques et autres phénomènes hystériques : réseaux de nanofils, bit patterned media, films minces, couches minces à anisotropie perpendiculaire, etc.

## II. Diagramme FORC

Au cours de ce doctorat, nous avons mis en place une collaboration avec Mme Fanny Béron du laboratoire LMBT, de l'université Campinas au Brésil (UNICAMP · Instituto de Física "Gleb Wataghin"). Dans la cadre de cette collaboration, et plus particulièrement au cours d'un séjour de 2 mois au LMBT (juillet-août 2017), je me suis formé à l'acquisition, au traitement, à la simulation et à l'interprétation des courbes de renversement du premier ordre effectuées sur des réseaux de nanofils magnétiques. Nous avons par la suite implémenté ce type d'analyse FORC au LPCNO.

Un cycle d'hystérésis est en fait une succession d'événements irréversibles si bien que seuls les hystérons irréversibles ( $H_C \neq 0$ ) participent au phénomène. L'évaluation de la fonction de pondération s'effectue en appliquant l'équation (1.76) au magnétisme. Dans la littérature, un usage commun du label  $\rho_{FORC}$  désigne la fonction de pondération  $\mu(\alpha, \beta)$  définie dans la partie précédente, c'est pourquoi nous conserverons cette notation ici [102]:

$$\rho_{FORC}(H, H_r) = -\frac{1}{2M_s} \frac{\partial^2 M(H, H_r)}{\partial H_r \partial H} \quad (H \geq H_r) \quad (2.79)$$

La fonction de distribution est présentée par un diagramme de contour, appelé diagramme FORC, sur lequel  $\rho_{FORC}$  est représenté par un code de couleur allant de 0 (bleu) à la valeur maximale (rouge).  $\rho_{FORC}$  donne directement la distribution du renversement irréversible de particules magnétiques considérées alors comme des hystérons mathématiques selon leurs paramètres  $H$  et  $H_r$ . La projection d'un point sur l'axe  $H_c$  représente la demi-largeur de l'hystéron concerné. De même, une projection sur l'axe  $H_{int}$  représente le champ de décalage  $H_u$  de l'hystéron visible sur la Figure 2.34, et sera donc interprétée comme l'opposé du champ d'interaction  $H_{int}$  subit par l'hystéron en plus du champ externe [111]. Ces axes  $H_c$  et  $H_{int}$  sont donc appelés axe de coercivité et axe du champ d'interaction ; ce sont les axes utilisés dans la représentation de Preisach. Un lissage est effectué lors du calcul de la distribution  $\rho_{FORC}$  plus ou moins appuyé suivant le nombre de points voisins utilisés dans le calcul de dérivation de  $\rho_{FORC}$ . Historiquement le lissage avait pour fonction de diminuer le rapport signal sur bruit. Il est important de garder en tête que ce lissage peut drastiquement modifier la signature du comportement de l'assemblée [112]. En effet, pour une assemblée, le calcul de  $\rho_{FORC}$  exact, sans lissage, est en fait un calcul discret puisque l'aimantation :  $M(H)$  est elle-même discrète (composé de points), que ce soit dans les mesures ou les simulations :

$$\rho_{FORC}(H_r, H) = -\frac{1}{2} \frac{\Delta}{\Delta H_r} \left[ \frac{\Delta m(H_r, H)}{\Delta H} \right] \quad (2.80)$$

Lors de mesures, voire même de simulations, les conditions pour accéder à la distribution de Preisach sont donc rarement remplies, les caractéristiques intrinsèques à l'assemblées sont donc difficilement accessibles et de fait, les informations quantitatives extraites d'un diagramme FORC sont à prendre avec précautions et doivent être confrontées, par exemple, à des simulations et des mesures complémentaires. C'est pourquoi, la philosophie d'utilisation de ces diagrammes sera essentiellement

d'identifier la signature de comportements et de phénomènes lorsqu'il s'agit de données issues de mesures [102]. Nous verrons que quantitativement, les champs d'interaction et coercitifs peuvent être extraits fidèlement. La détermination quantitative de la distribution de champs de retournement est quant à elle plus délicate. Nous montrerons au chapitre IV son appréciation qualitative au travers notamment de son évolution en température.

### III. Signatures FORC d'assemblées d'hystérons

La géométrie que prend  $\rho_{FORC}(H_r, H)$  dans un diagramme FORC permet d'identifier la signature de comportements magnétiques d'une assemblée de nanoparticules. Nous allons nous focaliser particulièrement sur des systèmes de réseaux de nanofils magnétiques. Cette partie concerne des simulations de courbes de renversement du 1<sup>er</sup> ordre d'assemblées d'hystérons auxquels sont assimilés les nanofils, avec et sans interaction dipolaire, ainsi qu'avec et sans distribution de champs de retournement, afin d'identifier les diagrammes FORC associés à ses différents cas. Ces simulations ont été réalisées en utilisant le code présenté dans l'algorithme de la Figure 1.29. Différents diagrammes FORC communément observés expérimentalement sont présentés par la suite.

#### A. FORC linéaire : champ d'interaction homogène

Le premier exemple est la distribution  $\rho_{FORC}$  dite linéaire [113]. Cette forme de diagramme FORC, Figure 2.35, est obtenue pour des hystérons en interaction *via* un champ d'interaction dit négatif, ici  $\mu_0 H_{int} = \alpha_m \frac{M}{M_S}$ , avec  $\alpha_m < 0$ . Ce type de diagramme FORC est caractérisé par deux paramètres  $H_c^{FORC}$  et  $\frac{\mu_0 \Delta H_{int}}{2} = \alpha_m = \mu_0 H_{int}^{sat}$ , où  $H_c^{FORC}$  est la valeur à laquelle se trouve le maximum de  $\rho_{FORC}$  sur l'axe  $H_c$ . Il apparaît que  $\mu_0 H_c^{FORC} = 300\text{mT}$  confondu avec  $\mu_0 H_c^{MHL} = 300\text{mT}$  le champ coercitif du cycle majeur (MHL pour *Major Hysteresis Loop*), tous deux également confondus avec le champ de retournement intrinsèque des hystérons  $\mu_0 H_{sw} = 300\text{mT}$ .  $\frac{\Delta H_{int}}{2}$  est la moitié de la largeur de l'extension de la distribution parallèle à l'axe  $H_{int}$ , distribution parfois nommée IFD pour Interaction Field Distribution [111]. Le champ d'interaction moyen négatif a pour effet de cisailer le cycle  $M(H)$ , par conséquent, le champ de retournement du premier hystéron est décalée d'une FORC à l'autre, ce qui implique une contribution non nulle à  $\rho_{FORC}$  [111], contribution à l'origine de l'IFD. L'IFD concerne les hystérons qui se retournent pour une aimantation identique à l'aimantation atteinte au point  $H_r$  (*i.e* le premier évènement de retournement de chacune des FORC): le champ d'interaction subit à ces deux points est le même,  $\mu_0 H_{int} = \alpha_m \frac{M}{M_S}$ , et l'hystéron  $j$  associé voit ses deux champs  $H$  et  $H_r$  tous deux décalés de  $H_{int}$  et distants de  $2H_{sw}$ . Le profil présenté sur la Figure 2.36.b montre que la hauteur de  $\rho_{FORC}$  est constante. La proportion d'hystérons se retournant pour un pas de champ externe compris entre la nucléation et la saturation, ne varie pas, et ce, pour tous les champs  $H_r$ .

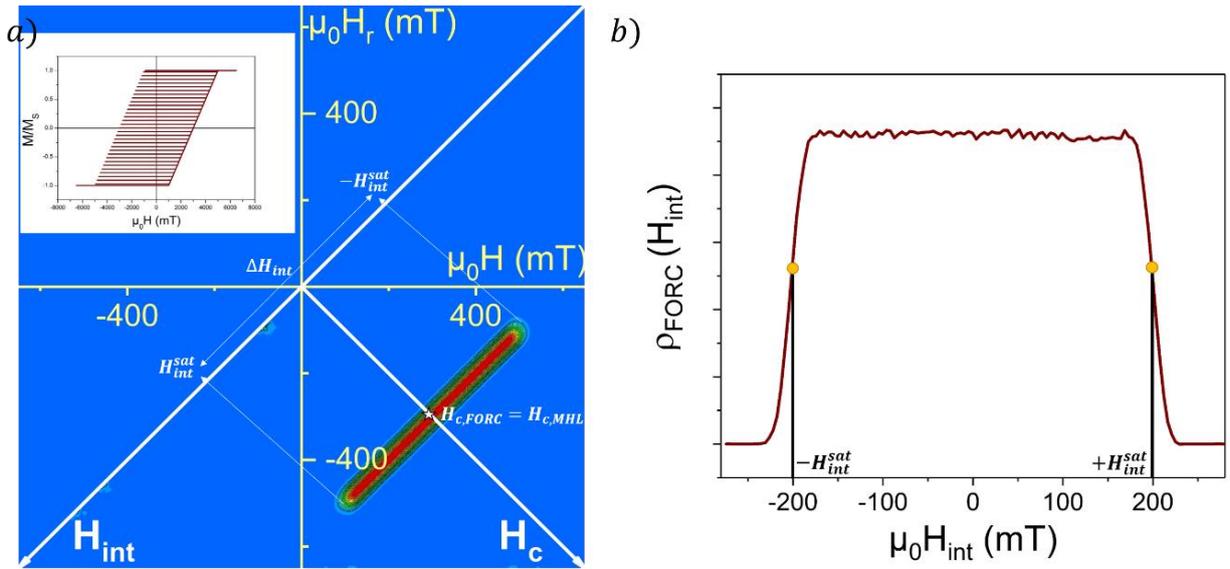


Figure 2.35: a) diagramme FORC après traitement d'une simulation représentée en insert.  $\mu_0 H_{sw} = 300 \text{ mT}$ ,  $\sigma_{H_{sw}} = 0$ ,  $\alpha_m = -200 \text{ mT}$  ( $\mu_0 H_{int}^{sat} = \pm 200 \text{ mT}$ ),  $N = 1000$  hystérons. Forme de la distribution  $\rho_{FORC}$  dite linéaire. b) profil réalisé sur le diagramme FORC parallèlement à l'axe  $H_{int}$  révélant une hauteur constante de  $\rho_{FORC}$ .

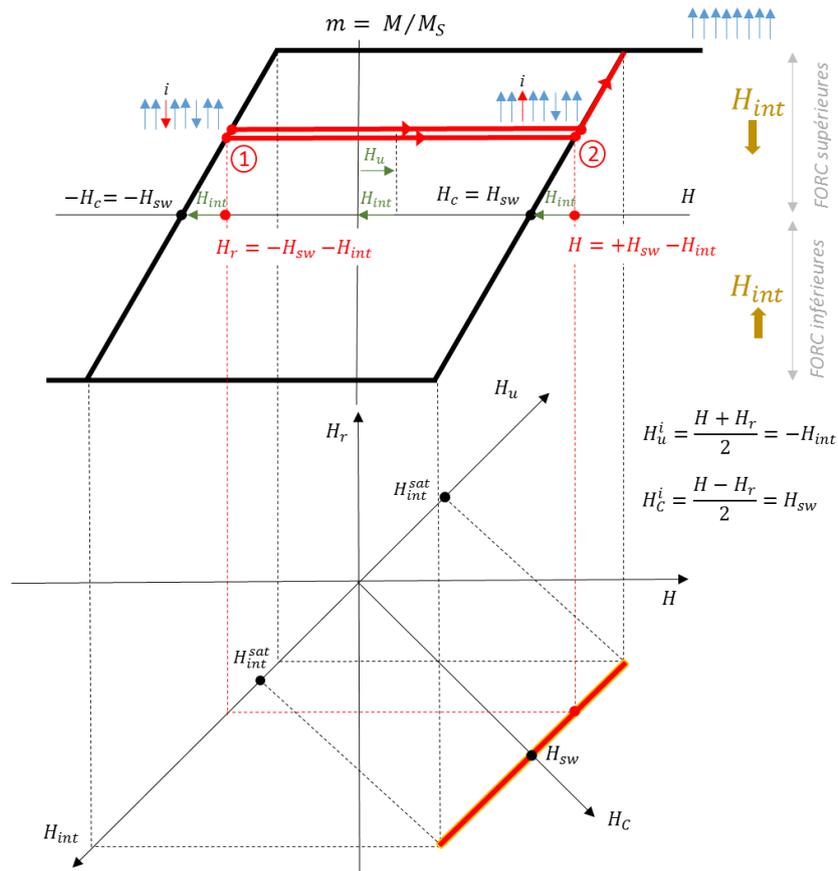


Figure 2.36 : correspondance géométrique entre  $\rho_{FORC}$  et les courbes de renversement du premier ordre effectuées par une assemblée d'hystérons de même largeur, plongés dans un champ d'interaction moyen. La projection des extrémités de  $\rho_{FORC}$  sur l'axe  $H_{int}$  permet la lecture de  $H_{int}^{sat}$ .

## B. FORC linéaire : champ d'interaction de type Ising

Afin de simuler une distribution non uniforme de champ d'interaction, le code Matlab (Figure 1.29) est modifié de façon à attribuer des coordonnées spatiales à chaque hystéron. Ainsi un réseau triangulaire d'hystérons est formé en assignant à chaque hystéron une combinaison des deux vecteurs générateurs du réseau triangulaire comme coordonnées :

$$\vec{x}_1 = \begin{pmatrix} d \\ 0 \end{pmatrix} ; \quad \vec{x}_2 = \begin{pmatrix} \frac{d}{2} \\ d\sqrt{\frac{3}{4}} \end{pmatrix} \quad (2.81)$$

Le champ d'interaction est ensuite calculé pour chaque hystéron en appliquant la formule (1.58), contenant la contribution de tous les autres hystérons de l'assemblée :

$$\mu_0 H_{int,zz} = \mu_0 D^2 L M_S \sum_{i \neq j} \left( \frac{1}{(\rho_{ij}^2 + L^2)^{3/2}} \right) \quad (2.82)$$

Cette formule représente le champ rayonné par une assemblée de cylindres de diamètre  $D$ , de longueur  $L$  et d'aimantation à saturation  $M_S$ . Dans la mesure où sont ici simulés des hystérons, les paramètres  $D$  et  $L$  n'ont d'influence que sur l'amplitude de  $\mu_0 H_{int,zz}$ . La somme est effectuée une première fois pour chacun des hystérons puis mis à jour à chaque retournement. Ce modèle, de type Ising, permet de simuler un champ d'interaction non homogène en comparaison du champ moyen. En effet, l'expression (2.82) montre que l'amplitude du champ d'interaction dépend du nombre de voisins et va donc être maximale pour les hystérons du centre et minimale pour les hystérons du bord de réseau [111], [114], induisant ainsi une dispersion de champ d'interaction  $\sigma_{H_{int}}$ .

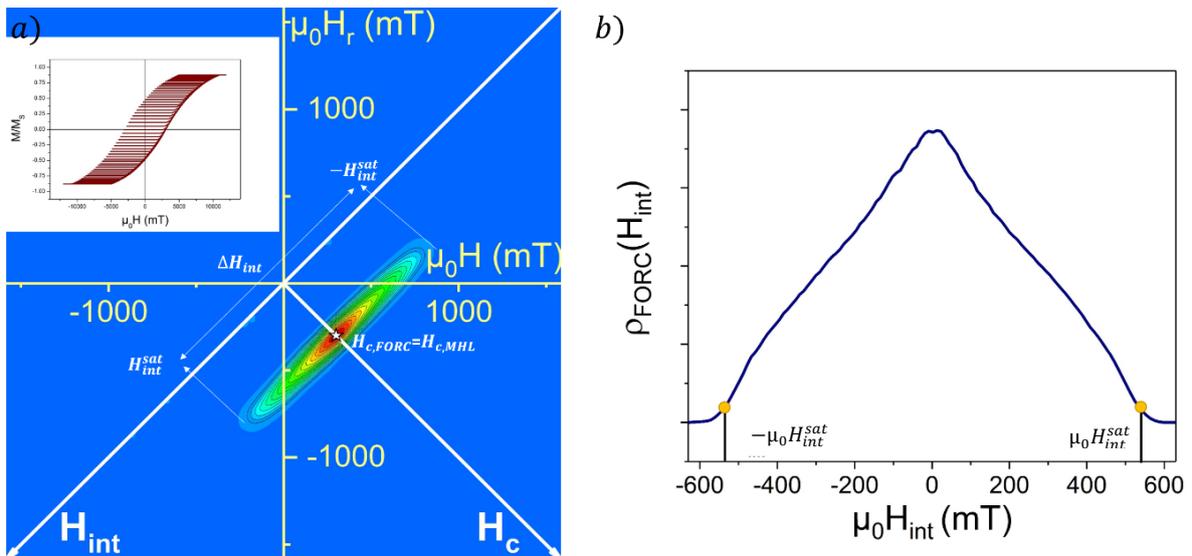


Figure 2.37 : a) diagramme FORC après traitement d'une simulation (en insert) d'une assemblée de 961 hystérons, suivant un calcul du champ d'interaction type Ising.  $\mu_0 H_{sw} = 300$  mT,  $\sigma_{H_{sw}} = 0$ ,  $N = 961$  hystérons,  $D = 7$  nm,  $d = 6$  nm et  $L = 60$  nm. b) Profil réalisé sur le diagramme FORC parallèlement à l'axe  $H_{int}$ . Forme de la distribution  $\rho_{FORC}$  dite linéaire.

L'aspect du cycle majeur, en insert de la figure 2.37, révèle un cisaillement, ou plus rigoureusement la susceptibilité différentielle, qui varie avec l'aimantation moyenne de l'assemblée. Sur le diagramme

FORC,  $\rho_{FORC}$  présente l'IFD parallèle à l'axe  $H_{int}$ . Toutefois, contrairement au cas précédent en champ moyen, l'IFD présente une forme d'ellipse. Le profil de l'IFD (Fig. 2.40.b) n'est pas constant et révèle comment  $\rho_{FORC}$  est relié à la variation de la susceptibilité différentielle. Ce type de profil IFD constitue la signature d'une assemblée en interaction via un champ de type Ising lui-même caractérisé par une distribution  $\sigma_{H_{int}}$ . Ce type de profil témoigne ainsi d'une dispersion en champ d'interaction. Ceci est rencontré dans les réseaux de nanoparticules fortement couplées par interaction magnétostatique. La majorité des mesures effectuées sur des réseaux de nanofils révèlent ce type de signature [53], [73], [113], [115]–[124]. M.P. Proenca *et al.* [125] ont effectué plusieurs mesures FORC montrant l'évolution de la géométrie de  $\rho_{FORC}$  en fonction du diamètre des nanofils et donc de l'amplitude du champ d'interaction. Il apparaît que plus les interactions sont fortes, plus la représentation du comportement magnétique de l'assemblée tend vers cette signature. F. Béron montrent par des simulations d'hystérons dans le modèle moving Preisach que le profil de l'IFD devient de plus en plus plat à mesure que le paramètre  $|\alpha_m|/\sigma_{int}$  augmente, où  $\sigma_{int}$  représente la largeur de la distribution de  $H_{int}$  introduite [126]. Ce comportement est cohérent avec les simulations présentées ici.

### C. Distribution de champ de retournement sans interaction

Lorsqu'une distribution en champ de retournement (iSFD) est introduite dans une assemblée sans interactions, le retournement des hystérons s'effectue par ordre croissant de l'hystéron le moins coercitif au plus coercitif. Ceci a pour conséquence de trier les hystérons participant à chaque FORC en partant des moins coercitifs pour les FORC proches de la saturation positive, à faible  $H_r$  [81]. La signature FORC d'une telle assemblée d'hystérons (Figure 2.38.a), est caractérisée par une distribution  $\rho_{FORC}$  alignée sur l'axe  $H_c$  avec le champ coercitif moyen centré sur le maximum de  $\rho_{FORC}$ , et un profil associé de forme identique à l'iSFD gaussienne introduite dans la simulation. L'ajustement itératif visible en b) permet d'extraire une valeur de la dispersion :  $\sigma_{iSFD, FORC} = 50,8 \text{ mT}$  à comparer avec la valeur exacte  $\sigma_{iSFD} = 50 \text{ mT}$  et une valeur du champ de retournement moyen :  $\langle \mu_0 H_{sw, FORC} \rangle = 297 \text{ mT}$  à comparer avec la valeur exacte  $\langle \mu_0 H_{sw} \rangle = 300 \text{ mT}$

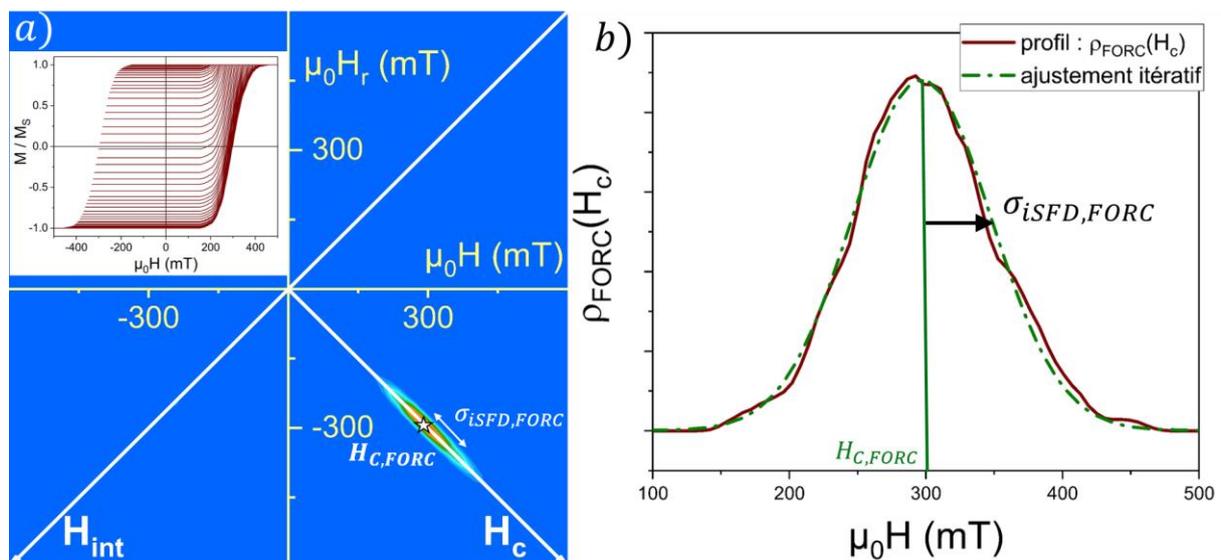


Figure 2.38 : à gauche : diagramme FORC après traitement d'une simulation d'une assemblée de 1000 hystérons sans champ d'interaction (en insert).  $\langle \mu_0 H_{sw} \rangle = 300 \text{ mT}$ ,  $\sigma_{iSFD} = 50 \text{ mT}$ ,  $N = 1000$  hystérons. A droite : profil de  $\rho_{FORC}$  selon l'axe  $H_c$  :  $\sigma_{iSFD, FORC} = 50,8 \text{ mT}$  et  $\langle \mu_0 H_{sw, FORC} \rangle = 297 \text{ mT}$ .

## D. Distribution de champ de retournement et interaction

Lorsqu'une assemblée est sujette à une dispersion en champ de retournement en présence d'interactions, cas majoritaire expérimentalement, les diagrammes FORC ne sont pas triviaux et demandent une analyse fine. Chaque cas sera donc abordé en faisant varier un paramètre à l'aide de simulations de façon à constater l'émergence de caractéristiques constituant les éléments clés de lecture.

### 1. Variation du champ coercitif d'une assemblée plongée dans un champ moyen et dispersée en champ de retournement

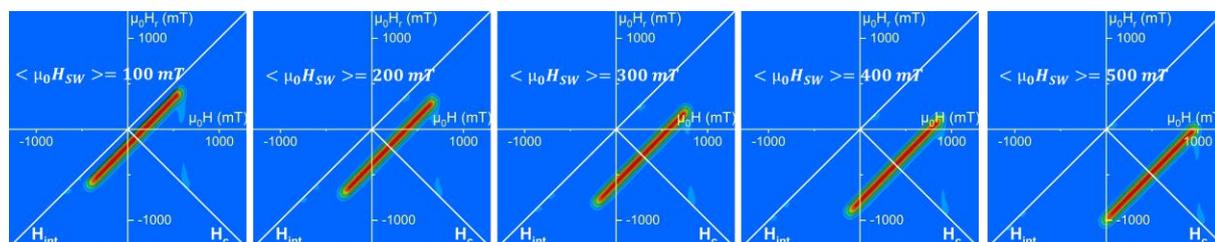


Figure 2.39 : diagrammes FORC après traitement de simulations FORC d'une assemblée d'hystérons dispersés en champ de retournement et plongés dans un champ d'interaction moyen.  $\langle \mu_0 H_{SW} \rangle = 100$  à  $500$  mT,  $\alpha_m = -500$  mT ( $\mu_0 H_{int}^{sat} = \pm 500$  mT),  $\sigma_{H_{SW}} = 10$  mT,  $N = 1000$  hystérons.

La Figure 2.39 permet de constater que l'augmentation de la valeur moyenne des champs de retournement a pour seul effet de décaler  $\rho_{FORC}$  le long de l'axe  $H_c$ . La géométrie linéaire de  $\rho_{FORC}$  demeure identique à mesure que la moyenne des champs de retournement augmente. Par ailleurs, la longueur de l'IFD est toujours  $2H_{int}^{sat}$ . La correspondance entre la  $H_{c, FORC}$  et  $H_{c, MHL}$  est explicitée dans la partie suivante.

### 2. Variation de la dispersion en champ de retournement pour une assemblée plongée dans un champ moyen

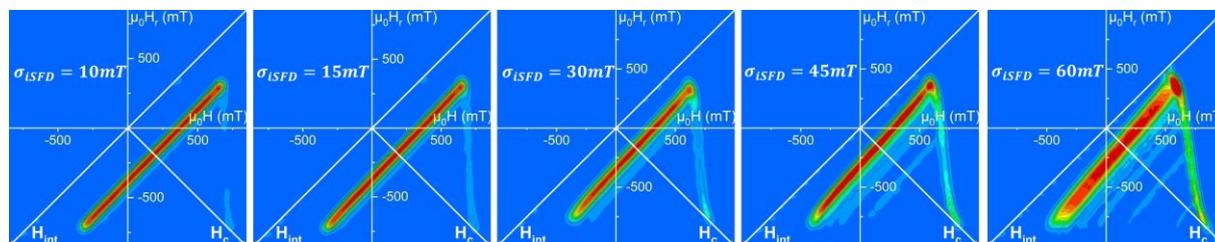


Figure 2.40 : diagrammes FORC après traitement de simulations d'une assemblée d'hystérons dispersés en champ de retournement et plongés dans un champ d'interaction moyen.  $\langle \mu_0 H_{SW} \rangle = 200$  mT,  $\sigma_{ISFD} = 20$  à  $60$  mT,  $\alpha_m = -500$  mT ( $\mu_0 H_{int}^{sat} = \pm 500$  mT),  $N = 1000$  hystérons.

Lorsqu'une assemblée d'hystérons est dispersée en champ de retournement et plongée dans un champ moyen négatif, les retournements des hystérons se font successivement du moins au plus coercitif, et ce dans chacune des FORC. La Figure 2.40 montre la transition de  $\rho_{FORC}$  entre la géométrie

dite linéaire précédemment décrite, et une géométrie dite « wishbone », plus largement présentée Figure 2.41. Cette géométrie type wishbone est la signature d'une assemblée dispersée en champ de retournement et plongée dans un champ moyen. Il est important de garder en tête qu'elle ne peut s'obtenir qu'en présence d'une distribution en champ de retournement. Elle est communément rencontrée expérimentalement dans des réseaux de piliers, de nanofils ou dans des films minces de type média magnétique à anisotropie perpendiculaire [95], [98], [101], [110], [127], [128].

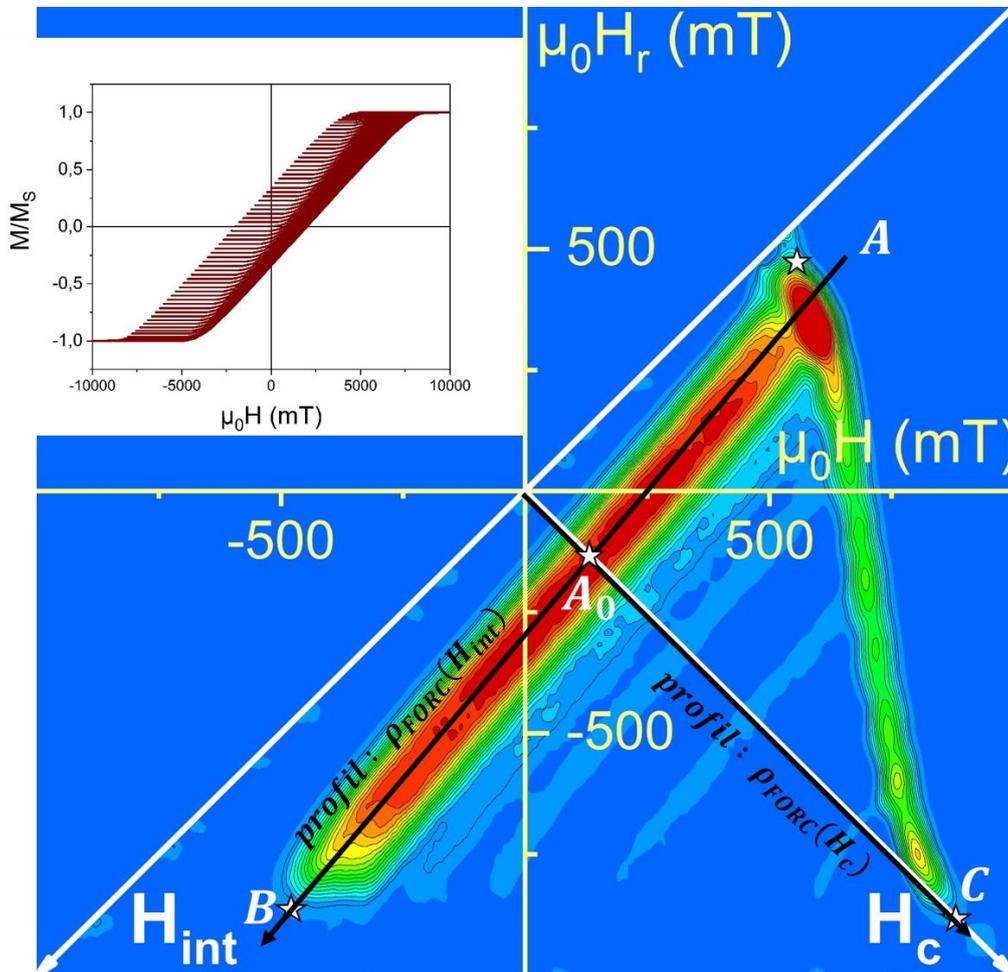


Figure 2.41 : diagramme FORC après traitement d'une simulation d'une assemblée de 1000 hystérons (en insert) plongés dans un champ d'interaction moyen.  $\mu_0 H_{sw} = 200 \text{ mT}$ ,  $\sigma_{iSFD} = 60 \text{ mT}$ ,  $\alpha_m = -500 \text{ mT}$ ,  $N = 1000$  hystérons. La forme de la distribution  $\rho_{FORC}$  est souvent nommée wishbone dans la littérature.

La branche  $AB$  est la distribution IFD abordée plus haut (Figure 2.35). La branche  $AC$  est représentative de la cartographie des derniers retournements à s'effectuer avant la saturation de chaque FORC. Pour interpréter cette branche, il est nécessaire de bien comprendre les effets d'un champ d'interaction uniforme en présence d'une distribution de champ retournement, illustrés par la Figure 2.42.

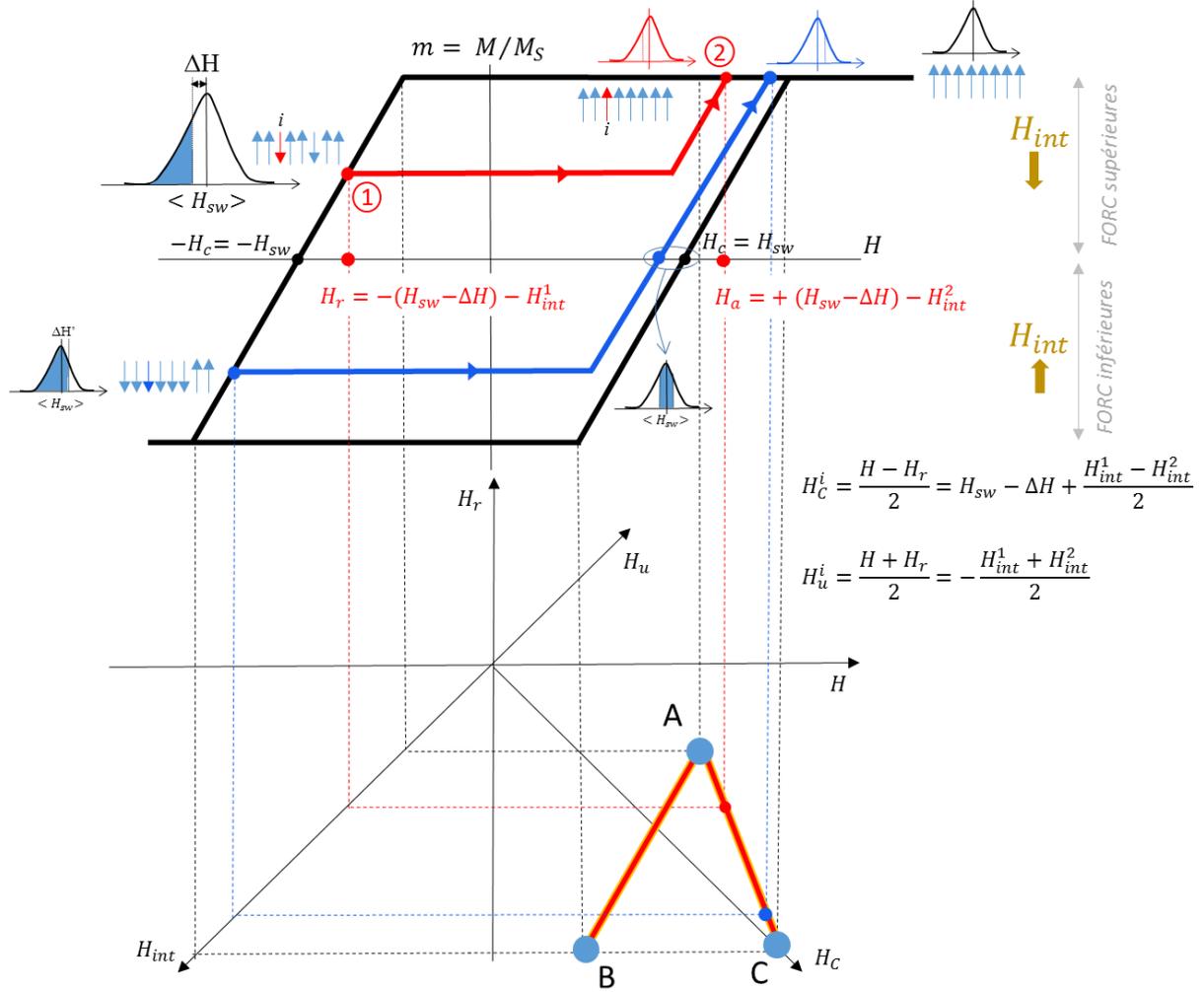


Figure 2.42 : correspondance géométrique entre  $\rho_{FORC}$  et les courbes de renversement du premier ordre effectuées par une assemblée d'hystérons dispersés en largeur, plongés dans un champ d'interaction moyen. La projection du point A extrémités sur l'axe  $H_{int}$  permet la lecture de  $H_{int}^{sat}$ , le champ de renversement de l'assemblée  $\langle H_{sw} \rangle$  est déterminé en projetant le point B sur l'axe  $H_c$ .

La Figure 2.34 permet de construire des relations géométriques entre les paramètres de la façon suivante :

$$\begin{cases} H_c = \frac{H - H_r}{2} \\ H_u = \frac{H + H_r}{2} \end{cases} \quad \begin{cases} H = H_c + H_u \\ H_r = -H_c + H_u \end{cases} \quad (2.83)$$

La largeur d'un hystéron est donnée par  $H - H_r = 2H_c$  qui ne représente pas forcément le champ de retournement intrinsèque de l'hystéron, grandeur que l'on nomme  $H_{sw}$ . Il a déjà été explicité que le champ d'interaction s'additionne au champ externe pour définir le champ total. Ainsi les champs  $H$  et  $H_r$  qui constituent les champs de retournement de l'hystéron  $i$  participant à la FORC indiquée par son champ de retournement  $H_r$  peuvent s'écrire (Figure 2.42):

$$\begin{cases} H_r = -(\langle H_{SW} \rangle - \Delta H) - H_{int,1} \\ H = (\langle H_{SW} \rangle - \Delta H) - H_{int,2} \end{cases} \quad (2.84)$$

Avec  $H_{int,1}$  et  $H_{int,2}$  les champs d'interaction lors des renversements respectifs de *up* vers *down*  $H_{int,1}$  (point 1, Figure 2.42) et de *down* vers *up*  $H_{int,2}$  (point 2, Figure 2.42).  $\Delta H$  est l'écart entre la coercivité de l'hystéron  $i$  et la valeur moyenne  $\langle H_{SW} \rangle$  de l'assemblée : l'hystéron  $i$  a un champ de retournement intrinsèque  $H_{sw}^i = \pm(\langle H_{SW} \rangle - \Delta H)$ . Ainsi :

$$H_u = \frac{H + H_r}{2} = \frac{(H_{SW} - \Delta H) - H_{int,2} - (H_{SW} - \Delta H) - H_{int,1}}{2} \quad (2.85)$$

$$= -\frac{H_{int,1} + H_{int,2}}{2}$$

$$H_c = \frac{H - H_r}{2} = \langle H_{SW} \rangle - \Delta H + \frac{H_{int,1} - H_{int,2}}{2} \quad (2.86)$$

On remarque ici que si les renversements *up*  $\rightarrow$  *down* et *down*  $\rightarrow$  *up* se produisent à la même valeur de  $M$ , alors  $H_{int,1} = H_{int,2} = H_{int}$  et on obtient  $H_u = -H_{int}$  et  $H_c = H_{SW} - \Delta H$ . C'est le résultat illustré Figure 2.36 (où toutefois  $\Delta H = 0$ , i.e. sans distribution).

L'hystéron  $i$  d'intérêt est le dernier hystéron à se retourner (*up*  $\rightarrow$  *down*) avant la FORC désignée par  $H_r$  (point 1, Figure 2.42). Etant le plus coercitif des hystérons renversés à ce stade, ce sera le dernier hystéron à se renverser *down*  $\rightarrow$  *up* au cours de la FORC (point 2, Figure 2.42), à l'approche de la saturation. Ainsi, les renversements *up*  $\rightarrow$  *down* et *down*  $\rightarrow$  *up* de cet hystéron  $i$  ayant lieu respectivement à deux valeurs de  $M$  différentes, alors  $H_{int,1} \neq H_{int,2}$  (Figure 2.42). Il est donc possible d'écrire, en considérant que le renversement (2) *down*  $\rightarrow$  *up* se fait à la saturation de la FORC où  $M = M_s$ :

$$\begin{cases} H_{int,1} = -N_{int,zz}(f_1 - f_2)M_s \\ H_{int,2} = -N_{int,zz}M_s \end{cases} \quad (2.87)$$

Avec  $f_1 - f_2 = \frac{M}{M_s}$  où  $f_1$  représente la proportion d'hystérons *up* et  $f_2$  la proportion *down* ( $f_1 + f_2 = 1$ ).

$$H_u = -\frac{-N_{int,zz}(f_1 - f_2)M_s - N_{int,zz}M_s}{2} \quad (2.88)$$

$$H_u = \frac{N_{int,zz}M_s(f_1 - f_2 + 1)}{2}$$

En utilisant  $f_2 = 1 - f_1$  il vient :

$$H_u = N_{int,zz}M_s f_1 \quad (2.89)$$

Cette expression indique que le champ de décalage  $H_u$  associé à l'hystéron évolue avec l'aimantation, et en l'occurrence avec  $f_1$ . Rappelons que pour les FORC supérieures (pour lesquelles

$M > 0$ , Fig. 2.42),  $f_1$  est important puis décroît progressivement jusqu'à devenir nul pour la dernière FORC inférieure où  $M = -M_s$ . Cela explique l'évolution selon  $H_u$  de la branche AC : de  $H_u = -H_{int}^{sat} = N_{int,zz}M_s$  en A, à  $H_u = 0$  en C. Si on écrit maintenant la demi-largeur d'un hystéron :

$$H_c = \frac{H - H_r}{2}$$

$$H_c = \langle H_{SW} \rangle - \Delta H + \frac{H_{int,1} - H_{int,2}}{2} = \langle H_{SW} \rangle - \Delta H + \frac{-N_{int,zz}M_s(f_1 - f_2) + N_{int,zz}M_s}{2}$$

$$H_c = \langle H_{SW} \rangle - \Delta H - \frac{1}{2}N_{int,zz}M_s(f_1 - f_2 - 1)$$

$$H_c = (\langle H_{SW} \rangle - \Delta H) + N_{int,zz}M_s f_2 = H_{sw}^i + N_{int,zz}M_s f_2 \quad (2.90)$$

La largeur de l'hystéron, intrinsèquement égale à  $2H_{sw}^i$ , est alors artificiellement augmentée à mesure que la proportion  $f_2$  augmente. Cela explique l'évolution selon  $H_c$  de la branche AC : de  $H_c = H_{sw}^i = H_{SW} - \Delta H$  en A, à  $H_c = H_{SW} - \Delta H + N_{int,zz}M_s$  en C. Il est à noter que  $\Delta H$  varie entre A et C. Le point A correspond à la première FORC, si bien que l'on sonde le début de la distribution de champ de retournement, c'est-à-dire les hystérons les moins coercitifs tels que  $H_c = H_{SW} - \Delta H^1 = H_{c,min}$ , avec  $\Delta H^1$  l'écart entre la coercivité de l'hystéron 1 (l'hystéron le moins large) et  $\langle H_{SW} \rangle$ . Le point C correspond à la dernière FORC, si bien que l'on sonde la fin de la distribution de champ de retournement, c'est-à-dire les hystérons les plus coercitifs tels que  $H_c = H_{SW} + \Delta H^N + N_{int,zz}M_s = H_{c,max} + N_{int,zz}M_s$ , avec  $\Delta H^N$  l'écart entre la coercivité de l'hystéron N (l'hystéron le plus large) et  $\langle H_{SW} \rangle$ . Le signe de l'équation (2.90) montre que la largeur d'un hystéron n'est jamais artificiellement diminuée mais seulement augmentée par les interactions dans le cadre du champ moyen.

A. Stancu et C-I. Dobrota [111] montrent une corrélation géométrique entre les points A, B et C et les caractéristiques du cycle majeur. Dans le plan  $(H_c; H_{int})$  les coordonnées de ces points s'écrivent :

$$\begin{aligned} A: & (H_{c,min} ; |H_{int,FORC}^{sat}|) \\ B: & (H_c^{MHL} ; -H_c^{MHL} + H_{c,min} - |H_{int,FORC}^{sat}|) \\ C: & (H_{c,max} + |H_{int,FORC}^{sat}| ; 0) \end{aligned} \quad (2.91)$$

Sur le diagramme le point A est toujours placé à l'aide d'une ligne perpendiculaire à l'axe  $H_r$ , à l'endroit correspondant au croisement de cette ligne avec les premiers événements irréversibles (*i.e.*  $\rho_{FORC} \neq 0$ ) correspondant à la nucléation du renversement de l'aimantation. Le point B est placé de la même manière mais depuis le bas du diagramme, ce qui correspond la FORC la plus extrême dans les champs de renversement négatifs pour laquelle il existe des contributions non nulles à  $\rho_{FORC}$ . Précisons que la FORC concernée ici doit être superposable avec la branche du cycle majeur. Le point C est, en principe horizontalement aligné avec le point B. Il se place à l'évènement irréversible ayant le plus fort  $H_c$  le long de l'axe  $H_c$ .

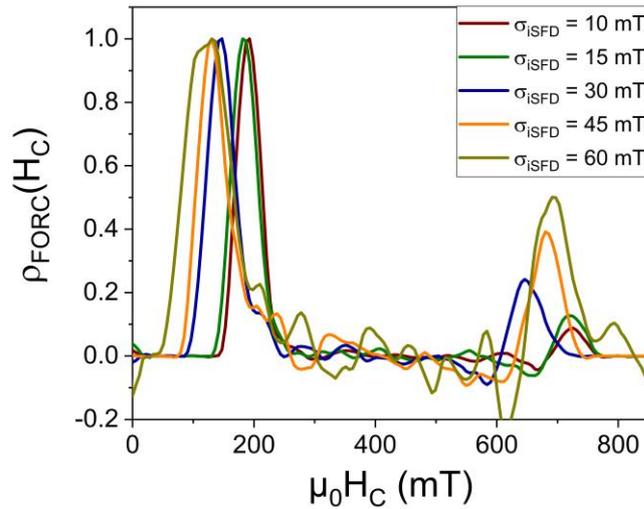


Figure 2.43 : profil de  $\frac{\rho_{FORC}}{\rho_{FORC}^{max}}$  parallèle à l'axe  $H_c$  effectué sur chaque diagramme FORC de la Figure 2.40.

La Figure 2.43 présente les profils de  $\rho_{FORC}(H_c)$  pour chacune des simulations présentées Figure 2.40. Un ajustement linéaire gaussien de la première partie de ces courbes permet d'extraire les informations répertoriées dans le tableau ci-dessous :

$\sigma_{iSFD}$	$\sigma_{iSFD}^{fit}$	% erreur $\sigma_{iSFD}$	$\langle H_c^{FORC} \rangle$	$\langle H_c^{MHL} \rangle$	$\frac{\langle H_c^{MHL} \rangle - H_{c,min}}{3}$	$\langle H_{sw} \rangle$
10 mT	19,1 mT	91	191,1 mT	203,9 mT	10,8 mT	200 mT
15 mT	20,6 mT	37	184,1 mT	195,9 mT	15,9 mT	200 mT
30 mT	22,5 mT	25	146,1 mT	201,5 mT	29,6 mT	200 mT
45 mT	23,4 mT	48	132 mT	204,9 mT	45,9 mT	200 mT
60 mT	36,5 mT	39	124,8 mT	205,4 mT	58,2 mT	200 mT

$\sigma_{iSFD}$  est la valeur de l'écart type utilisée pour effectuer le tirage gaussien du champ de retournement de chaque hystéron,  $\sigma_{iSFD}^{fit}$  est la valeur de l'écart type relevée à l'aide de l'ajustement itératif appliquée sur les profils de la Figure 2.43,  $\langle H_c^{FORC} \rangle$  est la valeur relevée au maximum du profil  $\rho_{FORC}(H_c)$ ,  $\langle H_c^{MHL} \rangle$  est l'abscisse du point B dans le plan  $(H_c; H_{int})$ ,  $\langle H_{sw} \rangle$  est la moyenne de la distribution utilisée pour définir le champ de retournement de chaque hystéron.

Le champ  $H_c^{FORC}$  relevé au maximum de  $\rho_{FORC}(H_c)$  ne correspond pas au champ coercitif du cycle majeur et varie avec l'évolution de  $\sigma_{iSFD}$  sans que le champ coercitif de l'assemblée varie :  $H_c^{FORC}$  diminue lorsque  $\sigma_{iSFD}$  augmente. Cette variation est associée à l'inclinaison de l'IFD, directement due à la coercivité moyenne de la population d'hystérons contribuant à l'IFD qui augmente à mesure que  $H_r$  approche la saturation négative. Il est donc logique que la projection de l'IFD sur l'axe  $H_c$  donne des valeurs de plus en plus grandes, et donc s'incline vers les forts champs coercitifs. Par conséquent, le champ projeté sur l'axe  $H_c$ , relevé au point B représente la coercivité de la FORC la plus proche du cycle majeur, d'où son appellation  $H_c^{MHL}$ .

Il apparait que ce type de profil ne donne pas la bonne valeur de l'écart type de la distribution en champ de retournement, i.e.  $\sigma_{ISFD}^{fit} \neq \sigma_{ISFD}$ . Cependant la tendance de  $\sigma_{ISFD}^{fit}$  est similaire à la tendance de  $\sigma_{ISFD}$ . Un moyen plus précis de sonder la largeur de la distribution intrinsèque en champ de retournement est de relever l'hystéron ayant le champ coercitif minimum  $H_{c,min}$  relevé à l'abscisse du point  $A$  ainsi que  $H_c^{MHL}$  au point  $B$  (eq. 2.91) puis d'appliquer  $\frac{\langle H_c^{MHL} \rangle - H_{c,min}}{3}$  [111]. En effet, pour une distribution gaussienne, 98% des réalisations de la variable aléatoire se trouve dans l'intervalle d'une largeur de  $3 \times \sigma$  autour de la moyenne. Ici, cette méthode donne la largeur de la distribution avec une marge d'erreur de moins de 10%.

### 3. Variation de $H_{int}$ pour une assemblée plongée dans un champ moyen et dispersée en champ de retournement

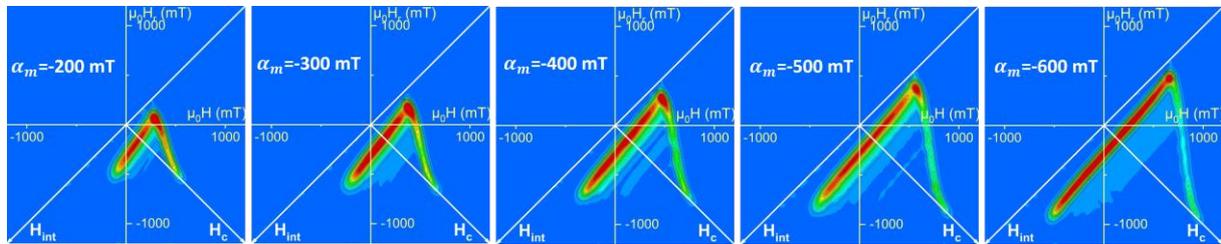


Figure 2.44 : diagrammes FORC après traitement de simulations d'une assemblée d'hystérons dispersés en champ de retournement et plongés dans un champ d'interaction moyen.  $\langle \mu_0 H_{sw} \rangle = 200 \text{ mT}$ ,  $\sigma_{ISFD} = 60 \text{ mT}$ ,  $\alpha_m$  de  $-200 \text{ mT}$  à  $-600 \text{ mT}$  ( $200 \text{ mT} \leq |\mu_0 H_{int}^{sat}| \leq 600 \text{ mT}$ ),  $N = 1000$  hystérons.

Pour une assemblée d'hystérons largement dispersés en champ de retournement et plongés dans un champ d'interaction on retrouve bien la géométrie wishbone, et ce, même avec l'évolution de l'amplitude du champ moyen. Les profils  $\frac{\rho_{FORC}^{max}}{\rho_{FORC}}$  parallèle à l'axe  $H_c$  (Figure 2.45.a) ne révèlent aucune variation du  $H_{c,FORC}$ , cependant ils mettent en évidence l'éloignement entre le point  $A_0$  (Figure 2.41) et le point  $C$  à mesure que l'amplitude du champ moyen augmente. Cet éloignement est relié à l'élargissement artificiel des hystérons explicité par l'équation (2.90). Les profils présentés sur la Figure 2.45.b) montrent une augmentation de l'amplitude du champ moyen et révèlent également que selon la direction parallèle à  $H_{int}$   $\rho_{FORC}$  est constant (hormis au point A), ce qui constitue une signature du champ d'interaction moyen.

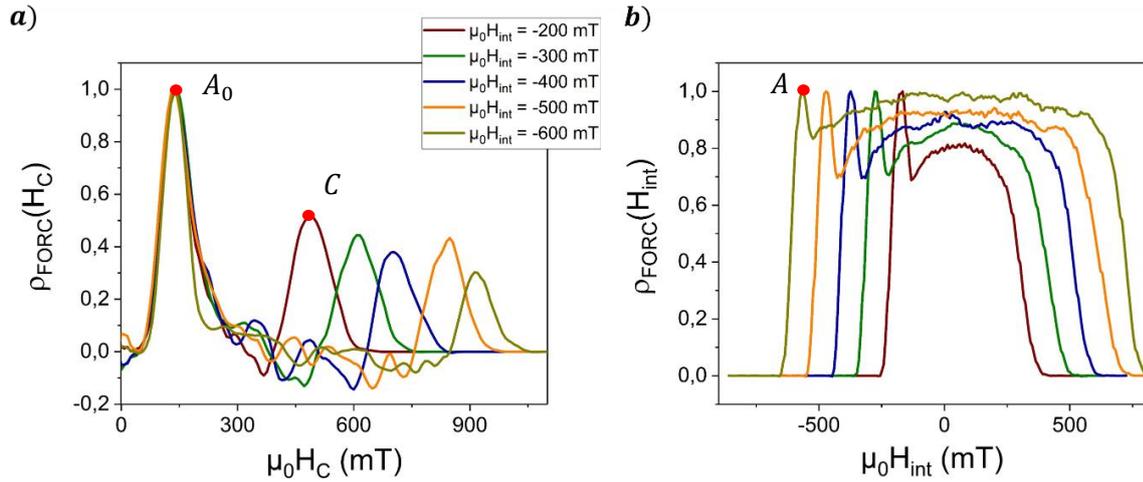


Figure 2.45 : a) profil de  $\frac{\rho_{FORC}^{max}}{\rho_{FORC}}$  parallèle à l'axe  $H_c$  effectué sur chaque diagramme FORC de la Figure 2.44. b) profil de  $\frac{\rho_{FORC}^{max}}{\rho_{FORC}}$  parallèle à l'axe  $H_{int}$  effectué sur chaque diagramme FORC de la Figure 2.44.

#### 4. Variation du champ coercitif d'une assemblée en interaction via un champ de type Ising et dispersée en champ de retournement

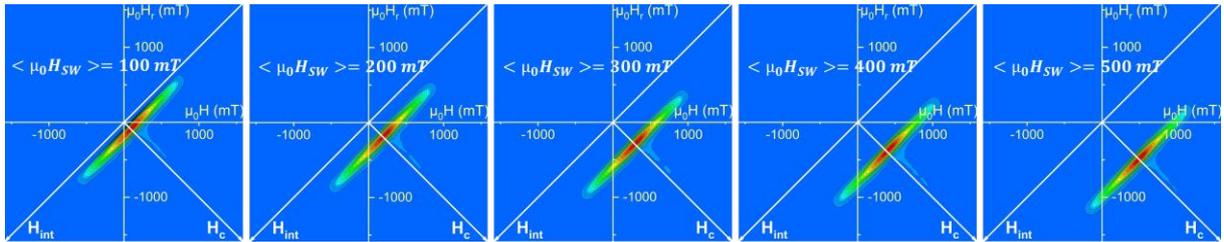


Figure 2.46 : diagrammes FORC après traitement de simulations d'une assemblée d'hystérons dispersés en champ de retournement plongés dans un champ d'interaction de type Ising.  $\langle \mu_0 H_{SW} \rangle = 100$  à  $500$  mT,  $\sigma_{ISFD} = 10$  mT,  $\langle \mu_0 H_{int} \rangle \cong -500$  mT,  $N = 1681$  hystérons.

Pour une assemblée d'hystérons en interaction via un champ de type Ising et en présence d'une distribution en champ de retournement, l'augmentation de la coercivité moyenne a pour effet de translater l'ensemble des processus irréversibles ( $\rho_{FORC} \neq 0$ ) le long de l'axe  $H_c$ . La géométrie de  $\rho_{FORC}$  n'est pas altérée par l'augmentation de la coercivité moyenne de l'assemblée. Toutefois, il apparaît une branche  $A_0C$  le long de l'axe  $H_c$  pour laquelle  $\rho_{FORC}$  est faible, nommée CFD pour Coercive Field Distribution [111]. Etant alignée sur l'axe  $H_c$ , cette branche concerne les hystérons quasi-symétriques, *i.e.* pour lesquels  $H_u \cong 0$ . Lors du paragraphe précédent, il a été démontré que seuls les hystérons les plus coercitifs présentent  $H_u \cong 0$ . [111], [129]. La CFD (Figure 2.48) est donc la conséquence de l'élargissement des hystérons les plus coercitifs du fait des interactions. Ce type de diagramme FORC sera nommé de type IFD+CFD par la suite.

## 5. Variation de la dispersion en champ de retournement pour une assemblée en interaction via un champ de type Ising

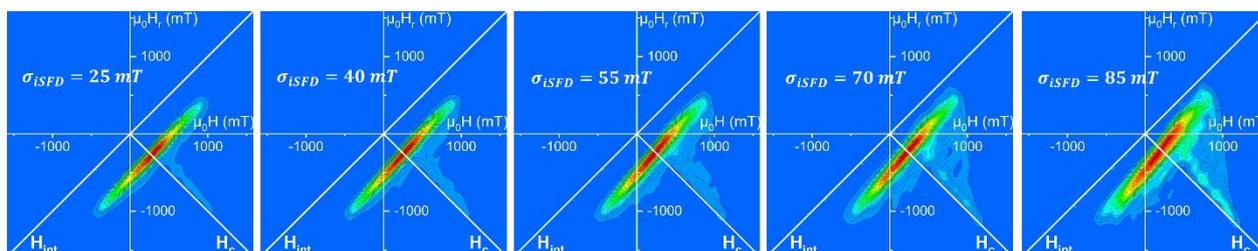


Figure 2.47 : diagrammes FORC après traitement de simulations d'une assemblée d'hystérons dispersés en champ de retournement plongés dans un champ d'interaction de type Ising.  $\langle \mu_0 H_{sw} \rangle = 300 \text{ mT}$ ,  $\sigma_{iSFD} = 25$  à  $85 \text{ mT}$ ,  $\langle \mu_0 H_{int}^{sat} \rangle \cong -500 \text{ mT}$ ,  $N = 1681$  hystérons.

La Figure 2.47 révèle que pour une assemblée d'hystérons dispersés en champ de retournement et en interaction *via* un champ de type Ising, l'augmentation de la largeur de l'iSFD accroît le nombre d'hystérons contribuant à la CFD : il en résulte une augmentation de  $\rho_{FORC}$  dans la zone triangulaire du diagramme FORC formée par les trois points  $A$ ,  $A_0$  et  $C$ , notamment le long du segment  $A_0C$ .

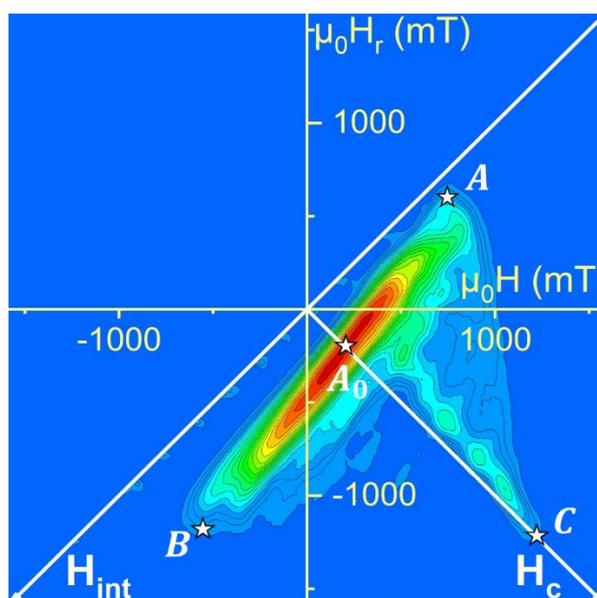


Figure 2.48 : diagramme FORC d'une assemblée d'hystérons dispersés en champ de retournement et plongés dans un champ d'interaction de type Ising.  $\langle \mu_0 H_{sw} \rangle = 300 \text{ mT}$ ,  $\langle \mu_0 H_{int}^{sat} \rangle \cong -500 \text{ mT}$ ,  $\sigma_{iSFD} = 85 \text{ mT}$ ,  $N = 1681$  hystérons.

La Figure 2.49.a) présente les profils  $\rho_{FORC}(H_c)$  relevés le long de l'axe  $H_c$ . Il apparaît une diminution de  $H_c^{FORC}$  relevé au point  $A_0$  avec l'augmentation de la largeur de l'iSFD, tendance identique à l'assemblée d'hystérons dispersés plongés dans un champ d'interaction moyen (Figure 2.43). L'inclinaison du segment AB par rapport à l'axe  $H_{int}$  en est également l'origine. La Figure 2.49.b) contient les profils  $\rho_{FORC}(H_{int})$  relevés parallèlement à l'axe  $H_{int}$ . Cette figure ne signale pas de changement notable dans la forme des profils  $\rho_{FORC}(H_{int})$ , ce qui est attendu puisque  $H_{int}$  est identique dans ces simulations. Il apparaît là encore un profil non plat, caractéristique d'un champ d'interaction de type Ising (partie III.B, p.69). Comme dans la partie III.D.2, p.71, la valeur moyenne de  $H_c$  est à lire à l'abscisse du point B dans le plan  $(H_c, H_{int})$ . Comme évoqué précédemment, ce type de champ d'interaction induit de fait une distribution en champ d'interaction dans l'assemblée. Il apparaît donc qu'en présence d'une telle distribution de champ d'interaction, l'ordre des retournements

imposée par la distribution en champ de retournement est perdu, ce qui efface la géométrie wishbone et induit un diagramme de géométrie IFD+CFD.

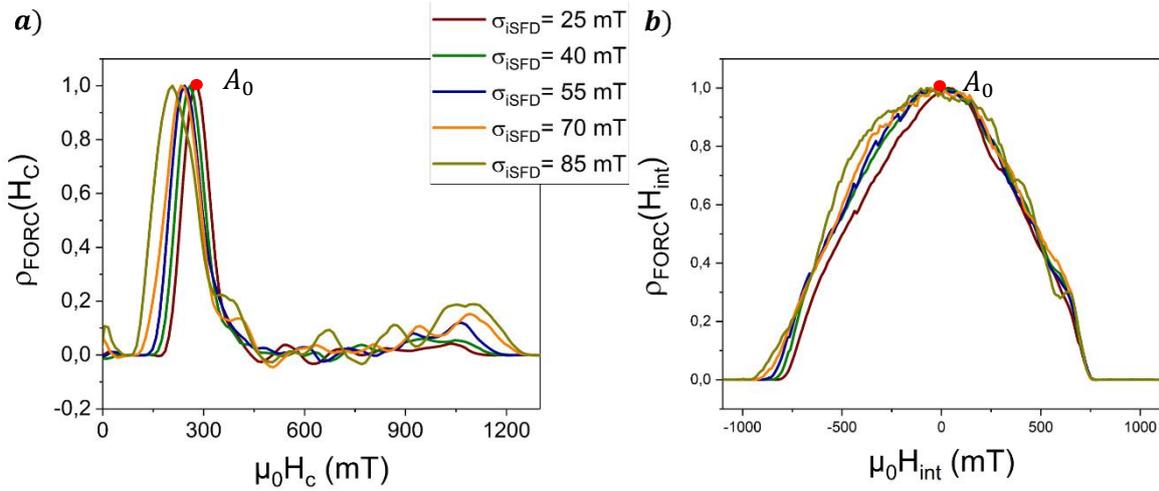


Figure 2.49 : a) profils de  $\frac{\rho_{FORC}}{\rho_{FORC}^{max}}$  parallèle à l'axe  $H_c$  effectués sur chaque diagramme FORC de la Figure 2.47 ; b) profils de  $\frac{\rho_{FORC}}{\rho_{FORC}^{max}}$  parallèle à l'axe  $H_{int}$  effectués sur chaque diagramme FORC.

$\sigma_{ISFD}$	$\sigma_{ISFD}^{fit}$	% d'erreur $\sigma_{ISFD}$	$\langle H_c^{FORC} \rangle$	$\langle H_c^{MHL} \rangle$	$\frac{\langle H_c^{MHL} \rangle - H_{c,min}}{3}$	$\langle H_{sw} \rangle$
25 mT	39,2 mT	56,8	278 mT	302 mT	27 mT	300 mT
40 mT	40,2 mT	0,5	261 mT	303 mT	40,4 mT	300 mT
55 mT	44,9 mT	18	249 mT	291 mT	53,4 mT	300 mT
70 mT	48,6 mT	30,5	238 mT	298 mT	70,5 mT	300 mT
85 mT	58,9 mT	30,7	217 mT	309 mT	88 mT	300 mT

De la même façon que dans la partie III.D.2, p.71,  $\sigma_{ISFD}^{fit} \neq \sigma_{ISFD}$  avec cependant une tendance commune de  $\sigma_{ISFD}^{fit}$  et  $\sigma_{ISFD}$ . Egalement, le point important est que la largeur de la distribution intrinsèque en champ de retournement est évaluée avec une erreur inférieure à 10% par la formule  $\frac{\langle H_c^{MHL} \rangle - H_{c,min}}{3}$ , avec  $H_{c,min}$  et  $H_c^{MHL}$  déterminés respectivement par les abscisses des points A et B dans le repère  $(H_c; H_{int})$  (eq. 2.91).

## 6. Variation de $H_{int}$ pour une assemblée en interaction via un champ de type Ising et dispersée en champ de retournement

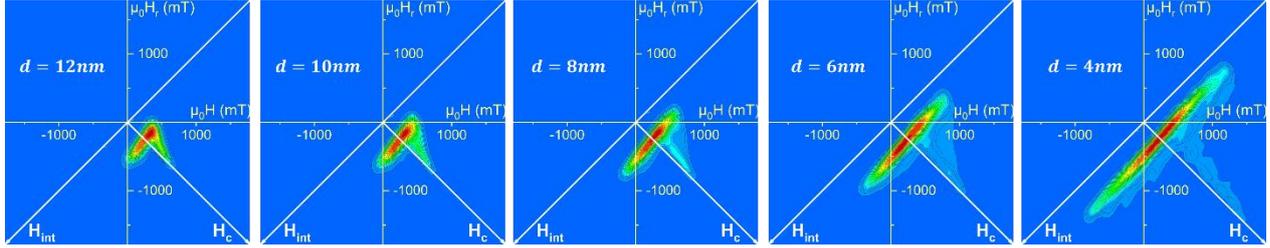


Figure 2.50 : diagrammes FORC après traitement de simulations d'une assemblée d'hystérons dispersés en champ de retournement plongés dans un champ d'interaction de type Ising avec des distances interfil  $d=12\text{nm}$  à  $4\text{nm}$ .  $\langle \mu_0 H_{sw} \rangle = 300\text{ mT}$ ,  $\sigma_{iSFD} = 60\text{ mT}$ ,  $N = 1681$  hystérons.

Ici l'augmentation de  $\langle H_{int} \rangle$  est réalisée par une diminution de la distance entre hystérons. Ces différentes simulations étant réalisées à nombre d'hystérons constant, la taille du réseau évolue. De ce fait, un réseau de faibles dimensions latérales subira des effets de bords plus importants : les hystérons en périphérie du réseau subissent, du fait d'un nombre de voisin réduits, un champ d'interaction plus faible qu'au centre [112]. Ainsi l'augmentation de  $\langle H_{int} \rangle$  aux faibles distances inter-hystérons s'accompagne inévitablement d'une augmentation de  $\sigma_{H_{int}}$ . La Figure 2.50 révèle que pour une assemblée d'hystérons en interaction *via* un champ de type Ising et soumis à une dispersion en champ de retournement, la géométrie de  $\rho_{FORC}$  effectue une transition de wishbone vers IFD+CFD à mesure que le champ d'interaction augmente. Cette transition signifie qu'à grande distance interfil, lorsque  $\sigma_{H_{int}}$  est minimum, le régime d'interaction se rapproche du régime de champ moyen, dont la signature est une géométrie wishbone. La Figure 2.51 présente les profils  $\rho_{FORC}(H_c)$  et  $\rho_{FORC}(H_{int})$ . Sur le profil  $\rho_{FORC}(H_c)$ , seul le point  $C$  se déplace avec la variation de la distance interfil signifiant une augmentation du champ d'interaction qui exalte la coercivité (eq. 2.90). La gaussienne sondée par ce profil ne varie pas et donne  $\sigma_{iSFD}^{fit} = 47\text{ mT}$  et  $\mu_0 H_c^{FORC} = 250\text{ mT}$ , à comparer avec les caractéristiques de l'iSFD introduite  $\sigma_{iSFD} = 60\text{ mT}$  et  $\langle \mu_0 H_{sw} \rangle = 300\text{ mT}$ . Ici encore, le profil  $\rho_{FORC}(H_c)$  n'est donc pas caractéristique de l'iSFD.

Le profil  $\rho_{FORC}(H_{int})$  montre bien une signature du champ local pour les faibles distances interfil ( $d=4\text{nm}$ ) et donc pour un fort champ d'interaction. A mesure que la distance  $d$  augmente, lorsque  $\sigma_{H_{int}}$  diminue, le profil s'aplatit et tend à révéler la signature du champ moyen visible Figure 2.45.

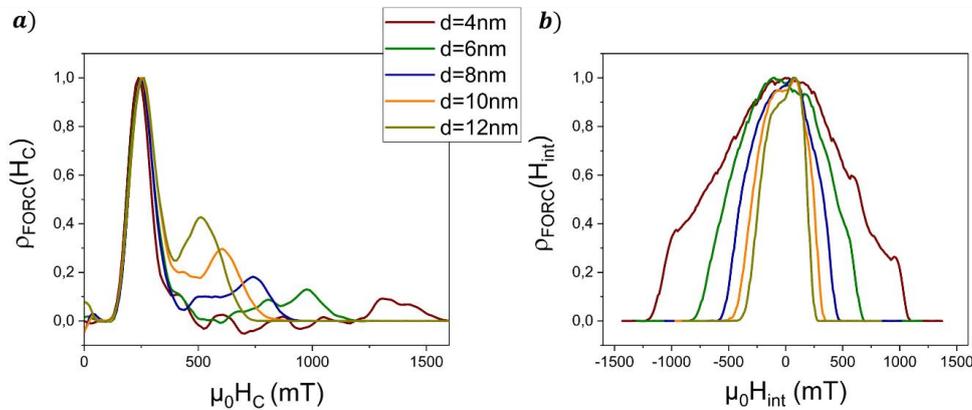


Figure 2.51 : a) profils de  $\frac{\rho_{FORC}}{\rho_{FORC}^{max}}$  parallèles à l'axe  $H_c$  effectués sur chaque diagramme FORC de la Figure 2.50 ; b) profils de  $\frac{\rho_{FORC}}{\rho_{FORC}^{max}}$  parallèles à l'axe  $H_{int}$  effectués sur chaque diagramme FORC.

A ce stade il est impossible de trancher sur la cause de la transition linéaire/wishbone en champ local. Deux possibilités se présentent pour provoquer une transition wishbone vers IFD+CFD: l'augmentation de l'amplitude moyenne du champ d'interaction  $\langle H_{int} \rangle$ , ou l'augmentation de la dispersion en champ d'interaction  $\sigma_{H_{int}}$ . Afin de moduler  $\sigma_{H_{int}}$  indépendamment, la taille du réseau simulé est variée mais en conservant l'amplitude du champ d'interaction  $H_{int}^{sat}$  constante (également quel que soit  $M$ , Figure 2.52.b), et ce en adaptant la constante  $D$  de la formule (2.82) (*i.e.* le diamètre, bien que la notion de diamètre soit inopérante ici ;  $D$  agit ici seulement sur l'amplitude de  $H_{int}$ ).  $\sigma_{H_{int}}$  est calculé comme l'écart moyen à la moyenne du champ d'interaction calculé pour chaque hystéron et représenté sur la Figure 2.52.a). Il apparaît que plus la distance inter-hystéron est faible, c'est-à-dire pour des réseaux peu étendus, plus  $\sigma_{H_{int}}$  est important à la saturation du fait des effets de bords. Le point important est qu'il apparaît que  $\sigma_{H_{int}}$  est constant pendant le renversement pour les grandes distances inter-hystérons produisant des FORC wishbone telles que présentées Figure 2.53.d-e-f. Cela traduit le fait que la succession de renversement des hystérons n'est pas dictée par le champ d'interaction. En effet, si le champ d'interaction ordonne le renversement, les zones à forts champ d'interaction local sont favorisées dans le renversement, renversement entraînant la baisse locale de  $H_{int}$  :  $\sigma_{H_{int}}$  évoluerait au fur et à mesure du renversement pour être minimal à  $H_c$ . C'est le comportement observé Figure 2.52.a pour les faibles distances inter-hystérons présentant quant à elles des FORC de géométrie IFD+CFD. Il est à noter que pour ces distances inter-hystérons, la dispersion du champ d'interaction est minimale au champ coercitif pour être maximale à la saturation, en accord avec les résultats de A. Stancu *et al.* [111]. Les Figure 2.52.c et d indiquent que les profils IFD des grandes distances inter-hystérons sont plats (Figure 2.52.c) tandis que ceux associés aux faibles distances ne sont pas constants (Figure 2.52.d). Dans les parties précédentes, cette différence était attribuée au champ moyen (profil plat) et au champ local (profil non constant). Les grandes distances, caractérisées par de faibles  $\sigma_{H_{int}}$  à la saturation, présentent ainsi un retournement identique à celui obtenu en régime d'interaction de champ moyen. Un diagramme FORC type wishbone est alors obtenu, si tant est qu'une distribution en champ de retournement soit présente. Les faibles distances inter-hystérons, caractérisées par de forts  $\sigma_{H_{int}}$  à la saturation, présentent un comportement de champ d'interaction local et génèrent des diagrammes FORC IFD+CFD. Il est par ailleurs possible de voir l'apparition de la CFD comme une manifestation du champ local, car notamment elle n'est jamais obtenue en champ moyen.

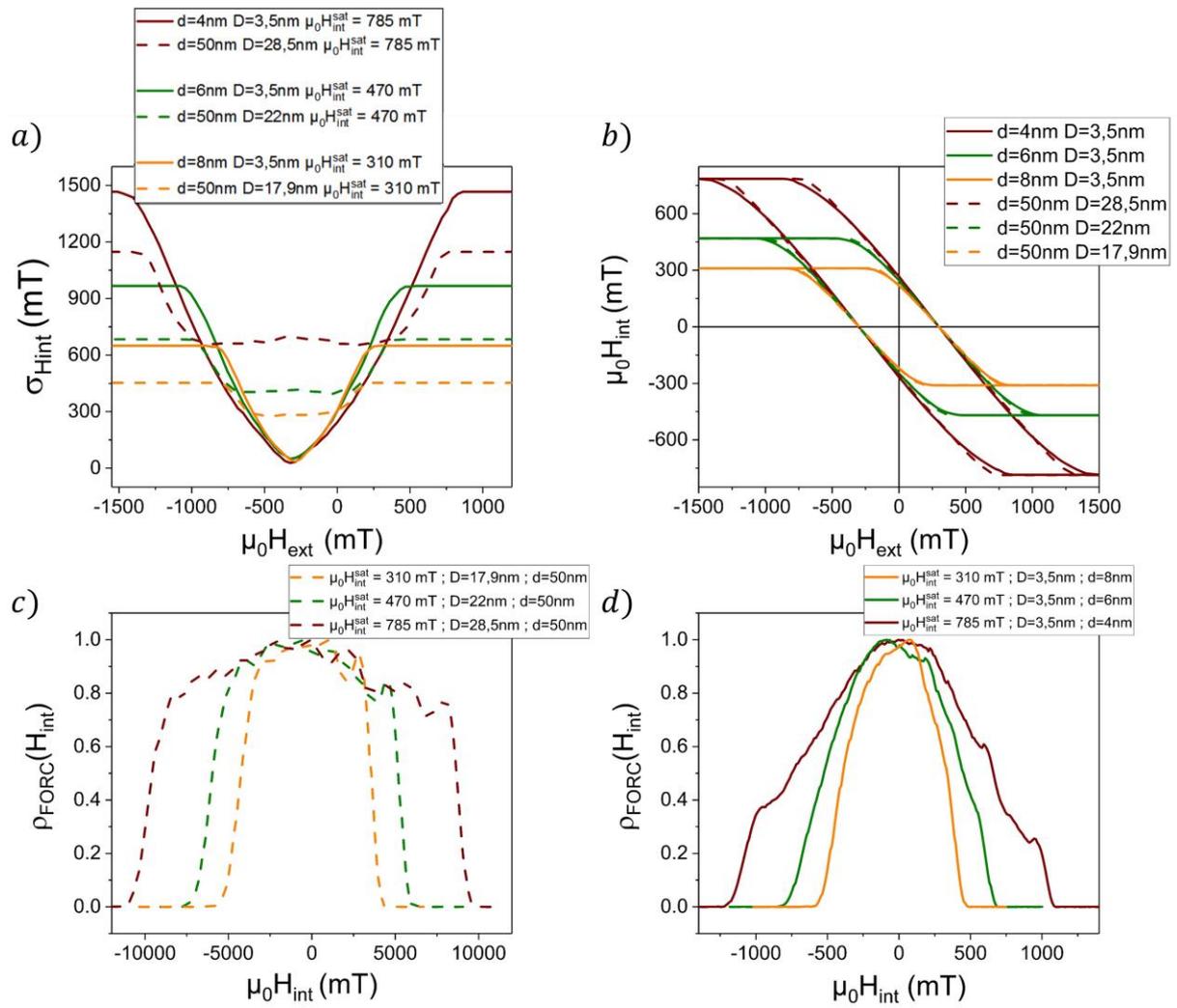


Figure 2.52 : a) dispersion du champ d'interaction calculé comme l'écart moyen à la moyenne du champ d'interaction. b) champ d'interaction moyenné sur l'ensemble des hystérons. c) profil de  $\frac{\rho_{FORC}}{\rho_{FORC}^{max}}$  parallèle à l'axe  $H_{int}$  effectué sur chaque diagramme FORC visible sur la partie gauche de Figure 2.53. d) profil de  $\frac{\rho_{FORC}}{\rho_{FORC}^{max}}$  parallèle à l'axe  $H_{int}$  effectué sur chaque diagramme FORC visible sur la partie droite de Figure 2.53.  $\mu_0 H_{int}^{sat}$  correspond ici à la au champ d'interaction moyenné sur toute l'assemblée à la saturation.

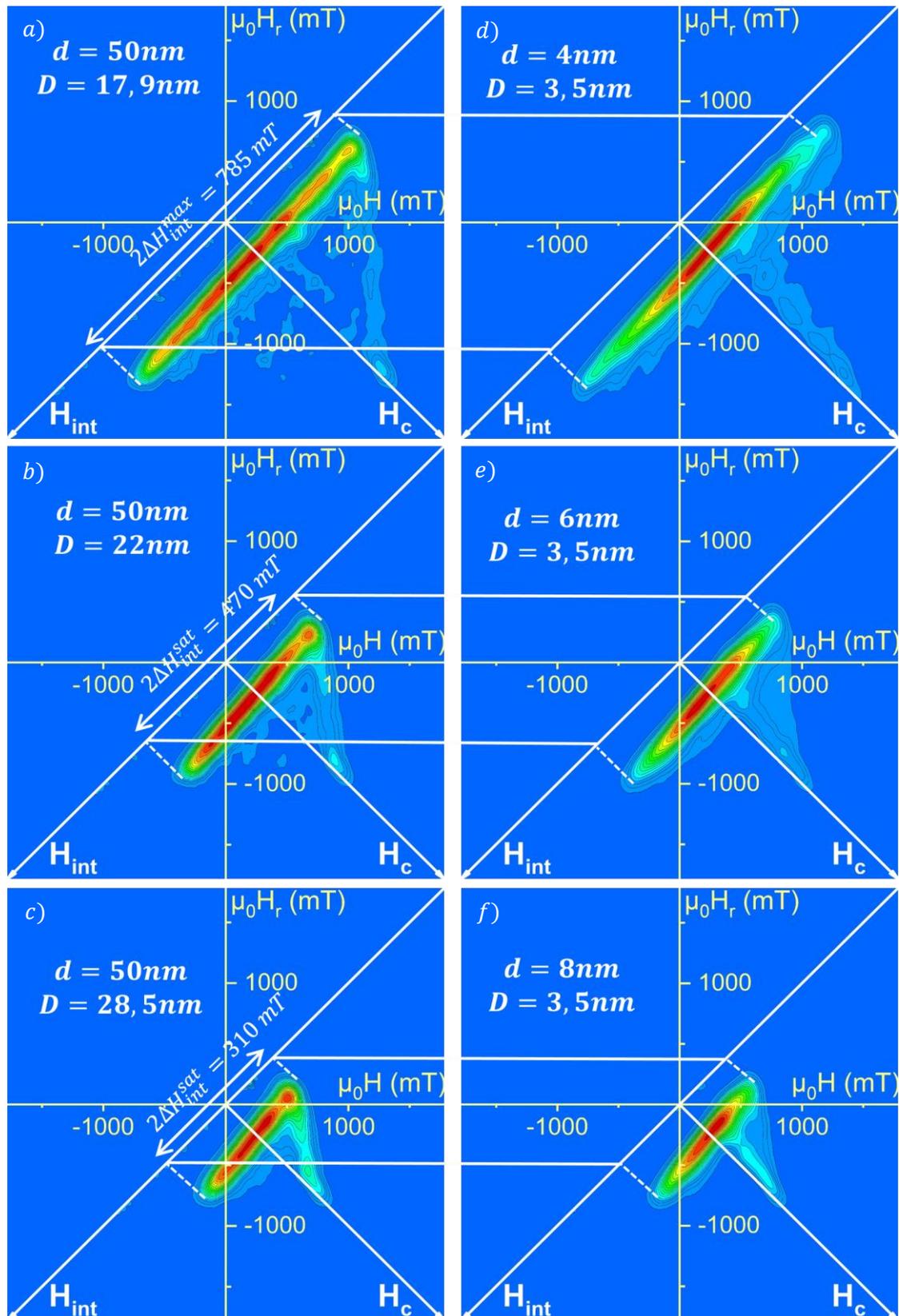


Figure 2.53 : a) b) et c) : diagrammes FORC après traitement de simulations d'une assemblée d'hystérons dispersés en champ de retournement plongés dans un champ d'interaction de type Ising avec une distance interfil fixée  $d=50\text{nm}$ .  $\langle \mu_0 H_{sw} \rangle = 300\text{ mT}$ ,  $\sigma_{ISFD} = 60\text{ mT}$ ,  $N = 1681$  hystérons le diamètre est ajusté en prenant  $D = 17,9$  à  $28,5\text{nm}$  pour ajuster l'amplitude de la moyenne du champ d'interaction. d) e) et f): diagrammes FORC après traitement de simulations d'une assemblée d'hystérons dispersés en champ de retournement plongés dans un champ d'interaction de type Ising avec des distances interfil  $d=4\text{nm}$  à  $8\text{nm}$ .  $\langle \mu_0 H_{sw} \rangle = 300\text{ mT}$ ,  $\sigma_{ISFD} = 60\text{ mT}$ ,  $D = 3,5\text{nm}$ ,  $N = 1681$  hystérons.

## 7. Conclusion : caractéristiques majeures des diagrammes FORC

Au cours de ce dernier paragraphe trois géométries ont été référencées :

- IFD ou linéaire
- Wishbone
- IFD + CFD

Chacune de ces géométries est la signature d'un régime durant le retournement de l'assemblée d'hystérons.

- **Géométrie IFD :**

L'assemblée n'est pas ou peu dispersée en champ de retournement. L'IFD est entièrement due à l'effet de cisaillement du cycle par le champ d'interaction. De plus,  $\rho_{FORC}$  est parallèle à l'axe  $H_{int}$ , de largeur  $2H_{int}^{sat}$  et de hauteur constante en champ d'interaction homogène dit moyen, tandis que  $\rho_{FORC}$  est de hauteur non constante en champ local dit champ d'Ising puisqu'ainsi la susceptibilité différentielle du cycle majeur n'est pas constante durant le retournement. Le champ coercitif de l'assemblée peut être lu au point B puisque son abscisse vaut toujours  $H_c^{MHL} = \langle H_{sw} \rangle$ , quel que soit le type de diagramme FORC. Une variation de la coercivité moyenne ou de l'amplitude des interactions ne change pas la géométrie de  $\rho_{FORC}$ . Si une (faible) iSFD est présente, le profil  $\rho_{FORC}(H_c)$  n'en rend pas compte quantitativement. Par contre, elle est évaluée avec succès par  $\frac{\langle H_c^{MHL} \rangle - H_{c,min}}{3}$ , avec  $H_{c,min}$  et  $H_c^{MHL}$  sondés respectivement aux points A et B.

- **Géométrie wishbone :**

L'assemblée est dispersée en champ de retournement et un champ d'interaction uniforme (*i.e.* champ moyen) domine le régime d'interaction. La branche AC caractéristique de la forme wishbone (Figure 2.41) provient des hystérons les plus coercitifs de la FORC en cours : ils subissent un décalage  $H_u$  proportionnel à  $f_1$  la proportion d'hystérons *up*, tout en augmentant artificiellement leur largeur  $H_c$  et ce proportionnellement à  $f_2$  la proportion d'hystérons *down*. L'IFD est due à l'effet de cisaillement du cycle par le champ moyen, elle est représentative du champ de décalage que subissent les hystérons les moins coercitifs de la FORC en cours. Le point B de l'IFD permet de déterminer  $H_{c,MHL}$ . L'amplitude du champ d'interaction à la saturation  $H_{int}^{sat}$  est bien représentée par l'IFD et est mesurable au point A. L'angle que forme l'IFD avec l'axe  $H_{int}$  augmente avec la largeur de l'iSFD. Les profils le long de l'axe  $H_c$  ne sont pas représentatifs de l'iSFD cependant, la variation de leur largeur est en accord avec la variation de l'iSFD. La largeur de la distribution en champ de retournement peut être évaluée avec précision par  $\frac{\langle H_c^{MHL} \rangle - H_{c,min}}{3}$ , avec  $H_{c,min}$  et  $H_c^{MHL}$  sondés respectivement aux points A et B.

- **IFD + CFD**

Comme pour la géométrie linéaire, l'IFD est entièrement due à l'effet de cisaillement du cycle par le champ d'interaction. L'amplitude du champ d'interaction à la saturation  $H_{int}^{sat}$  est mesurable au point A tandis le point B indique  $H_{c,MHL}$ . La CFD, étant quasiment alignée avec l'axe  $H_c$  (*i.e.*  $H_{int} = 0$ ), concerne les hystérons symétriques ou quasiment symétriques. Elle apparaît pour une assemblée soumise à un champ d'interaction local lui-même particulièrement dispersé. Ainsi lorsque  $\sigma_{H_{int}}$  est

important (*i.e.* faibles distances inter-hystérons), cette grandeur varie fortement avec l'aimantation, le régime d'interaction non uniforme se traduit par un profil  $\rho_{FORC}(H_{int})$  non constant et le diagramme est IFD+CFD. A l'inverse, pour  $\sigma_{H_{int}}$  faible (*i.e.* grandes distances inter-hystérons),  $\sigma_{H_{int}}$  varie peu avec l'aimantation, le régime d'interaction tend à être homogène avec un profil  $\rho_{FORC}(H_{int})$  constant et le diagramme devient wishbone. Que la forme soit IFD+CFD ou wishbone, la largeur de la distribution en champ de retournement peut être évaluée avec précision par  $\frac{\langle H_c^{MHL} \rangle - H_{c,min}}{3}$ .

# Elaboration de réseaux ultra-denses auto-organisés de nanofils de Co monocristallins *hcp*

De par leurs propriétés, les réseaux de nanofils sont des structures d'intérêts dans des domaines variés tels que les média magnétiques à hautes densités ou la médecine [130]. Les méthodes de fabrication de réseaux de nanofils magnétiques les plus communes (électrodéposition, *pulse laser deposition*, etc) ne permettent généralement pas d'obtenir des nanofils monocristallins, et par ailleurs les densités surfaciques sont jusqu'à un ordre de grandeur en-dessous de la densité surfacique des réseaux présentés ici [128]. La méthode de synthèse a été mise au point il y a quelques années au LPCNO [131], [132]. Le concept général de cette méthode *bottom-up* est de réaliser la synthèse de nanocristaux en solution par décomposition d'un précurseur organo-métallique en présence de ligands, et particulièrement d'induire la nucléation des nanocristaux à partir d'un germe bidimensionnel, un substrat cristallin. Le point fort de cette méthode est le contrôle de la forme et de la taille des objets monocristallins, ainsi que l'obtention spontanée d'un réseau de nanocristaux auto-organisé. Ce chapitre décrit la méthode d'élaboration et les propriétés structurales de réseaux ultra-denses de nanofils de cobalt.

## I. Principes généraux de la croissance de nanofils de Co monocristallins *hcp* épitaxiés sur *Pt(111)*

### A. Synthèse de nanofils de cobalt monocristallins

La synthèse chimique est réalisée dans l'équipe « Nanostructures et Chimie Organométallique » par Laurent Peres et Deliang Yi sous la supervision de Katerina Soulantica.

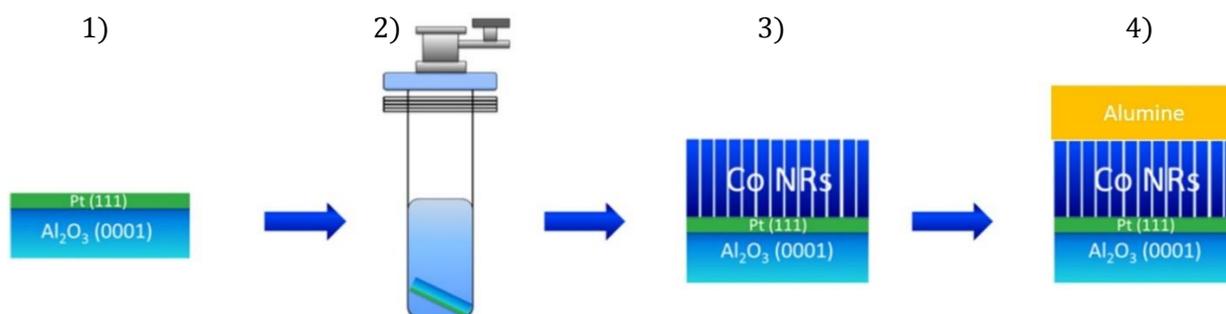


Figure 3.54 : illustration des processus d'élaboration de nanostructures de Co sur surfaces métalliques. 1) dépôt de 20nm de platine par pulvérisation cathodique sur substrats monocristallins Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001) de quelques mm<sup>2</sup>, 2) croissance chimique auto-organisée : réduction du précurseur métallique possible en présence du substrat métallique, d'un acide, d'une amine et d'un solvant, permettant la nucléation de nanostructures de Co hcp. 3) arrêt de la réaction en retirant le substrat de la solution puis nettoyage de l'échantillon avec différents solvants dans un bain à ultrasons. 4) étape non systématique : dépôt par pulvérisation cathodique d'une couche épaisse d'alumine (~500nm) de façon à protéger l'échantillon de l'oxydation.

La méthode générale, illustrée Figure 3.54, débute par la préparation du milieu de synthèse dans lequel sont ensuite introduits un ou plusieurs substrats (généralement un substrat de 1 cm<sup>2</sup> et un de 3,4 mm<sup>2</sup>). La croissance de nanocristaux de Co est obtenue par la réduction d'un complexe de Co, [Co{N(SiMe<sub>3</sub>)<sub>2</sub>}<sub>2</sub>(thf)] grâce à une pression de 3 bar de dihydrogène dans le réacteur. Le milieu de synthèse est ainsi constitué de ce précurseur de cobalt auquel est ajouté un acide et une amine. Pour la majorité des synthèses réalisées, l'amine utilisée est l'hexadécylamine (HDA) et l'acide est l'acide laurique (LA), (Figure 3.55), l'ensemble étant solubilisé dans un solvant, le toluène ou l'anisole.

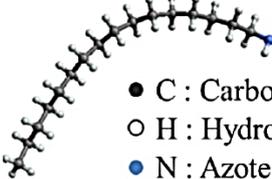
Acide Laurique (LA)	Hexadécylamine (HDA)
CH <sub>3</sub> (CH <sub>2</sub> ) <sub>10</sub> COOH	CH <sub>3</sub> (CH <sub>2</sub> ) <sub>15</sub> NH <sub>2</sub>
 <ul style="list-style-type: none"> <li>● C : Carbone</li> <li>○ H : Hydrogène</li> <li>● O : Oxygène</li> </ul>	 <ul style="list-style-type: none"> <li>● C : Carbone</li> <li>○ H : Hydrogène</li> <li>● N : Azote</li> </ul>

Figure 3.55 : représentation schématique de l'acide laurique (à gauche) et de l'hexadécylamine (à droite).

Le mélange Co-LA-HDA, qui est réalisé en boîte à gants dans un réacteur Fisher-Porter, forme une solution homogène. Après introduction des substrats dans la solution, fermeture et connexion à une rampe à vide, le réacteur est mis sous pression de 3 bars de H<sub>2</sub>. La réaction a lieu sans agitation mécanique. Les différents paramètres de cette synthèse sont la température (entre 100°C et 150°C), contrôlée à l'aide d'un bain d'huile (Figure 3.56), le temps de la réaction (entre 4 et 72 heures), les concentrations des réactifs et le rapport des concentrations [Co]/[LA]/[HDA] [133]–[135].

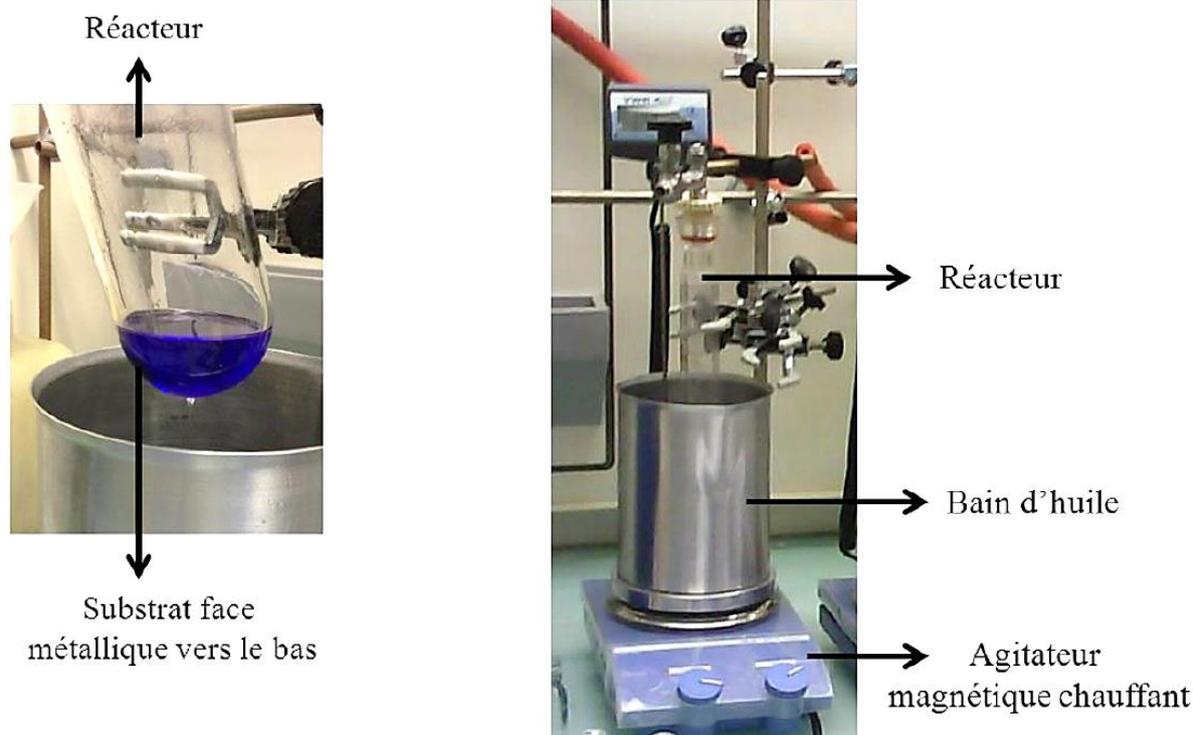
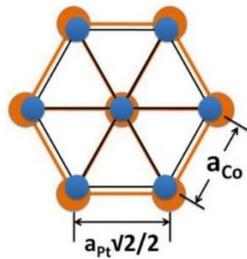


Figure 3.56 : Réacteur Fisher-Porter contenant la solution initiale de synthèse de nano-objets (précurseur organométallique, acide, amine dissouts dans un solvant) dans laquelle est plongé le substrat (à gauche). Réacteur Fisher-Porter pressurisé sous 3 bars de  $H_2$  et positionné dans le bain d'huile régulant la température de réaction (à droite).

L'utilisation de substrats  $3,4\text{mm}^2$  n'a jamais donné de résultats concluants en termes de propriétés magnétiques : il semblerait que la croissance de cobalt sur le substrat soit affectée par les bords du substrat. Ce problème est contourné en utilisant des substrats de  $1\text{cm}^2$  qui sont ensuite clivés de façon à effectuer les mesures magnétiques par VSM (Vibrating Sample Magnetometer) qui nécessite des échantillons de petites dimensions ( $< 4\text{mm}$  de côté). Les différentes observations sont faites par microscopie MEB (microscope électronique à balayage) à l'AIME (Atelier Interuniversitaire de Micro-Electronique) par L. Peres, D. Yi et A. Pierrot, ou par S. Le Blond du Plouy au centre de microcaractérisation Raymond Castaing de l'institut Clément Ader, et par MET (microscope électronique en transmission) au CEMES (Centre d'Elaboration de Matériaux et d'Etudes Structurales) par B. Warot-Fonrose, T. Blon et C. Garcia-Marcelot. Ces analyses structurales sont complétées par des mesures magnétiques effectuées sur un PPMS (Physical Property Measurement System) Quantum Design équipé du module VSM, de mesures par diffraction de rayons X effectuées au LPCNO et de mesures SAXS (Small Angle X-ray Scattering) réalisées par P. Roblin sur l'équipement de la fédération de recherche FERMaT, localisé au LGC (Laboratoire de Génie Chimique).

Afin de profiter des propriétés magnétiques du  $Co$  hcp, la direction de croissance des nanofils doit être parallèle à l'axe  $c$  (direction  $[0001]$ ) de la maille cristalline hcp du  $Co$ . Ainsi l'anisotropie magnétocristalline et l'anisotropie de forme se conjuguent dans une anisotropie uniaxiale. Pour ce faire, la croissance doit s'effectuer sur une surface cristalline de symétrie 6. Afin d'obtenir cette symétrie des substrats de saphir commerciaux de  $1\text{cm}^2$  ou bien  $3,4\text{mm} \times 3,4\text{mm}$ , polis sur une des faces, sont utilisés. Ces substrats  $Al_2O_3$  présentent le plan  $(0001)$  de symétrie 6. Cependant, la croissance chimique de cobalt ne s'effectue pas sur le saphir, c'est pourquoi le dépôt d'un film mince métallique, généralement de  $20\text{nm}$  d'épaisseur, est effectué par pulvérisation cathodique sur le substrat. Le platine semble être un bon compromis de par sa direction de croissance préférentielle : Pt(111). Après dépôt, le film de platine présente donc une surface de symétrie 6 et la Figure 3.57

présente une illustration du désaccord de maille  $\eta$  entre le paramètre de maille du *Pt* et du *Co* non négligeable mais tout de même acceptable puisque malgré ce désaccord, la croissance épitaxiale à lieu en phase vapeur ou liquide [136].



$$\eta = \frac{a_{Co} - a_{Pt} \frac{\sqrt{2}}{2}}{a_{Pt} \frac{\sqrt{2}}{2}} \times 100\% = -9.6\%$$

Figure 3.57 : représentation schématique des plans *Pt*(111) et *Co*(0001) superposés et calcul du désaccord des paramètres de mailles théorique entre *Co*(0001) et *Pt*(111).

## B. Effet des ligands et des solvants

La voie de la synthèse chimique permet de changer de produit de synthèse de façon à voir varier les caractéristiques du réseau. Ainsi, dans la volonté de faire varier la densité du réseau obtenu, plusieurs synthèses ont été effectuées en changeant de solvants ou de ligands. Comme évoqué précédemment la solution de synthèse contient un acide, une amine et un précurseur de cobalt, le tout dissous dans un solvant. Les ligands ont plusieurs rôles : (a) ils forment des espèces de stabilité différente par réaction avec le précurseur autrement dit, ils contrôlent la cinétique de la réaction, (b) ils stabilisent la surface des nanoparticules pendant et après leur synthèse. Leur rôle est donc primordial pour le contrôle de la taille et de la forme des nanoparticules. Dans le cas présent, ils peuvent jouer un rôle supplémentaire qui est d'interagir avec la surface du support. Une organisation des ligands ou des espèces moléculaires sur la surface du support métallique peut former un motif qui pourrait déterminer les espaces entre les nanofils formés sur le support. Dans le cas de la synthèse de nanofils de cobalt, en absence de support, les ligands (*i.e.* l'acide et l'amine) empêchent les particules de coalescer en les enrobant. En outre, il semblerait que l'acide se fixe sur les faces latérales des nanofils, inhibant ainsi la croissance sur les faces latérales et induisant une adsorption de cobalt sur les extrémités des nanofils présentant les plans *Co*(0001) [133]. Ainsi les fils croissent suivant la direction *Co*[0001] définissant un nanocristal de forme anisotrope. Cependant ce n'est pas leur seul rôle puisque les ligands réagissent et changent la nature du précurseur. Les ligands influent donc sur la facilité à former des nanoparticules durant la réaction. Au début de la réaction, l'amine réagit avec le précurseur et forme des complexes faciles à réduire tandis que l'acide forme des complexes plus stables qui ne peuvent se décomposer que sur les germes issus des complexes avec l'amine [137].

Suivant leur polarité, les solvants peuvent interagir avec les espèces moléculaires pour les stabiliser ou les déstabiliser, mais suivant leur capacité à se coordonner dans certains cas ils peuvent également interagir avec les surfaces, ce qui en fait un paramètre supplémentaire. En changeant les ligands utilisés (ce qui induit la modification des propriétés électroniques et stériques) nous pouvons modifier : (a) la stabilité des espèces moléculaires qui se forment avant et pendant la réaction, donc les dimensions de nano-objets, (b) leur capacité de stabilisation sélective de certaines facettes donc la forme des objets obtenus, (c) de par leur encombrement stérique différent ils peuvent aussi modifier l'espace interfil. Afin de pouvoir modifier les distances interfils nous avons donc modifié la nature des ligands. Ainsi à partir de la composition de base HDA/LA/Co nous avons changé soit l'amine soit l'acide

afin de modifier les dimensions et/ou la distance interfil des réseaux. Les différentes solutions de synthèses qui seront présentées dans cette partie sont :

- HDA/LA/Co dans l'anisole ou dans le toluène
- BA/LA/Co dans le toluène, avec BA : benzylamine Figure 3.58.a
- HDA/PAA/Co dans le toluène, avec PAA : acide phénylacétique Figure 3.58.b.

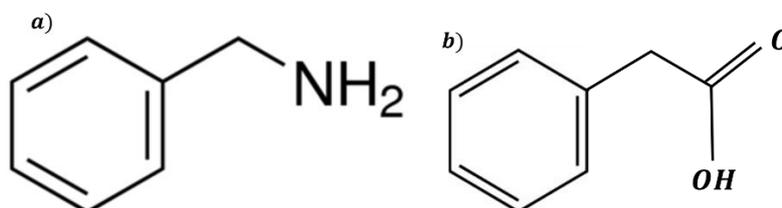


Figure 3.58 : représentation schématique de a) benzylamine (BA) et b) acide phénylacétique (PAA).

Il est à noter que les rôles multiples des ligands peuvent jouer dans les différentes étapes de la synthèse des réseaux rendant difficile l'anticipation des effets de ces changements. Une fois en interaction avec la surface des nanoparticules, et probablement avec la surface du Pt(111) du substrat, les longues chaînes des ligands peuvent s'«interdigiter» en formant des couches qui déterminent la distance entre les nano-objets. Il est possible aussi que les ligands se replient diminuant ainsi leur encombrement stérique. Le benzylamine et l'acide phénylacétique possèdent des cycles aromatiques laissant ainsi la possibilité à ces molécules de s'organiser entre elles sur les surfaces par interaction  $\pi$ -stacking des cycles aromatiques. Il est fortement probable que ce phénomène de  $\pi$ -stacking joue un rôle sur l'encombrement stérique localisé sur les faces latérales des nanofils. En ce qui concerne les solvants, l'anisole est plus polaire que le toluène, ce qui pourrait avoir un effet sur la nature et la stabilité des espèces moléculaires.

Ce court paragraphe montre bien que le changement des espèces chimiques dans la solution de départ peut amener à un résultat très différent de celui souhaité. De plus comme évoqué il est difficile voire impossible de prédire les effets d'une espèce ou d'une autre sur la structure du réseau obtenu en fin de synthèse.

## C. Elaboration de substrats métalliques.

Le but du dépôt de Pt sur  $Al_2O_3(0001)$  est de permettre la croissance épitaxiale des nanofils de cobalt qui ne se produit pas sur le saphir nu. Comme énoncé précédemment, le platine doit présenter une surface cristalline de symétrie 6, c'est pourquoi un film de platine épitaxié est préférable afin de d'imposer une cohérence cristallographie aux nucléi de Co. Les substrats de saphir utilisés présentent une face polie pour une taille de  $1\text{cm} \times 1\text{cm}$  et d'épaisseurs  $1\text{mm}$  ou  $0.5\text{mm}$ , ainsi que des substrats plus petits de  $3,4\text{mm} \times 3,4\text{mm}$  pour une épaisseur de  $0,5\text{mm}$ . L'étape de dépôt de Pt s'effectue dans un bâti sous vide relié à une boîte à gants (Figure 3.59).

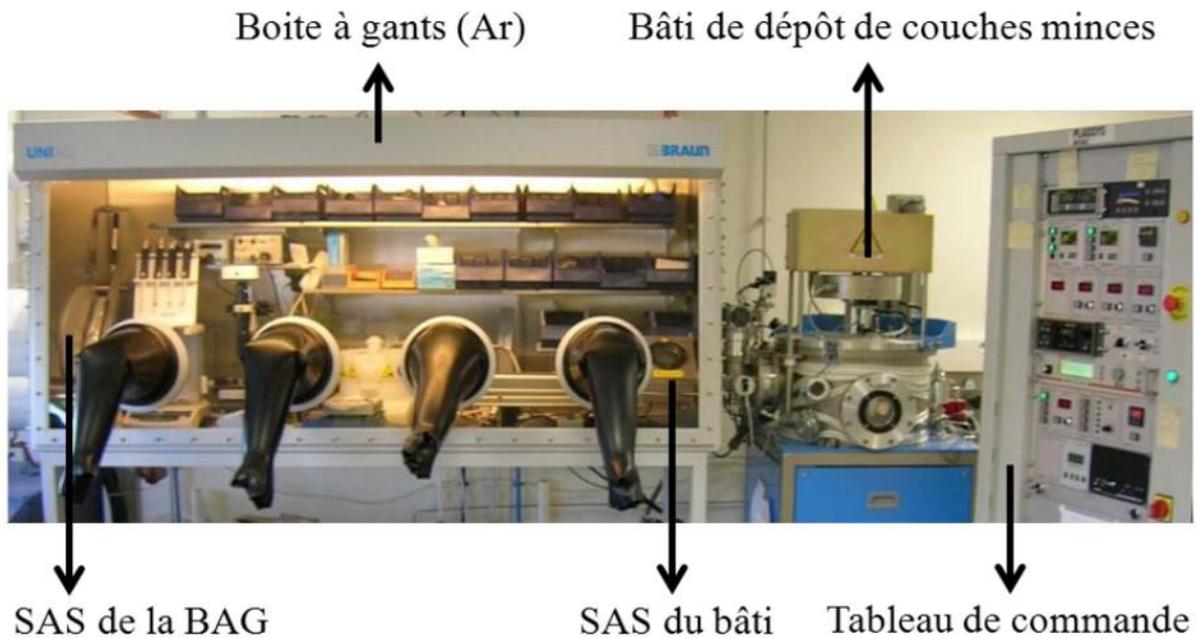


Figure 3.59 : dispositif d'élaboration combinant un bâti de dépôt et une boîte à gants.

Une couche mince de platine de  $20\text{ nm}$  est déposée par pulvérisation cathodique, à  $500^\circ\text{C}$  sous vide, sur un substrat  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$  préalablement recuit sous vide à  $750^\circ\text{C}$  pendant  $1\text{ h}$  pour éliminer les impuretés [131]. Observées en vue plane par MEB, il apparaît que les couches minces de Pt sont formées de grains coalescés d'environ  $40\text{ nm}$  de diamètre moyen (Figure 3.60). Les analyses par diffraction des rayons X (Figure 3.61) confirment une croissance de la couche qui expose une surface Pt(111) : le Pt croît selon les plans denses (111) du réseau *cfc* sur le substrat  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$  suivant la relation d'épitaxie Pt(111) [1-10] //  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$  [1-100]. Les analyses par réflectivité des rayons X confirment l'épaisseur de  $20\text{ nm}$  et des mesures à l'AFM (Atomic Force Microscopy) indiquent une rugosité de  $0.3\text{ nm}$ .

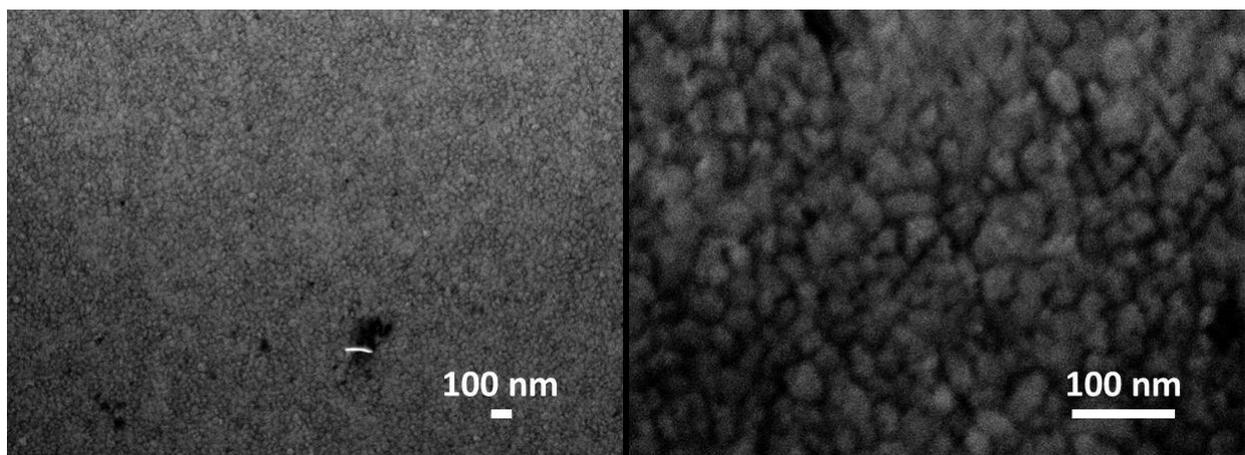


Figure 3.60 : Vue plane en MEB (Microscope Electronique à Balayage) d'un film mince de Pt(111)  $20\text{ nm}/\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$  avant synthèse chimique.

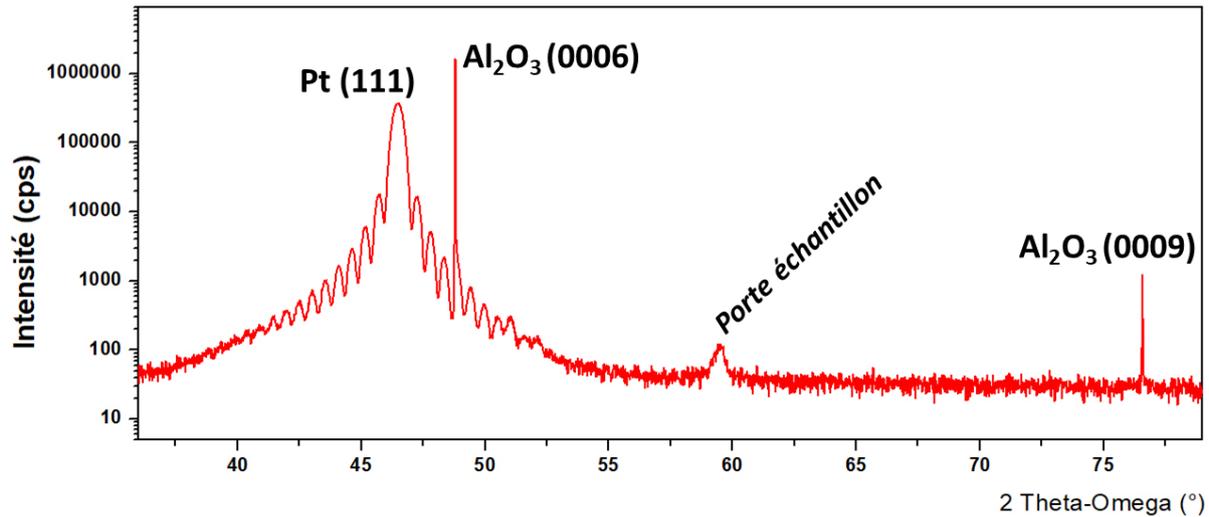


Figure 3.61 : Diffractogramme X ( $\lambda K\alpha_1$  Co) d'un échantillon avant croissance du Co. Il apparaît les pics  $Al_2O_3(0006)$  provenant du substrat, du film de Pt(111) et un pic parasite issu du porte-échantillon du diffractomètre.

## D. Protection des échantillons

Il est important de protéger les échantillons de l'oxydation avant les mesures magnétiques. Cette protection est assurée par une épaisseur d'environ  $350nm$  d'alumine déposé directement sur le réseau de nanofils par pulvérisation cathodique en utilisant exclusivement de l'argon comme gaz procédé. Comme le montre la Figure 3.62, cette méthode est satisfaisante tant que le relief de surface n'est pas fortement affecté par des nano-objets parasites. Les impuretés les plus problématiques vis-à-vis du dépôt de la couche d'alumine sont des oursins de cobalt nucléés dans la solution qui se déposent sur le réseau durant la synthèse. Une comparaison entre les cycles d'hystérésis d'un échantillon ayant subi ce type de traitement et un échantillon exposé à l'air sans protection sont présentés Figure 3.62. Pour l'image présentée en a), les mesures ont été effectuées juste avant dépôt et quelques mois après, tandis que la mesure présentée en b) a été réalisée après que le même échantillon ait passé trois années exposé à l'air. Sur l'image a), aucun champ d'échange n'est détecté et les mesures avant et après protection sont presque identiques. Une légère dissymétrie est tout de même remarquée à l'approche de la saturation signifiant la potentielle présence d'oxyde induisant un couplage Co/CoO restant cependant très faible comparé aux effets visibles sur le cycle visible de la Figure 3.62.b). Cette procédure n'a pas été systématique, car une fois effectuée il est impossible de faire des observations MEB ainsi que certaines mesures comme l'holographie magnétique ou bien le SAXS. Lorsque les échantillons ne sont pas protégés par un dépôt d'alumine, la préparation de l'échantillon pour une mesure VSM est réalisée en boîte à gants, le transfert jusqu'au VSM est réalisé avec un porte-tube scellé sous argon dans la boîte à gants, et l'introduction rapide de l'échantillon dans le cryostat prévient l'oxydation qui est vérifiée par une mesure  $M(H)$  à basse température après refroidissement sous champ.

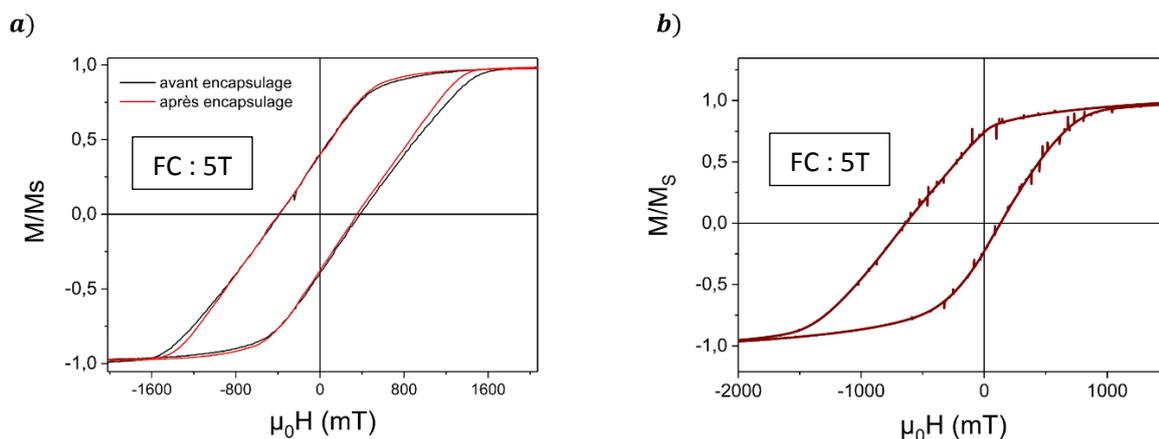


Figure 3.62 : a) cycle d'hystérésis mesuré à 2.5K, après refroidissement sous un champ de 5T, sur un échantillon synthétisé dans l'anisole avant protection par dépôt d'alumine en noir et plusieurs semaines après protection en rouge. Aucun champ dû à un couplage d'échange Co/CoO n'est détecté sur cette mesure (synthèse : substrat 1cm<sup>2</sup> Pt (111)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (0001), [Co]=15mM, [Co]/[La]/[HDA]=1/2/2, temps de réaction 24h, température 110°C). b) cycle d'hystérésis mesuré à 3K sur le même échantillon après trois années d'exposition à l'air ; un fort champ de décalage apparaît sur cette mesure dû au couplage Co/CoO.

## II. Caractérisation des réseaux obtenus par synthèse organométallique

### A. Réseaux synthétisés dans l'anisole

Pour réaliser une synthèse de nanofils sur substrat, la nucléation hétérogène du Co (*i.e.* sur le germe que constitue le substrat) doit être favorisée par rapport à la nucléation homogène (*i.e.* en solution). Les paramètres utilisés pour obtenir une nucléation homogène lors d'une synthèse de nanofils de cobalt sont rapportés dans la thèse de N. Liakakos [2]. Etant donné que l'énergie d'activation de la nucléation homogène est plus importante de celle de la nucléation hétérogène, pour éviter la nucléation homogène et permettre la nucléation hétérogène uniquement, la concentration et/ou la température doivent être inférieures par rapport aux conditions de la synthèse des nanofils libres en solution. Ceci permet en théorie de rendre défavorable du point de vue cinétique la nucléation homogène et favoriser une nucléation localisée uniquement sur le substrat de platine. Dans la pratique, ce résultat est difficile à obtenir, la présence d'impuretés constituées d'oursins de cobalt, ou bien d'amas de nanofils, a priori nucléés en solution et déposés sur la surface du réseau de nanofils, sont par ailleurs visibles sur les clichés Figure 3.63.c et d. La présence de ces impuretés est probablement liée à une différence des énergies d'activation des deux processus insuffisante pour permettre leur stricte séparation.

Les paramètres de la synthèse présentée ici sont : substrat Pt(111)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001) , [Co]=15mM, [Co]/[LA]/[HDA]=1/2/2, temps de réaction 16h, température 110°C. Une fois la réaction terminée, le substrat est retiré de la solution en boîte à gants et lavé au toluène, au THF (Tétrahydrofurane) et à l'HDA dans un bain à ultrasons de façon à éliminer les espèces moléculaires provenant de la réaction (complexe et matière organique) ainsi que les objets parasites (oursins). Ce passage aux ultra-sons n'endommage pas le réseau de nanofils, ce qui montre sa stabilité mécanique. Notons que malgré ces lavages, une quantité non négligeable d'impuretés demeure sur la surface, ce

qui laisse à supposer que ces impuretés sont liées chimiquement au réseau et viennent donc probablement perturber le comportement magnétique de l'assemblée. A la fin de la réaction, la couleur de la solution est un premier indice sur le déroulement de la synthèse. Si elle est bleue, il reste du cobalt sous forme de complexe qui n'a pas réagi. Si elle est transparente tout le cobalt a réagi et si la solution devient noire ou contient un précipité noir, cela indique la présence de nanoparticules dans la solution, et donc d'impuretés susceptibles de polluer la surface du réseau de nanofils. C'est pour éviter ce dernier cas de figure que le temps de synthèse ou la température de la solution sont soigneusement déterminés.

Les analyses *MEB* du support après lavage dévoilent que la surface de platine est entièrement recouverte par un réseau de nanofils dense et homogène (Figure 3.63.c). Les observations *MET* en section transverse (Figure 3.63.d) montrent que les nanofils croissent perpendiculairement au substrat. Une statistique sur 102 nanofils bien distinctifs révèle les caractéristiques suivantes :  $L = 350nm$  pour un temps de synthèse de  $16h$ , diamètre  $D = 12,7nm \pm 2.1nm$ . Les mesures magnétiques (Figure 3.63.a) révèlent bien des cycles cisailés quelle que soit la température et, à première vue, une susceptibilité constante (*i.e.*  $M(H)$  est linéaire) à toutes les températures mesurées ( $5K - 300K$ ). La Figure 3.63.b montre l'aimantation à la saturation pour chaque température mesurée. Or, la variation de cette grandeur peut être considérée comme négligeable ( $\sim 10^{-4}emu$ , soit 5%) et nous verrons plus en détail au cours du chapitre IV la validité de cette affirmation. Il est à noter que la quantité de cobalt déposé sur le substrat étant inconnue, il n'est pas possible de remonter à l'aimantation à saturation relative et ainsi la comparer au cobalt massif. Le champ coercitif de ces échantillons est compris entre  $250 mT$  et  $300 mT$  à  $300K$ .

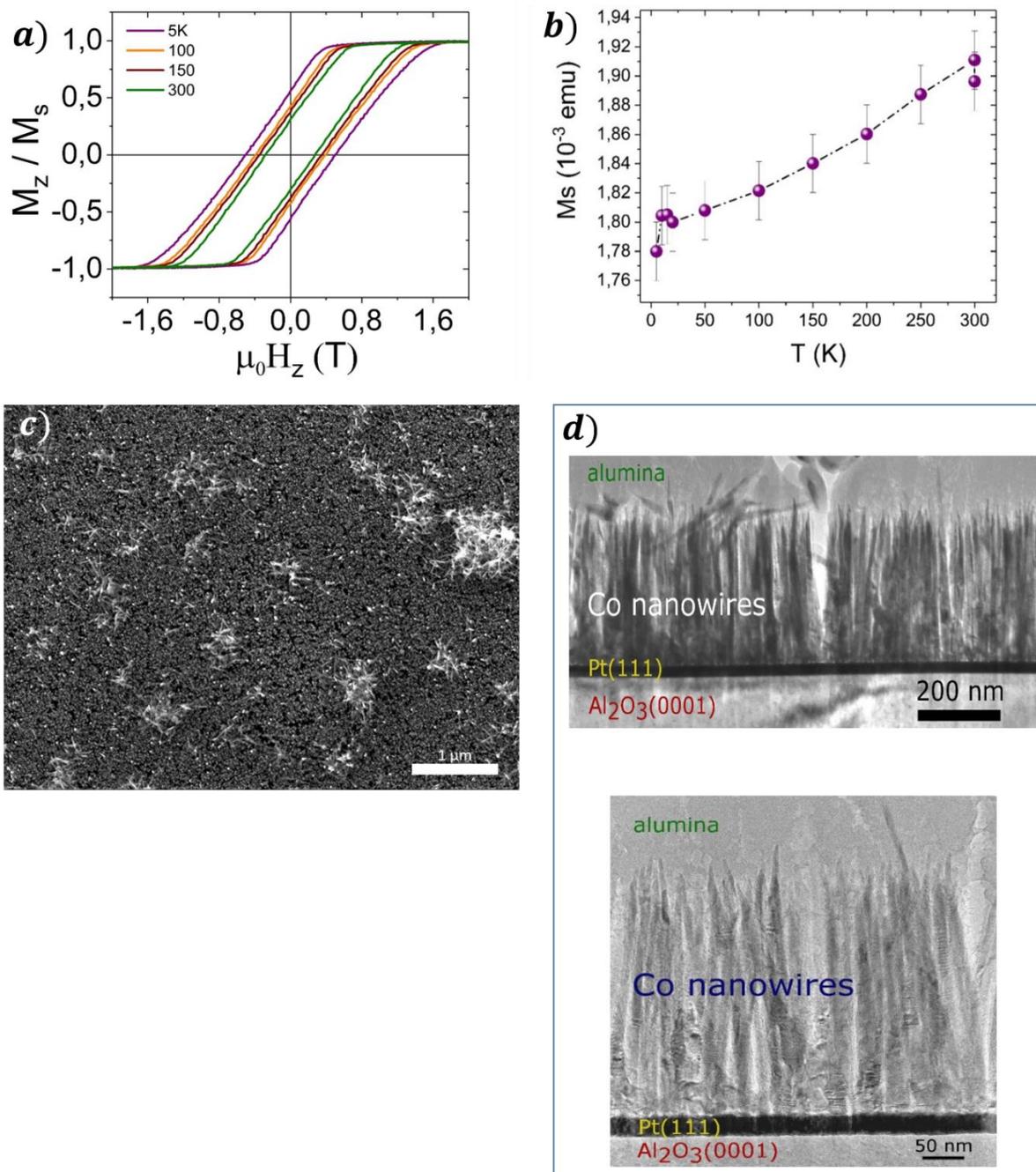


Figure 3.63 : paramètres de synthèse : substrat 1cm Pt(111)/ $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ ,  $[\text{Co}]=15\text{mM}$ ,  $[\text{Co}]/[\text{La}]/[\text{HDA}]=1/2/2$ , temps de réaction 16h, température 110°C, solvant : anisole. a) cycles d'hystérésis mesurés à différentes températures. b) aimantation à saturation mesurée en fonction de la température. c) Image MEB en vue plane. d) images MET en section transverse.

L'interface Pt(111)/Co(0001) est généralement difficilement observable par microscopie électronique. En effet, c'est à l'interface que l'on retrouve le plus de défaut de cristallinité. De ce fait, des clichés HRTEM (High Resolution Transmission Electron Microscopy), présentés Figure 3.64, ne nous ont pas permis de conclure clairement sur la structure de la base des nanofils. Ce point reste une question ouverte importante car la présence ou non d'un contact *via* la base des nanofils modifierait drastiquement les propriétés magnétiques du réseau, notamment en faisant chuter la valeur du champ coercitif. La Figure 3.64 permet tout de même de remarquer que la cristallinité n'est pas d'une grande qualité, notamment à l'interface.

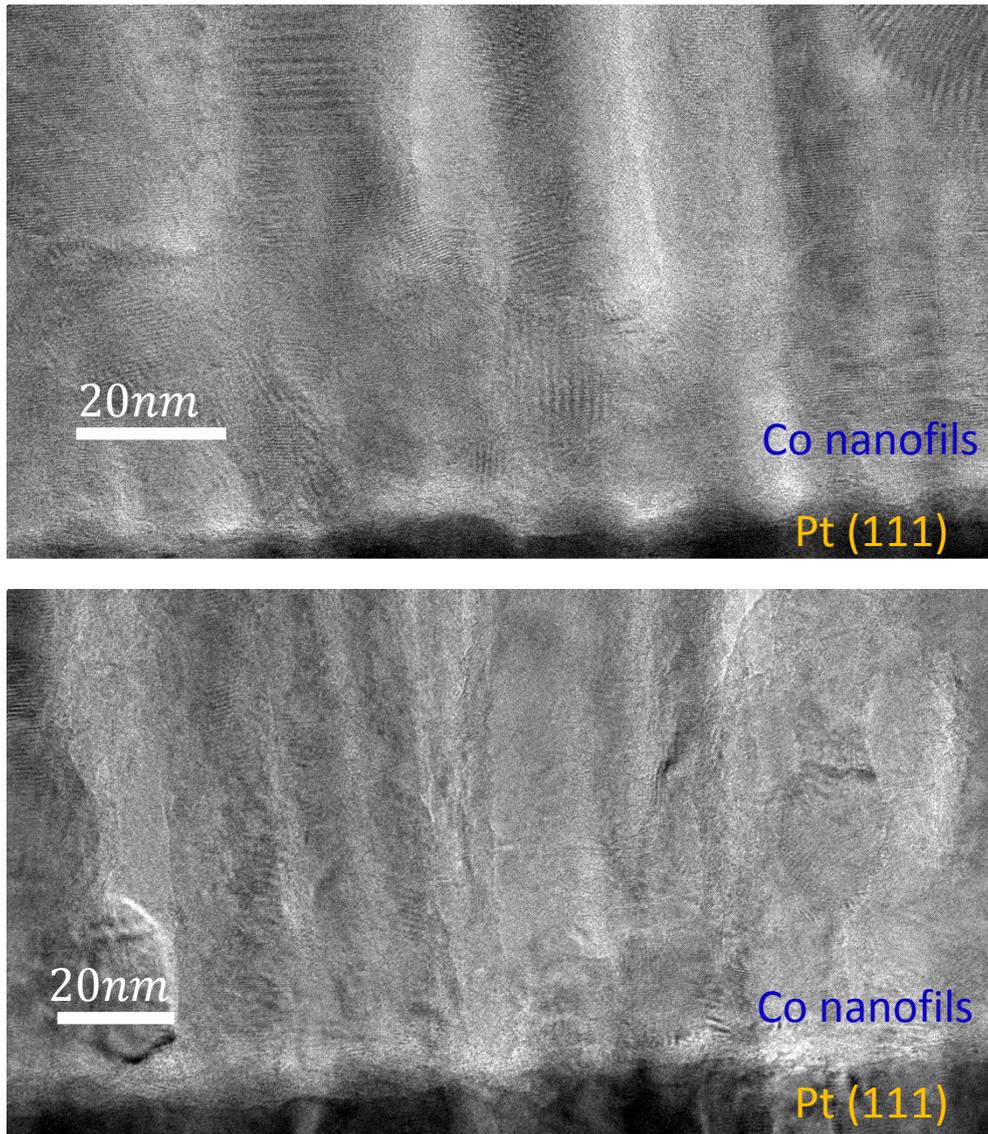


Figure 3.64 : section transverse observée en HRTEM à l'interface entre le réseau de nanofils et le film de Pt. Paramètres de synthèse : substrat  $1\text{cm}^2 \text{Pt}(111)/\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ ,  $[\text{Co}]=15\text{mM}$ ,  $[\text{Co}]/[\text{La}]/[\text{HDA}]=1/2/2$ , temps de réaction 16h, température  $110^\circ\text{C}$ , solvant : anisole.

Les mesures DRX (diffraction de rayons X) en configuration symétrique, avec un berceau 4 axes (Figure 3.65), montre que l'axe  $c$  du Co  $hcp$  est bien parallèle à l'axe des nanofils : le diffractogramme DRX symétrique (Figure 3.66.a) confirme la croissance du Co avec les plans  $\text{Co}\{0002\}$  parallèles aux plans  $\text{Al}_2\text{O}_3\{0006\}$  et  $\text{Pt}\{111\}$ . Le  $\varphi$ -scan  $\text{Co}\{10-11\}$  indique que ces plans sont orientés suivant 6 directions différentes avec une périodicité en  $\varphi$  de  $60^\circ$  (Figure 3.66) et ce comme attendu pour un monocristal de Co  $hcp$ . Ceci suggère une orientation identique des nanofils sur  $\text{Pt}\{111\}$  montrant ainsi l'épitaxie entre le Co et le Pt. Il est donc logique d'avoir la superposition entre le  $\varphi$ -scan des plans  $\text{Pt}\{002\}$  et  $\text{Co}\{10-11\}$  ce qui démontre également la croissance épitaxiale des nanofils de Co sur  $\text{Pt}(111)$ .

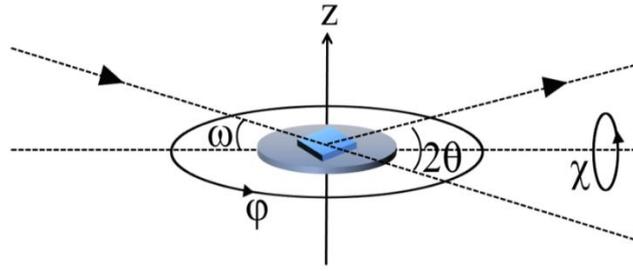


Figure 3.65 : représentation des différents axes de rotation utilisés au cours de mesures de diffraction de rayons X.

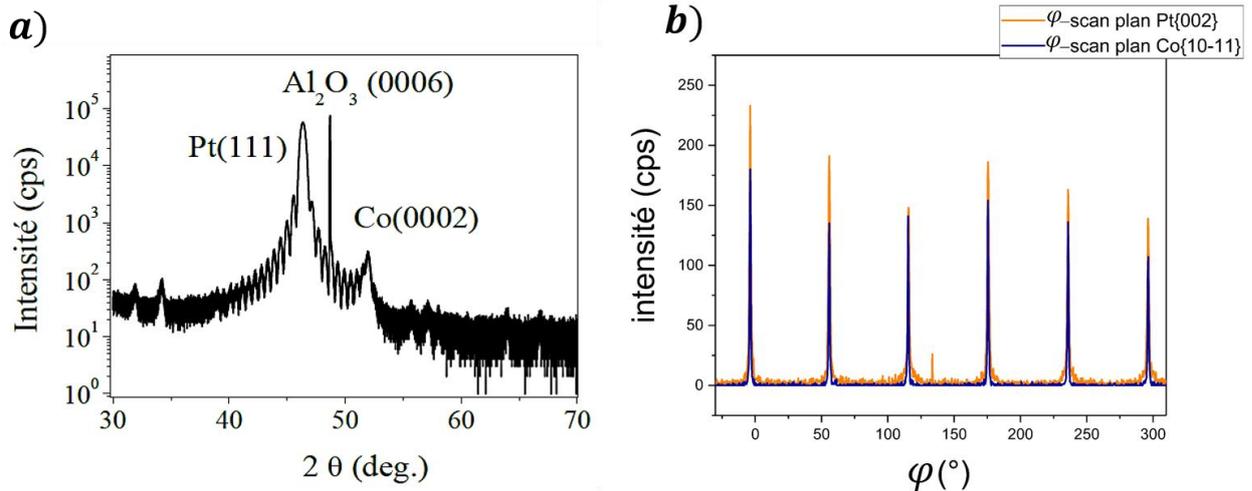


Figure 3.66 : a) diffractogramme X en configuration symétrique d'un réseau de nanofils de Co sur Pt(111), les pics non indexés correspondent au porte-échantillon. b)  $\varphi$ -scan des plans Co{10-11} (bleu) superposé au  $\varphi$ -scan des plans Pt{002} (orange) : la concordance de ces deux courbes est représentative de l'épitaxie entre le réseau de nanofils et la couche mince de Pt.

La Figure 3.67 est la figure de pôle de la réflexion Co{0002} obtenue par une mesure de texture. Cette mesure consiste à sélectionner une réflexion, ici Co{0002}, en fixant  $\omega$  et  $2\theta$ , puis à mesurer l'intensité diffractée lorsque  $\chi$  varie entre 0 et 90°, et  $\varphi$  de 0° à 360°. De cette manière, on réalise une cartographie représentant les couples  $(\chi, \varphi)$  pour lesquels la famille des plans considérée diffracte. La figure de pôle des réflexions Co{0002} montre que ces plans sont parallèles à la surface de croissance ( $\chi=0$ ) et possèdent une légère dispersion autour de la normale au substrat puisque l'intensité diffractée est centrée en  $\chi = 0$ .

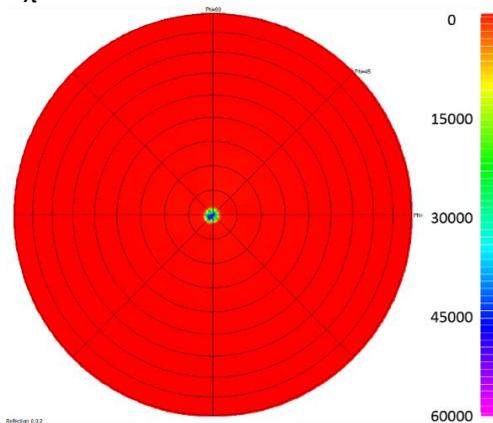


Figure 3.67 : figure de pôle des réflexions Co{0002} d'un réseau de nanofils de Co/Pt(111).

## B. Réseaux synthétisés dans le toluène

Dans le but de faire varier les caractéristiques structurales des réseaux obtenus, l'anisole a été remplacé par le toluène. Après caractérisation magnétique et structurale, les échantillons synthétisés dans le toluène ont révélé des propriétés attendues. Ainsi, cette famille d'échantillons constitue une grande part des études magnétiques et structurales de cette partie et du chapitre IV.

La température d'ébullition plus basse du toluène par rapport à celle de l'anisole nous oblige à travailler à une température maximale de 110°C, contrairement au cas de l'anisole [131], [132]. La structure obtenue est différente de celle obtenue dans l'anisole : les nanofils ont un diamètre inférieur et de nombreuses crevasses se forment dans le réseau de nanofils (Figure 3.68), probablement dues aux interactions attractives de surface entre nanofils. Les mesures *MFM* n'ont révélé aucun contraste et ne permettent pas de conclure sur la configuration magnétique adoptée par l'assemblée. Lors d'analyses structurales, aucun oursin ou autres impuretés n'ont été détectés, la nucléation homogène semble inhibée. Les paramètres de synthèse donnant les structures les plus reproductibles (que ce soit sur 3.4mm<sup>2</sup> ou 1cm<sup>2</sup> de surface) sont les suivants : *substrat Pt(111)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001), [Co]=15mM, [Co]/[LA]/[HDA]=1/2/2, température 110°C.*

Ces paramètres amènent aux résultats structuraux suivants, issu d'une statistique d'environ 60 nanofils : diamètre moyen  $D = 6.3 \pm 0.9 \text{ nm}$ , remarquons ici que la dispersion est moindre que pour le cas précédent des synthèses effectuées dans l'anisole,  $L = 350 \text{ nm}$  pour une synthèse de 16h (identique aux synthèses dans l'anisole). La susceptibilité  $\chi \Big|_{H_c}^{-1}$  varie en fonction de la température de mesure sur une large plage si bien qu'il est difficile de déterminer le taux de compacité  $P$  et ainsi, de retrouver la distance interfil  $d$  (Figure 3.68.a). L'aimantation à saturation absolue varie de façon négligeable avec la température (Figure 3.68.b). La variation de la susceptibilité sera analysée plus en détail dans le chapitre IV.

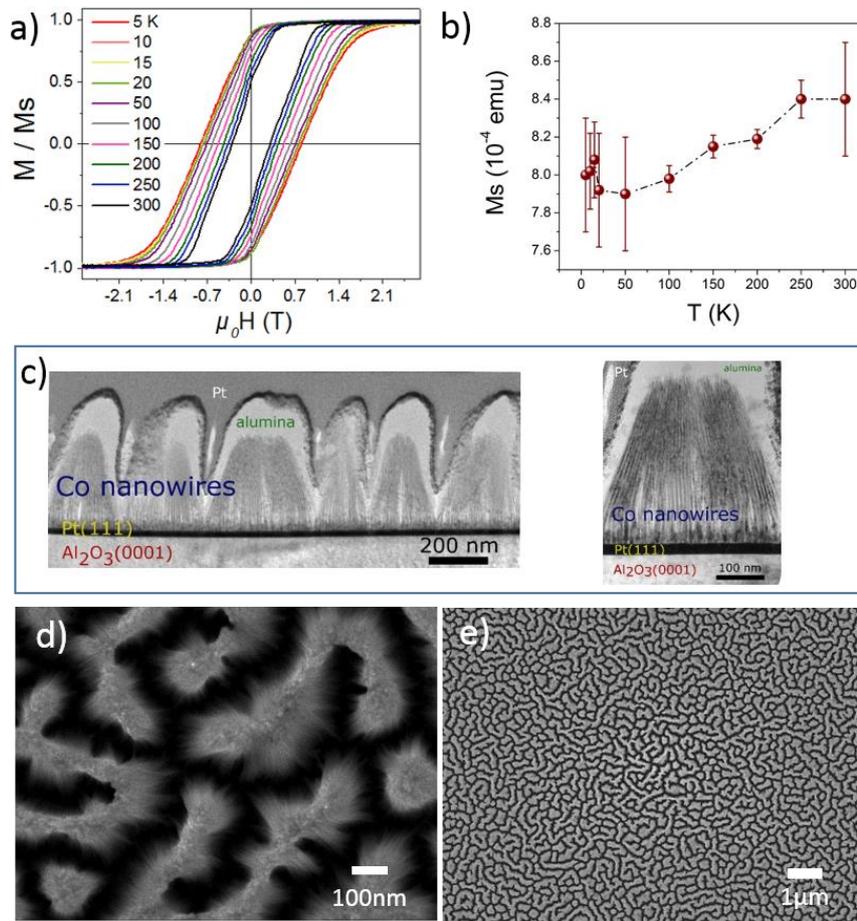


Figure 3.68: échantillon réalisé avec les paramètres suivants: substrat  $1cm^2$  Pt(111)/ $Al_2O_3(0001)$ ,  $[Co]=15mMol$ ,  $[Co]/[La]/[HDA]=1/2/2$ , temps de réaction 16h, température  $110^\circ C$ . a) cycle d'hystérésis mesuré hors plan du réseau, à différentes températures. b) courbe  $M_s(T)$  montrant que la variation de l'aimantation à saturation peut être approximée comme indépendante de la température, c) clichés MET en section transverse. d) et e) clichés MEB du réseau de nanofils en vue plane.

De la même façon que pour le système anisole, l'interface réseau/film de Pt est difficilement discutable ce qui constitue une forte lacune dans l'étude de ces réseaux car, comme évoqué précédemment, l'existence d'un film provoquant le contact chimique entre nanofils est probable induisant une interaction magnétisante au sein du réseau. Cette information est donc importante pour l'interprétation des mesures magnétiques mais reste incertaine du point de vue des analyses structurales.

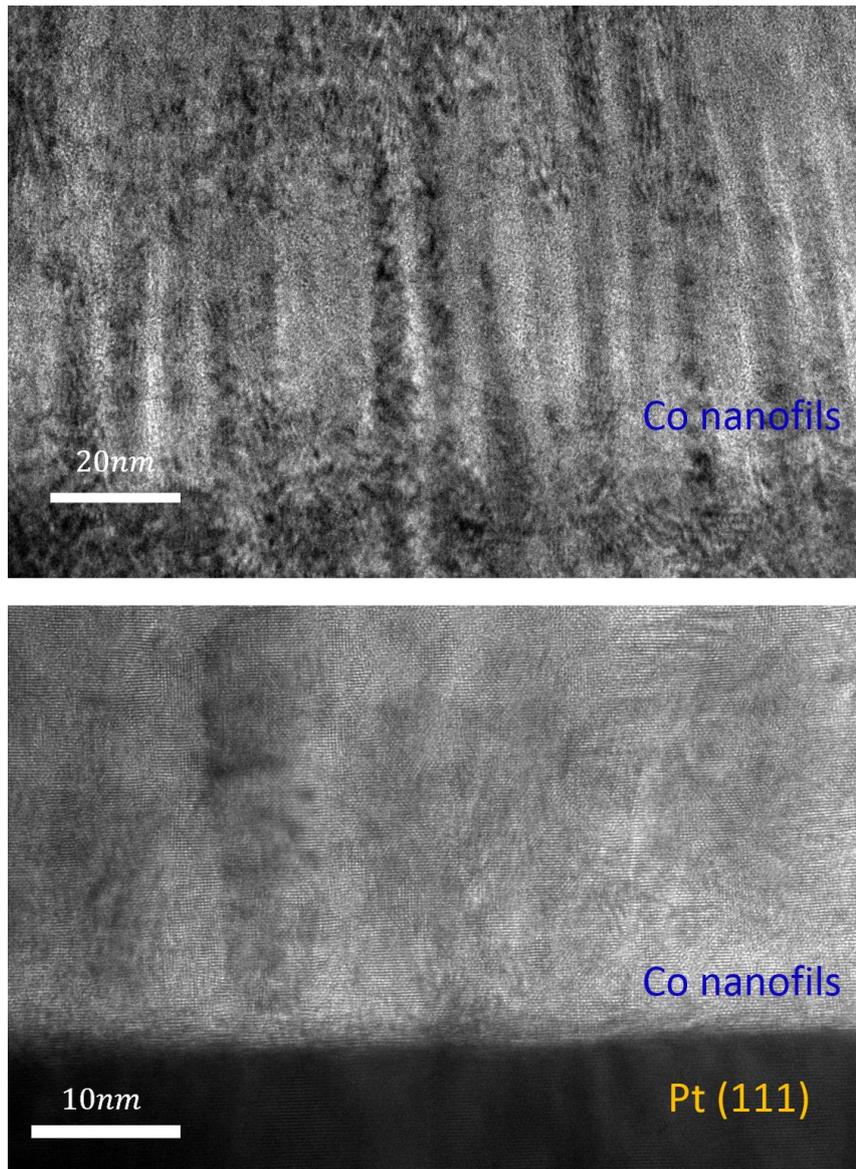


Figure 3.69 : section transverse observée en HRTEM d'une interface entre le réseau de nanofils et le film de Pt. Paramètres de synthèse : substrat  $1\text{cm}^2$  Pt(111)/ $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ ,  $[\text{Co}]=15\text{mMol}$ ,  $[\text{Co}]/[\text{La}]/[\text{HDA}]=1/2/2$ , temps de réaction 16h, température  $110^\circ\text{C}$ , solvant : toluène.

Des investigations supplémentaires sur les caractéristiques structurales ont été menées sur les échantillons issus de cette synthèse à l'aide de mesures SAXS. Le principe de ces mesures est d'accéder à la transformée de Fourier spatiale des réseaux et ainsi de déterminer l'arrangement et la périodicité du réseau. Afin de mesurer convenablement le faisceau X transmis, les substrats utilisés pour cette étude ont une épaisseur de  $0,5\text{ mm}$ . Il est bien connu que la transformée de Fourier d'un réseau hexagonal est un réseau hexagonal dont les caractéristiques sont données par la Figure 3.70, avec  $d'$  la distance interfil centre à centre (*i.e.* le pas du réseau),  $d_{1,2}$  les distances interplans respectives de cylindres. Les relations reliant  $d'$  et  $d_{1,2}$  sont :  $d' = \frac{2d_1}{\sqrt{3}}$  ;  $d' = 2d_2$ .

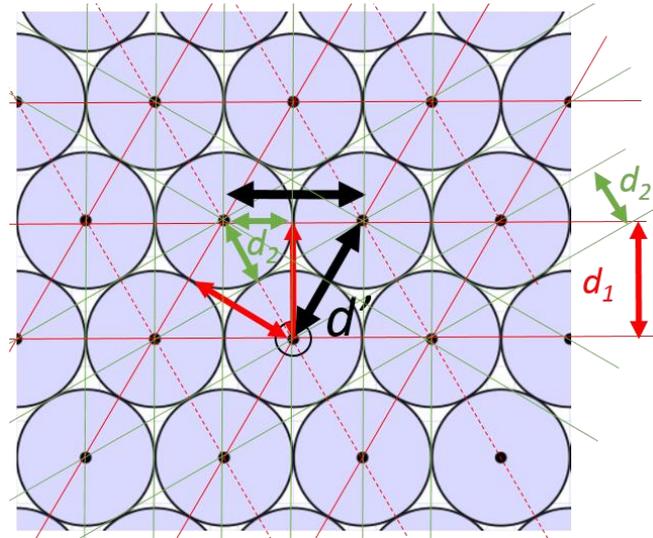


Figure 3.70 : réseau direct de cylindres: les lignes rouges et vertes représentent respectivement les plans de fils de périodicité  $d_1$  et  $d_2$ .

Un exemple de figure SAXS mesurée est présenté Figure 3.71. Les 1<sup>er</sup> et 2<sup>ème</sup> ordres de la diffraction par les plans  $d_1$  sont mis en évidence Figure 3.71.a), tandis que le 1<sup>er</sup> ordre de la diffraction par les plans  $d_2$  est illustrée Figure 3.71.b). Cet exemple montre une cohérence du réseau de nanofils sur de grandes distances. Cela indique que le réseau est majoritairement et spontanément organisé en un réseau hexagonal d'unique orientation. Les distances au centre des différentes réflexions sont évaluées en effectuant des profils le long des flèches pointillées noires donnant ainsi accès aux distances dans l'espace réciproque puis dans l'espace direct :  $k_1^{1er} = \frac{2\pi}{d_1}$  et  $k_1^{2nd} = 2\frac{2\pi}{d_1}$  (Figure 3.71.a), et :  $k_2^{1er} = \frac{2\pi}{d_2}$  (Figure 3.71.b).

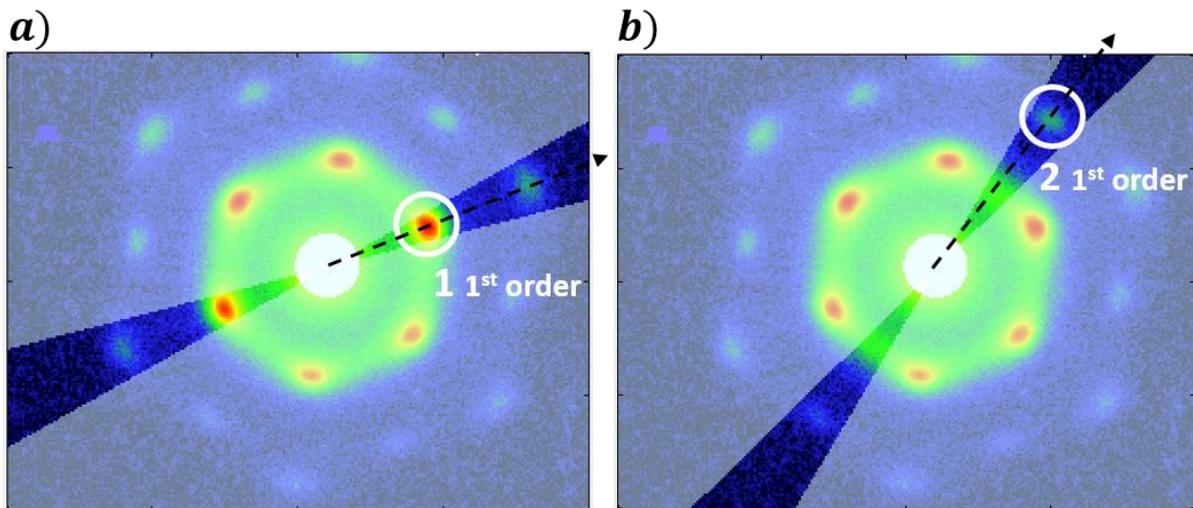


Figure 3.71 : figure SAXS mesurée sur un échantillon synthétisé dans le toluène : substrat 3,4 mm × 3,4 mm × 0,5 mm Pt (111) 20nm/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001), [Co]=15mMol, [Co]/[La]/[HDA]=1/2/2, temps de réaction 72h, température 110°C. a) mise en évidence des pics de 1<sup>er</sup> ordre b) mise en évidence des pics de 2<sup>ème</sup> ordre.

Ainsi le pas du réseau mesuré pour différents temps de réaction et sur différents échantillons est  $d' = 8,80 \pm 0,30 \text{ nm}$ .

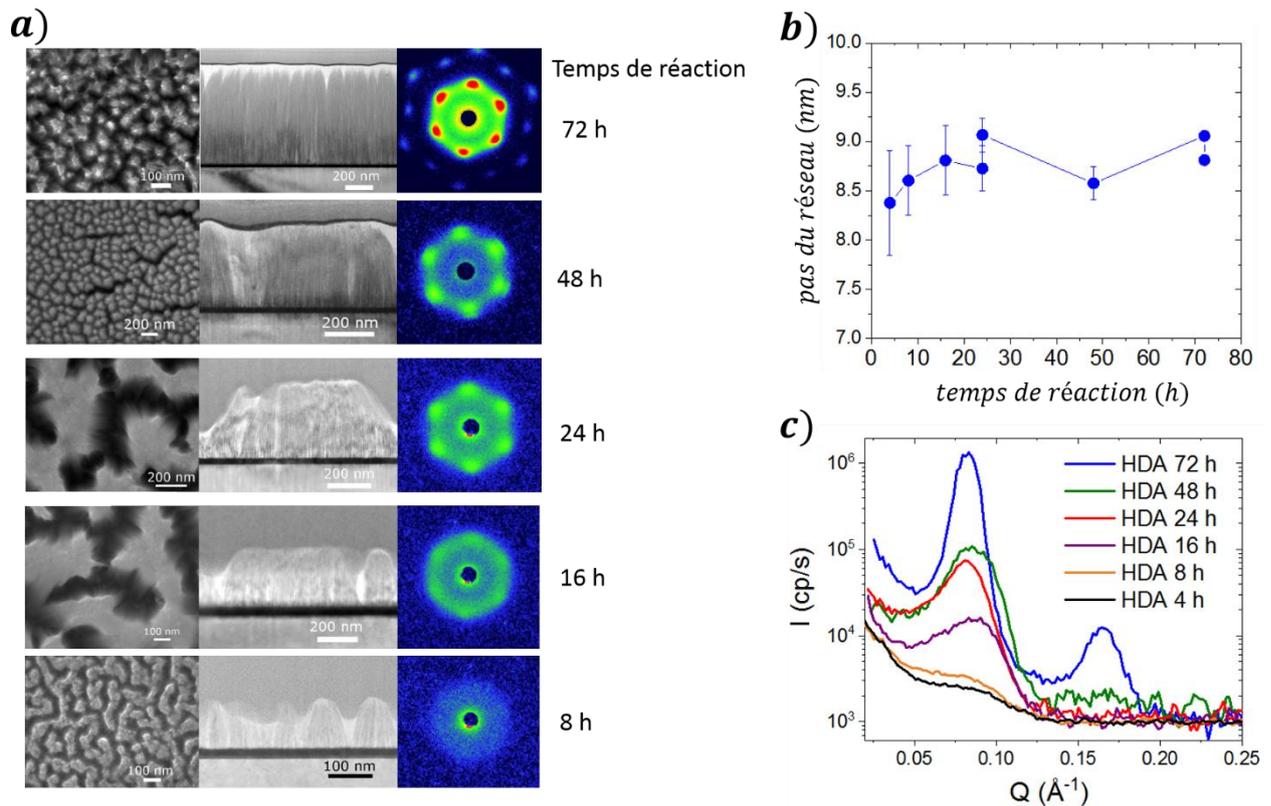


Figure 3.72 : mesures SAXS effectuées sur des échantillons issus de synthèses effectuées dans le toluène : substrat Pt (111) 20nm/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001), [Co]=15mMol, [Co]/[LA]/[HDA]=1/2/2, temps de réaction 8h - 72h, température 110°C solvant : toluène. a) vue planaire MEB, section transverse observée en MET de l'échantillon correspondant à la mesure SAXS visible à droite dont le temps de réaction est précisé en heures. b) pas du réseau  $d'$  en fonction du temps de réaction. c) profils le long de  $k_1$  sur les figures SAXS (flèches noires Figure 3.71.a) donnant accès au pas du réseau  $d'$ .

La Figure 3.73 présente l'analyse SAXS de réseaux obtenus après différents temps de synthèses (4-72h), ainsi que les profils effectués sur les figures SAXS correspondantes et le pas du réseau  $d'$  en fonction du temps de synthèse. Cette figure montre que le pas du réseau est stable en fonction du temps de réaction et ce dès les temps de réaction faible comme 4 et 8h. La distance interfil centre-à-centre déduite des mesures SAXS,  $d' = 8,80 \pm 0,30 \text{ nm}$ , et le diamètre moyen déterminé par microscopie MET,  $D = 6.3 \pm 0.9 \text{ nm}$  permettent d'estimer la compacité du réseau  $P = 0.46 \pm 0.10$ .

Les études SAXS impliquent de laisser les échantillons à l'air durant l'acquisition et donc sujets à l'oxydation, par conséquent, elles sont effectuées à l'issue de la caractérisation magnétique. Précédemment ce type de mesure était réalisée par SANS (Small Angle Neutron Scattering) nécessitant d'envoyer les échantillons dans un centre de service en mesure neutronique (ref Nanoletter Liakakos). Ces études montrent que le pas du réseau peut être mesuré de manière systématique, ce qui constitue une grande avancée en termes de caractérisation structurale.

## 1. Influence du temps de la réaction

Les paramètres de synthèse cités ci-dessus sont un bon compromis pour étudier l'influence du temps de réaction de par la reproductibilité des échantillons. En toute logique, les nanofils devraient

croître tant que la solution reste colorée puisque cette coloration bleutée est la signature de la présence de précurseur  $Co$  dans la solution. Ainsi le résultat anticipé de cette étude est une augmentation de la longueur des nanofils avec le temps de réaction. Pour une synthèse dans le toluène, à  $110^{\circ}C$ , après  $72h$  la solution devient incolore, le réservoir de  $Co$  présent en solution est donc épuisé. L'étude cinétique a donc été réalisée pour des temps compris entre  $4h$  et  $72h$ .

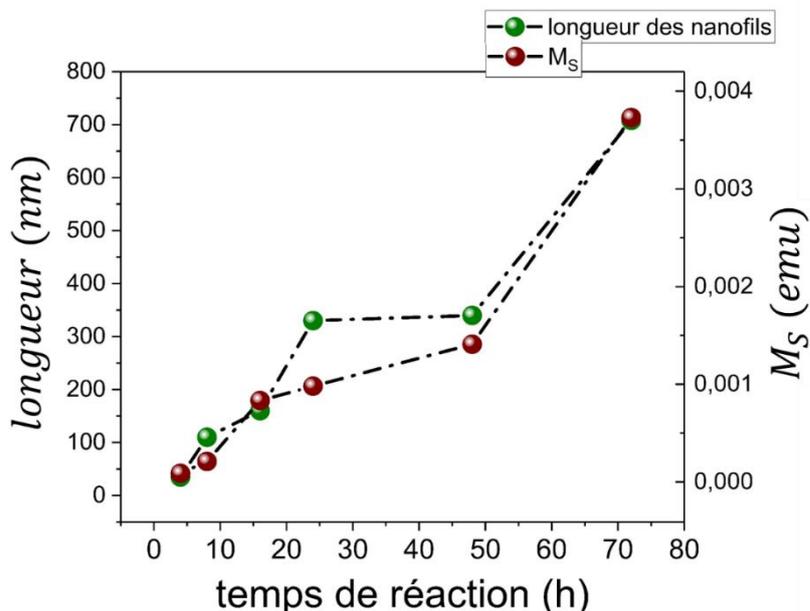


Figure 3.74 : (vert) longueur des nanofils mesurée sur les clichés MET présentés Figure 3.72, et (rouge) aimantation à saturation mesurée pour ces mêmes échantillons synthétisés dans le toluène pour différents temps de réaction. Paramètres identiques à ceux de la Figure 3.72.

Chaque point de la courbe  $M_s(T)$  de la Figure 3.74 représente la moyenne de l'aimantation à la saturation (sous 5T) de chacun des échantillons qui ont été synthétisés avec des paramètres identiques ( $[Co]=15mM$  avec un ratio  $[HDA]/[LA]/[Co] = 1/2/2$ ,  $110^{\circ}C$ , substrats  $3,4 mm \times 3,4 mm$ ). Elle montre une évolution croissante de l'aimantation à la saturation avec le temps de la réaction traduisant l'augmentation de longueur des nanofils avec le temps de réaction. Ceci est clairement corroboré par les mesures de longueurs de nanofils effectuées sur les clichés MET (Figure 3.72.a). Par ailleurs, les mesures SAXS (Figure 3.72.b) montrent qu'aucune évolution du pas du réseau n'est observée avec l'augmentation du temps de réaction [138].

## 2. Changement de ligands

Le changement des réactifs est un point particulièrement délicat en termes de chimie car la nature et la concentration de ligands ne jouent pas seulement sur l'épaisseur des surfactants mais peuvent également moduler la forme des objets obtenus. La mise en œuvre du changement des ligands a été effectuée en substituant l'hexadécylamine (HDA) par le benzylamine (BA) d'une part, et en substituant l'acide laurique (LA) par de l'acide phénylacétique (PAA) d'autre part.

Afin de tester indépendamment les influences de BA et PAA, nous avons réalisé deux types de synthèses où seul un ligand est substitué à la fois :  $Co/LA/BA (1/2/2)$ ,  $[Co]=15mM$ ,  $110^{\circ}C$ , toluène, puis  $Co/PAA/HDA (1/2/2)$ ,  $[Co]=15mM$ ,  $110^{\circ}C$ , toluène. Les images MEB des substrats après synthèses dans

ces conditions font apparaître des réseaux de nanofils, et les mesures SAXS témoignent également de l'arrangement hexagonal (Figure 3.75). Les distances interfils extraites et comparées au couple LA+HDA sont représentées Figure 3.76. La modulation de la distance n'est pas évidente à l'issue de ces résultats même si les couples LA+BA et PAA+HDA augmentent quelque peu la distance interfils. Il est à noter que seule la distance interfil centre-à-centre est obtenue par SAXS. Afin de discuter la compacité d'un réseau, il est nécessaire d'accéder au diamètre des fils. Les investigations MET sur ces réseaux obtenus avec les couples LA+BA et PAA+HDA sont en cours afin de mesurer les diamètres. Les mesures magnétiques préliminaires effectuées sur ces systèmes (Figure 3.77) montrent une susceptibilité différentielle différente suivant le couple de ligands utilisé ce qui pourrait témoigner de compacités différentes, tandis que les coercivités sont comparables.

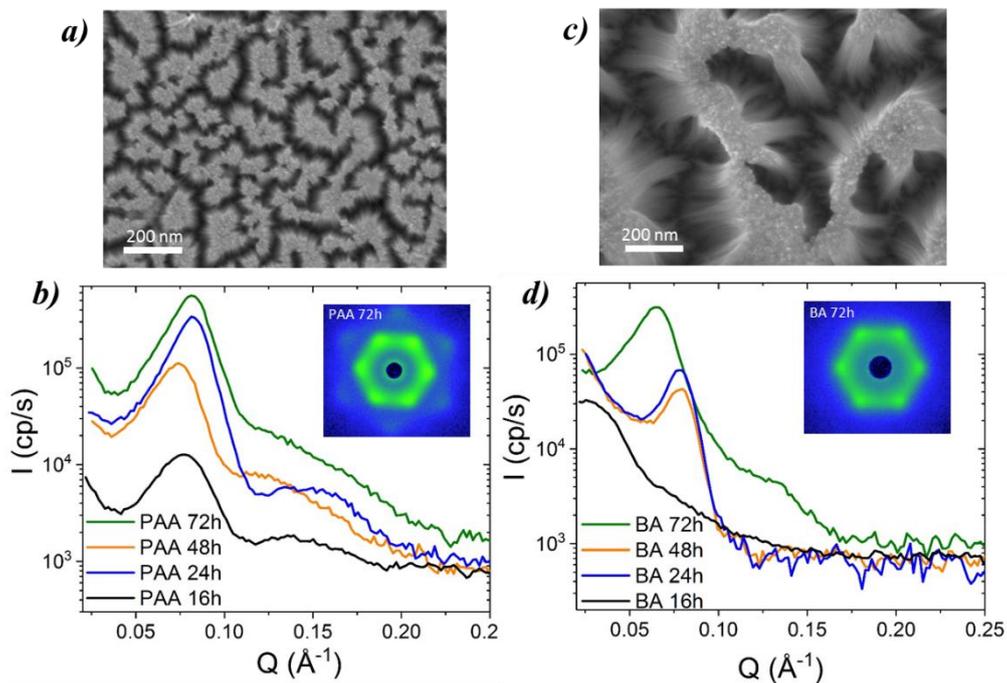


Figure 3.75 : (a)-(c) images MEB et (b)-(d) profils selon  $k_1$  effectués sur les clichés SAXS de réseaux obtenus après différents temps de réaction : (a)-(b) synthèse Co/PAA/HDA (1/2/2),  $[\text{Co}]=15\text{mM}$ ,  $110^\circ\text{C}$ , toluène, (c)-(d) Co/LA/BA (1/2/2),  $[\text{Co}]=15\text{mM}$ ,  $110^\circ\text{C}$ , toluène.

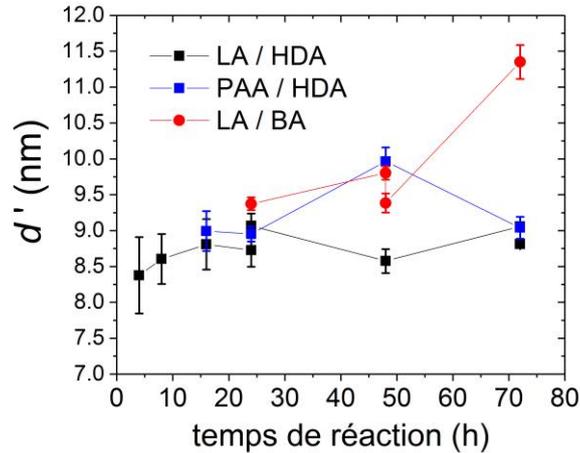


Figure 3.76 : comparaison des différents pas de réseaux obtenus par mesures SAXS : Co/LA/HDA (noir), Co/PAA/HDA (bleu), Co/LAA/BA (rouge) (1/2/2), [Co]=15mM, 110°C, toluène.

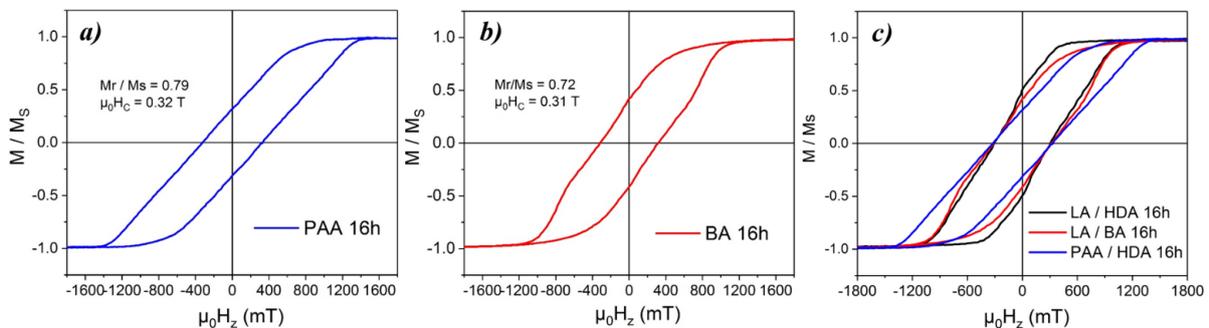


Figure 3.77 : Cycles d'hystérésis à 300K de réseaux synthétisés dans (a) Co/PAA/HDA (1/2/2), [Co]=15mM, 110°C, toluène, 16h, (b) Co/LA/BA (1/2/2), [Co]=15mM, 110°C, toluène, 16h, et (c) comparés à Co/LA/HDA (1/2/2), [Co]=15mM, 110°C, toluène, 16h.

Cette partie constitue une étude préliminaire qui doit se poursuivre en mettant en place des études systématiques permettant de déterminer le diamètre des nanofils (*MET*, *SAXS*), les propriétés d'interface entre le réseau et le substrat mais également les propriétés magnétiques. La prospection des propriétés magnétiques passe par la mesure des cycles d'hystérésis à basse température ainsi que les mesures *FORC* à 5K et à 300K.

### III. Conclusion

Ce travail sur l'élaboration a permis d'obtenir deux systèmes modèles qui vont faire l'objet d'études magnétiques plus approfondies : *substrat Pt(111)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)*, [Co]=15mM, [Co]/[LA]/[HDA]=1/2/2, température 110°C réalisées soit dans l'anisole, soit dans le toluène. Les nanofils synthétisés dans l'anisole sont larges ( $D = 12,7 \pm 2,1nm$ ) et la distribution des diamètres est fortement dispersée. Des d'impuretés sont présentes sur la surface malgré les lavages successifs, signe d'une nucléation en solution, et ce même pour des températures de 110°C et des temps réduits à 16h de synthèse. Ces échantillons apparaissent sur les clichés *MET* d'une qualité cristalline moindre en comparaison avec le système toluène particulièrement à l'interface substrat/réseau.

La synthèse réalisée dans le toluène donne des nanofils plus fins ( $D = 6,3 \pm 0,9 \text{ nm}$ ) et peu dispersés en comparaison avec le système anisole. Aucune impureté n'est détectée sur la surface, la nucléation en solution semble inexistante à 110°C. Comme attendu, le temps de synthèse influe sur la longueur des nanofils et le moment total, l'évolution de ces deux grandeurs en fonction du temps de synthèse est en bon accord. Les mesure SAXS révèlent des réseaux hexagonaux avec un pas  $d' = 8,80 \text{ nm}$ . Ces deux familles présentent des caractéristiques satisfaisantes pour l'étude des propriétés magnétiques, point sur lequel porte le chapitre suivant.

Cette synthèse est une chaîne de processus où les ligands et le solvant ont des rôles multiples rendant cette chaîne complexe et difficile à appréhender. Le changement de solvant ou de ligands constitue donc un défi conséquent. Cependant, nous avons tout de même constaté que le passage de l'anisole au toluène induit un changement de structure important. En continuant sur cette idée, les ligands ont également été remplacés en ne changeant qu'un paramètre à chaque synthèse. La mise en œuvre des synthèses BA/LA/Co et HDA/PAA/Co n'a pas montré de variation du pas du réseau conséquente d'après les mesures SAXS. Les observations MET n'ont pas encore été réalisées, toutefois les clichés MEB présentent bien des nanofils perpendiculaires au substrat, les cycles  $M(H)$  sont cisailés et les champs coercitifs obtenus d'une synthèse à l'autre sont comparables.



# Propriétés magnétiques des réseaux ultra-denses de nanofils de cobalt

Ce chapitre présente les résultats de magnétométrie obtenus sur les échantillons issus des synthèses présentées au chapitre III. Dans le chapitre I, le modèle présenté montre que la susceptibilité différentielle de l'assemblée de nanofils magnétiques, est, dans le cas idéal, liée aux caractéristiques structurales du réseau de la façon suivante :

$$\left. \frac{dM}{dH} \right|_{H_c} = \chi \Big|_{H_c} = \frac{1}{P} = \frac{1}{N_{int,zz}} \quad (4.92)$$

Avec  $P$  le taux de compacité,  $N_{int,zz}$  la composante hors plan du tenseur de désaimantation dû aux interactions magnétostatiques,  $\chi$  la susceptibilité différentielle du cycle majeur  $M(H)$  de l'assemblée de nanofils,  $H$  le champ externe et  $M$  l'aimantation de l'assemblée.

La majorité des études sur les assemblées de nanofils répertoriées dans la littérature sont effectuées sur des réseaux d'un taux de compacité jusqu'à un ordre de grandeur en dessous de ceux présentés dans cette partie. De plus les nanofils sont rarement monocristallins, ce qui réduit l'impact de l'anisotropie magnétocristalline sur la coercivité, contrairement au cas présent. Afin de caractériser ces réseaux, nous utiliserons les méthodes et modèles exposés lors des chapitres I et II. Ces modèles de champ moyen ont l'avantage d'être simples (*cf.* chapitre I). Cependant leur description et la vision qu'ils apportent ne sont pas exhaustives, rendant incomplète l'interprétation de mesures expérimentales. En effet, une vision de champ moyen n'est pas apte à décrire les effets locaux du champ d'interaction à l'origine de la formation de microstructures de l'aimantation. Ces microstructures sont une distribution spatiale de l'aimantation permettant de minimiser l'énergie dipolaire due au champ d'interaction. Elles peuvent être de géométrie très variées selon la nature et l'amplitude des interactions mises en jeu. L'analyse de cycles majeurs est donc fortement limitée en termes d'interprétation de comportement collectif d'une population de nanofils magnétiques, et des mesures plus fines du comportement magnétique sont nécessaires à une bonne caractérisation.

Le présent chapitre décrit en détail les investigations magnétiques effectuées sur les systèmes modèles présentés lors du chapitre précédent. Nous allons voir qu'une nette différence de comportement magnétique est notée entre les échantillons synthétisés dans l'anisole et dans le toluène. Le système anisole montre le comportement d'une assemblée de nanofils en interaction *via* un champ moyen. Le système toluène n'a pas tout à fait le comportement magnétique attendu. En effet, les analyses de cycles majeurs présentent des désaccords avec les mesures FORC et les caractéristiques structurales, notamment *via* les mesures à différentes températures.

Lors de ce chapitre seront présentés les mesures  $M(H)$  de cycle majeur et FORC. Les résultats seront comparées aux valeurs de taux de compacité mesurés *via* des observations *MET* et des mesures *SAXS*. Les mesures FORC, réalisées à différentes températures, seront confrontées à des simulations micromagnétiques de courbes FORC d'un réseau de nanofils. Des simulations de fil isolé seront

présentées afin de replacer le contexte théorique. Un parallèle entre les signatures du diagramme issu des simulations avec le diagramme issu des mesures permettra la validation des hypothèses formulées.

## I. Réseaux synthétisés dans l'anisole

### A. Rappels du système

Rappelons les paramètres de synthèse :

- substrat de  $Pt(111)$  20 nm/ $Al_2O_3(0001)$  de  $1\text{ cm}^2$ ,
- $[Co]=15\text{ mM}$ ,  $[Co]/[LA]/[HDA]=1/2/2$ ,
- temps de réaction 16h,
- température de réaction  $110^\circ\text{C}$ ,
- solvant : anisole,
- diamètre mesuré par observations MET :  $D = 12,2\text{ nm} \pm 2,1\text{ nm}$ ,
- longueur :  $L = 350\text{ nm}$ ,
- distance interfil obtenue:  $d = 2,5\text{ nm} \pm 0,5\text{ nm}$ ,
- $\langle H_c(300K) \rangle \approx 280\text{ mT}$ ,
- densité surfacique ou taux de compacité :  $P = 0,62 \pm 0,08$ ,
- nanofils monocristallins de structure  $Co\text{ hcp}$ , axe  $c$  parallèle à l'axe des nanofils.

#### 1. Cycles $M(H)$

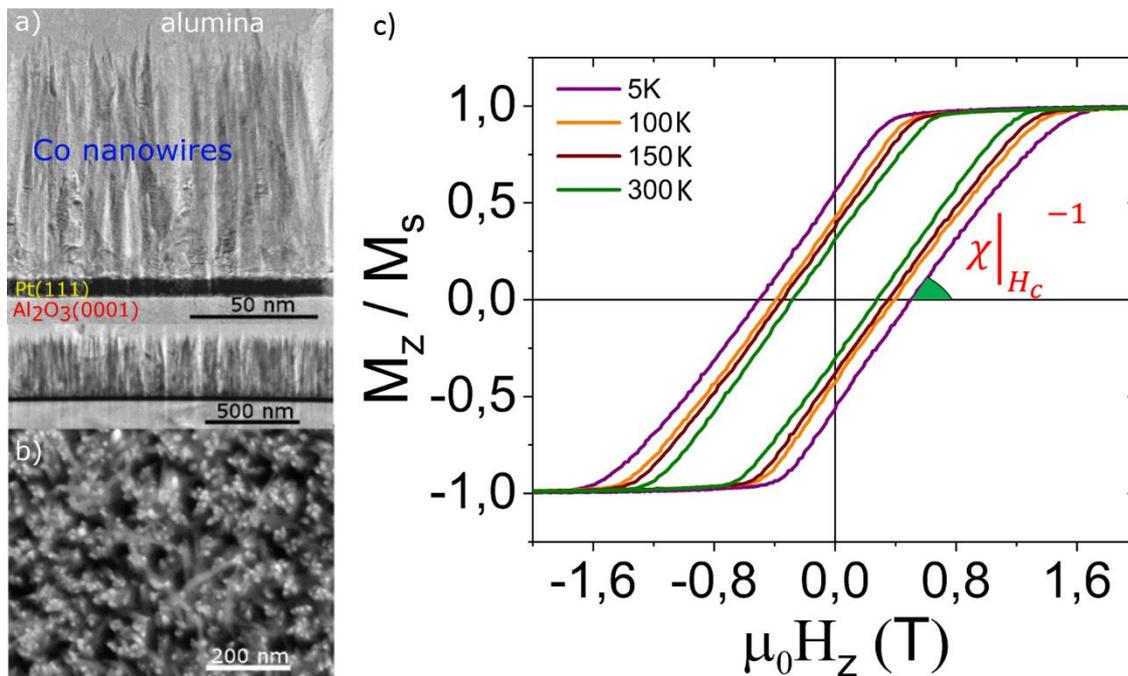


Figure 4.78 : a) Coupe transverse d'un réseau de nanofils de cobalt monocristallins observé en MET. b) Vue plane d'un réseau de nanofils de cobalt monocristallins observé en MEB. c) Cycle d'hystérésis majeur mesuré par VSM (vibrating sample magnetometer) sur le réseau présenté en a) et b), pour un champ magnétique appliqué parallèle à l'axe des nanofils (i.e. perpendiculaire au réseau).

Les cycles majeurs, présentés Figure 4.78, ont été mesurés entre 5K et 300K. Il est à noter que les cycles basse température ont été obtenus après refroidissement sous champ de  $+5T$  et ne font

apparaître aucun décalage d'échange significatif associé à un couplage d'échange ferromagnétique/antiferromagnétique de type couplage  $Co/CoO$ . Les nanofils sont ainsi peu ou pas oxydés. Les mesures VSM (*Vibrating Sample Magnetometer*) sont présentées après correction de la composante paramagnétique ou diamagnétique, souvent présente dans la mesure brute. Cette composante étant linéaire, la pente à fort champ (au-delà de la saturation) est soustraite à l'ensemble de la mesure.

Comme attendu, ces cycles apparaissent cisailés par les effets des interactions. En effet, nous avons vu au chapitre 1 que  $N_{int,zz} = P$  (Eq. (1.66)) dans le régime monopolaire ( $d \ll \frac{L}{2}$ , avec  $d$  la distance interfil et  $L$  la longueur d'un nanofil).

Les nanofils sont des objets d'aimantation bistable, où  $M$  est orienté soit selon  $+z$  soit selon  $-z$ . Le cobalt massif de structure cristalline hexagonale compacte ne voit pas son aimantation à saturation varier en température [139]. Les valeurs absolues de  $M_S$  relevées aux différentes températures mesurées (Figure 4.79) indiquent que l'aimantation à saturation des réseaux de nanofils ne varie que de 5% en fonction de la température. Cette très faible variation de  $M_S$  amène donc à supposer un champ d'interaction maximum, obtenus aux saturations positives et négatives, approximativement constant en température.

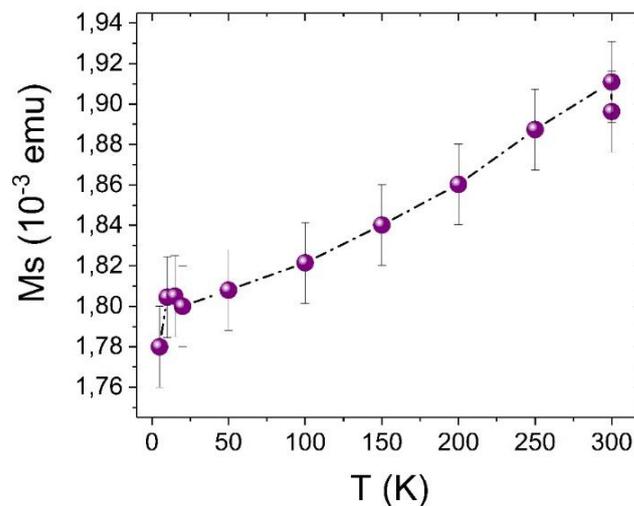


Figure 4.79 : variation de l'aimantation à saturation absolue en fonction de la température relevée sur les cycles d'hystérésis majeurs mesurés par VSM. La variation de  $M_S$  est faible.

La Figure 4.80 reporte la susceptibilité différentielle mesurée à  $H_c$  pour différentes températures. Relever la susceptibilité autour de l'état désaimanté permet de minimiser l'influence de la distribution en champ d'anisotropie (iSFD, intrinsic Switching Field Distribution chapitre I, partie.II.C, p.59) de l'assemblée et ainsi d'approcher au mieux l'expression 4.92.

La Figure 4.80 révèle plusieurs éléments :

- $\chi|_{H_c}^{-1}$  est indépendant de la température. D'après l'approche en champ moyen dans le régime monopolaire, développée au chapitre 1,  $\chi|_{H_c}^{-1} = N_{int,zz} = P$ . Or, puisque le facteur

$P$  de compacité du réseau est indépendant de la température, il est logique d'obtenir  $\chi|_{H_c}^{-1}$  constant en température.

- Cette figure illustre un désaccord avec les mesures FORC qui seront abordées par la suite. Cependant le champ d'interaction à la saturation extrait des diagrammes FORC,  $H_{int,zz,FORC}^{sat}$ , est approximativement constant en température, en bon accord avec les données issues de mesures de cycles majeurs.

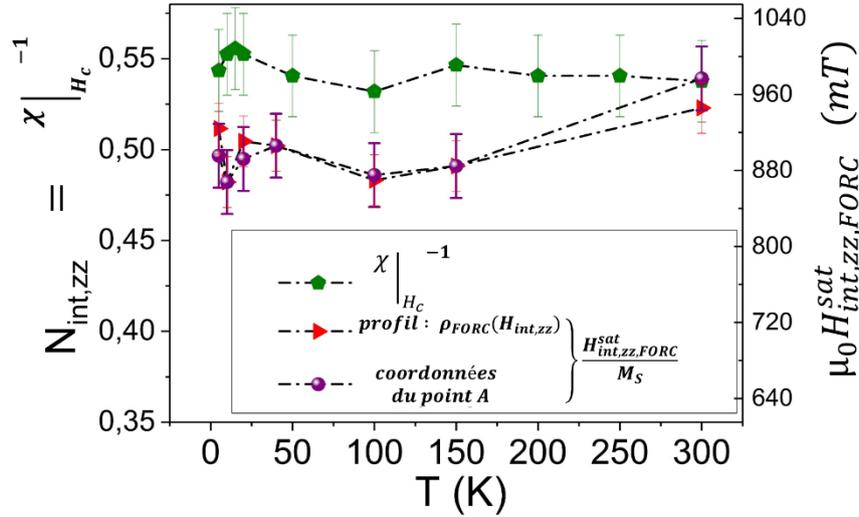


Figure 4.80 : susceptibilité magnétique différentielle  $\chi|_{H_c}^{-1}$  relevée sur les cycles d'hystérésis majeurs (points verts) et  $H_{int,zz,FORC}^{sat}$  et  $N_{int,zz}$  associés (via  $H_{int,zz,FORC}^{sat} = -N_{int,zz} \cdot M_s$ ) extraits du diagramme FORC (Figure 4.84) par les coordonnées du point A (points violets) :  $A(H_{c,min}; H_{int,FORC}^{sat})$ , (Cf chapitre II, Figure 2.41, Eq. 2.91), et par un profil  $\rho_{FORC}(H_{int})$  réalisé parallèlement à l'axe  $H_{int}$  (triangles rouges).

Concernant l'évolution du champ coercitif en température présenté en Figure 4.81, celui-ci chute de 43% entre 5K et 300K. Sur cette plage de température, les effets thermiques ont une influence sur l'anisotropie magnétocristalline du *Co hcp* massif [7] ainsi que sur la relaxation magnétique [13], [14]. La variation de  $H_c$  en température est ici analysée en tenant compte de ces effets. Nous avons vu au chapitre I (partie I.3.b), p.29), la relation de Sharrock [19]:

$$H_c = H_k \left[ 1 - \left( \frac{k_B T}{K_{eff} V} \ln \left( \frac{\tau}{\tau_0} \right) \right)^{\frac{1}{m}} \right] \quad (4.93)$$

avec  $H_k$  le champ d'anisotropie :  $\frac{2K_{eff}}{M_s}$ ,  $E_0$  l'énergie de la barrière à champ nul :  $E_0 = K_{eff} V$ , où  $K_{eff}$  est l'anisotropie effective  $K_{eff} = K_{mc} + K_{shape}$ , considérée constante en température puisque  $M_s$  est globalement constant, et  $K_{mc}$  variant comme l'anisotropie magnétocristalline du *Co hcp* massif [7].  $m$  est un paramètre égal à 2 dans le cas du modèle Stoner-Wohlfarth, et prenant d'autres valeurs comme  $\frac{3}{4}$  dans le cas d'une assemblée aléatoire, et  $\frac{3}{2}$  dans le cas d'un profil énergétique non symétrique [15]. Cependant, cette formule théorique n'est pas suffisante pour rendre compte des données expérimentales. Un facteur d'amortissement  $\alpha$  est ajouté, justifié par une chute du champ

coercitif dû, au défaut d'alignement du champ avec l'axe des nanofils (nommé  $\alpha_\gamma$ , chapitre I, partie I.3.b), p.29) et aux défauts réduisant l'anisotropie par rapport au massif:

$$H_c = \alpha H_k \left[ 1 - \left( \frac{k_B T}{\alpha K_{eff}(T) V_{eff}} \ln \left( \frac{\tau}{\tau_0} \right) \right)^{\frac{1}{m}} \right] \quad (4.94)$$

Les mesures expérimentales de  $H_c(T)$  relevées sur les cycles majeurs et sur les diagrammes FORC (extrait du point B : chapitre II, Figure 2.41, eq. 2.91) sont ajustées par cette relation (4.94), avec  $K_{mc}(T)$  du Co hcp de massif [7], et  $M_S$  indépendant de la température (ou issu de la Figure 4.79, ce qui ne change pas la qualité des ajustements obtenus). Les paramètres d'ajustement sont  $\alpha$ ,  $V_{eff}$  et  $m$ . Précisons que  $V_{eff}$ , le volume d'activation, représenterait le volume concerné par la nucléation du retournement de l'aimantation.

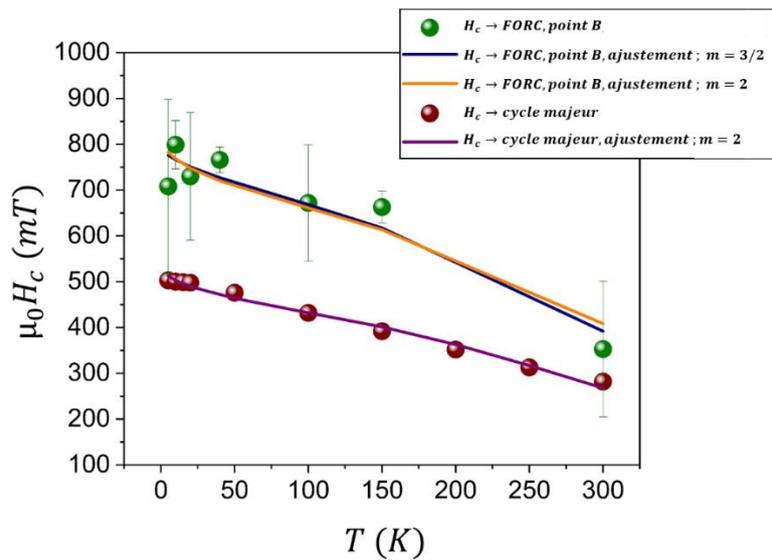


Figure 4.81 : mesure de la variation du champ coercitif en fonction de la température, points verts (relevés sur les diagrammes FORC) et rouges (relevés sur le cycle majeur) et ajustement itératif associé permettant d'identifier un facteur d'amortissement  $\alpha$ , un volume d'activation  $V_{eff}$ , le paramètre  $m$  de l'équation 4.94 est un paramètre d'ajustement pour la courbe jaune, et fixé pour les courbes orange, bleu et violette.

L'accord correct entre l'ajustement itératif et les données expérimentales dégage les valeurs suivantes :

	Facteur d'amortissement : $\alpha$	Volume effectif : $V_{eff}$	$m$
$H_c(T)$ cycle majeur	0,27	$2,89 \cdot 10^{-24} m^3$	2,04
$H_c(T)$ diagramme FORC	0.41	$1,083 \cdot 10^{-24} m^3$	3/2
$H_c(T)$ diagramme FORC	0.40	$1,816 \cdot 10^{-24} m^3$	2

Le paramètre  $m$  proche de 2 indique que le système présente un comportement proche de celui décrit par le modèle Stoner-Wohlfarth. Pour  $m = 2$ , Le volume effectif déduit  $V_{eff}$  est 36 fois inférieur au volume d'un nanofil  $V_{NF} = 6,6 \cdot 10^{-23} m^3 \pm 1,1 \cdot 10^{-23} m^3$ , et correspond à des portions de nanofils de 9.62 nm de long, témoignant d'un retournement localisé de l'aimantation des nanofils. Ceci est couramment observé dans la littérature des nanofils [22], [140], [141] et en accord avec la revue de la littérature exposée au chapitre I, partie B.2, p.47-45. Le facteur  $\alpha$  indique un désaccord quantitatif avec la théorie, les valeurs théoriques étant bien supérieures à celles mesurées. Ceci est un argument

de plus en faveur de l'hypothèse du retournement localisé pour lequel le champ de nucléation est plus faible que le champ d'anisotropie [27], [142], [143].

Des simulations micromagnétiques (OOMMF, Annexe 6, p.193) effectuées sur un nanofil isolé parfait Co *hcp* de diamètre comparable aux diamètres étudiés ici ( $D = 12 \text{ nm}$ ) indiquent que le retournement s'effectue localement par la nucléation et la propagation de vortex à chaque extrémité du nanofil (Figure 4.82.c) [50], [51], [144]. La dépendance en angle indique un mode de retournement lors duquel la contribution dipolaire domine. Il est à noter que le retournement localisé engendre une chute de la valeur du champ de retournement en comparaison de l'équivalent non local, ici le retournement curling. Le rayon du cylindre étant très proche du rayon critique de transition entre le mode cohérent et le mode curling (eq. 1.34), cette chute est relativement faible. Le cycle  $M(H)$  (Figure 4.82.b) parfaitement rectangulaire indique que le champ de retournement ( $\mu_0 H_{SW} = 1300 \text{ mT}$ ) est confondu avec les champs de nucléation et de saturation signifiant que ces nanofils sont des systèmes bistables. Les effets thermiques ne sont pas pris en compte dans cette simulation, ce qui constitue une approximation valable pour des objets de cette taille.

#### Paramètres des simulations micromagnétiques OOMMF :

- longueur d'un nanofil :  $L = 100 \text{ nm}$ ,
- diamètre d'un nanofil :  $D = 12 \text{ nm}$ ,
- anisotropie magnétocristalline uniaxiale:  $K_{mc} = 5.2 \times 10^5 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3}$  parallèle à l'axe du fil,
- constante d'échange du cobalt massif :  $A = 30 \cdot 10^{-12} \text{ J/m}$ ,
- aimantation à saturation du cobalt massif :  $\mu_0 M_S = 1759 \text{ mT}$ ,
- espace discrétisé en cellules parallélépipédiques de taille  $1 \text{ nm} \times 1 \text{ nm} \times 1 \text{ nm}$
- $T = 0 \text{ K}$ ,
- Modélisation par intégration de l'équation Landau-Lifshitz-Gilbert à l'aide de l'algorithme d'Euler:  $\frac{dm}{dt} = 0.1$  ;  $\alpha_{LLG} = 0.5$ .

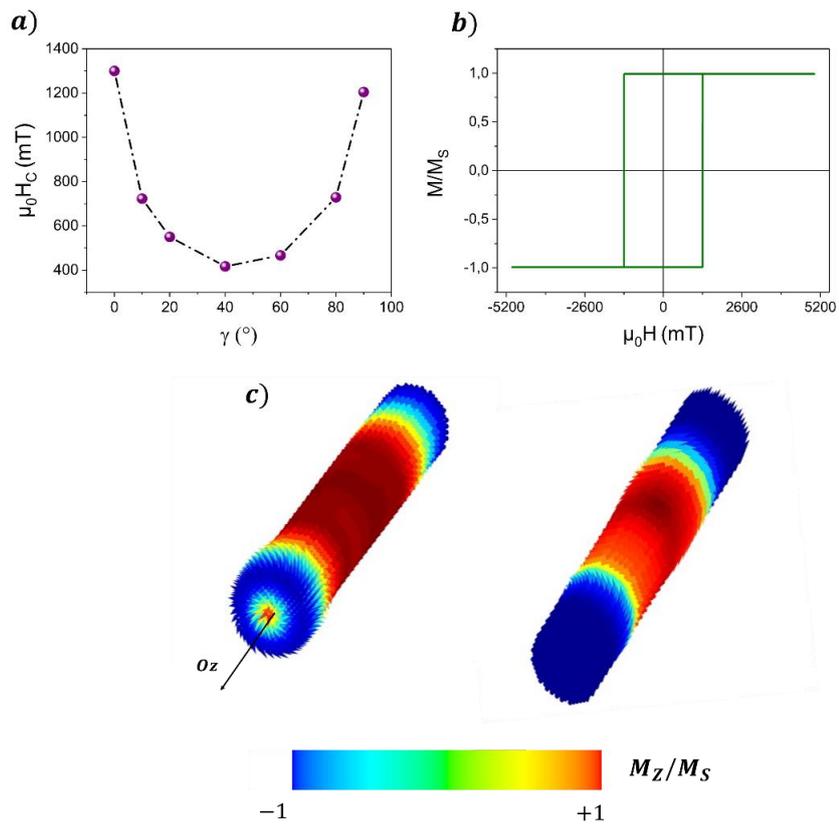


Figure 4.82 : a) dépendance en angle du champ coercitif des nanocylindres simulés (gamma angle entre le champ appliqué et le grand du cylindre). b) cycle d'hystérésis calculé pour  $\gamma = 0^\circ$  c) illustration de l'évolution d'un vortex provoquant le retournement de l'aimantation d'un nanofil simulé avec OOMMF d'un diamètre de 12nm et d'une longueur de 100 nm.

## B. Mesures et diagrammes FORC

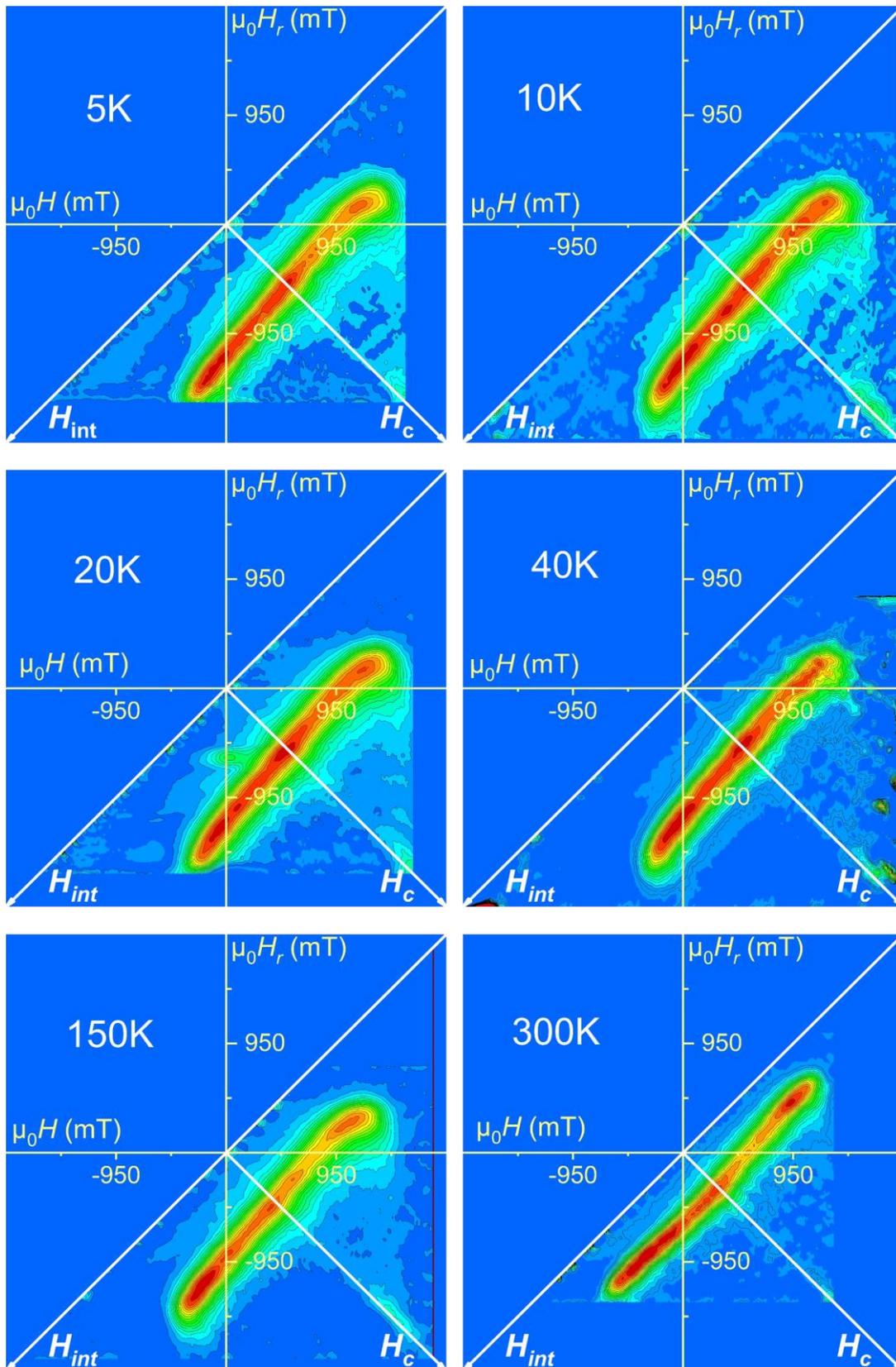


Figure 4.83 : diagrammes FORC issus de mesures à différentes températures allant de 5K à 300K sur le système anisole.

Des mesures FORC ont été effectuées à différentes températures sur différents échantillons synthétisés dans l'anisole présentant les mêmes caractéristiques. L'acquisition d'un point se déroule sur 0,5 s, temps sur lequel est moyenné le signal acquis, la vitesse de balayage est de 5 mT/s, un point est relevé toute les 2s ce qui correspond à des points espacés d'environ 10 mT. Les champs de renversement sont espacés d'un pas qui dépend de la largeur du cycle et donc de la température d'acquisition. En effet, le champ de saturation ainsi que  $H_{r,max}$ , le champ de fermeture du cycle, varie suivant la température de mesures. Pour une évaluation raisonnable de  $\rho_{FORC}$ , nous avons choisis  $\Delta H_r = \frac{2 \times H_{r,max}}{90}$  de façon à mesurer 90 FORC permettant de tracer le diagramme FORC correspondant. La méthode d'acquisition est détaillée dans Annexe 7.

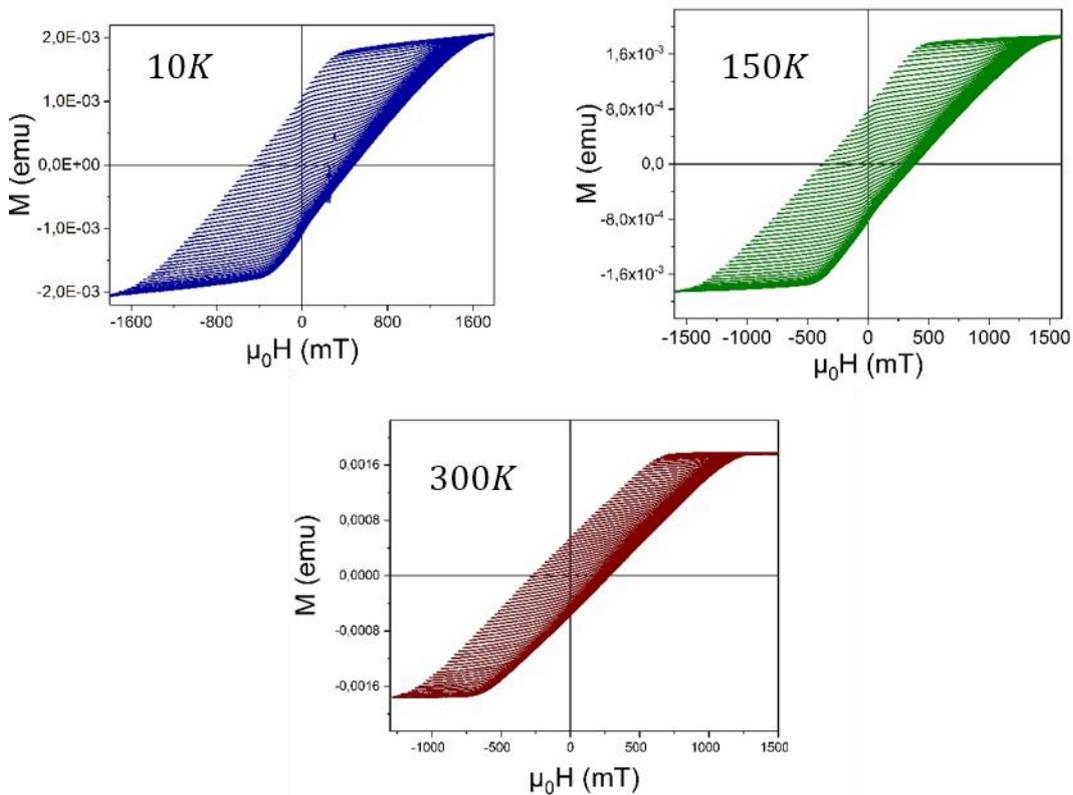


Figure 4.84 : Mesures FORC à différentes températures sur le système anisole.

Les diagrammes FORC sur le système anisole sont présentés Figure 4.83. Ils sont issus de mesures, dont trois exemples (10K, 150K et 300K) sont visibles Figure 4.84. Ces diagrammes indiquent une signature du comportement magnétique pratiquement identique pour chaque température mesurée : la forme que prend  $\rho_{FORC}$  est dite linéaire (IFD) et reflète un régime d'interaction en champ moyen, bien connu de la littérature [111], [113], [114], [126], et obtenue par simulations d'hystérons interagissant selon un champ moyen (chapitre II, partie III.A, p.67). Ce régime de champ moyen est identifié ici comme largement dominant dans le comportement magnétique de ces assemblées, et ce, quelle que soit la température. En effet, la Figure 4.86.a présente les profils réalisés le long de la distribution  $\rho_{FORC}$  parallèlement à l'axe  $H_{int}$  pour chacune des températures mesurées. Ces profils nommés  $\rho_{FORC}(H_{int})$  sont de hauteur constante quelle que soit la température. Nous avons montré au chapitre II que la constance du profil  $\rho_{FORC}(H_{int})$  est caractéristique d'un champ d'interaction moyen (chapitre II, partie III.A, p.67). D'autre part la largeur  $\rho_{FORC}(H_{int})$  varie de manière négligeable

avec la température, signifiant que le champ d'interaction est indépendant de la température. En effet,  $H_{int,zz,FORC}^{sat}$ , l'amplitude du champ d'interaction à la saturation, est relevée comme la demi-largeur du profil  $\rho_{FORC}(H_{int})$ . Puisque  $H_{int,zz} = -P \cdot M$  alors  $|H_{int,zz,FORC}^{sat}| = P \cdot M_s$ . La Figure 4.80 reporte la grandeur  $\frac{H_{int,zz,FORC}^{sat}}{M_s}$ , comparativement à l'inverse de la susceptibilité différentielle  $\chi|_{H_c}^{-1}$  ainsi que  $P^{struct}$ . Par ailleurs, comme décrit au chapitre II, partie III.D.2, p.71, le champ d'interaction à la saturation peut être extrait du diagramme FORC au point A de coordonnées:  $A: (H_{C,min}; |H_{int,zz,FORC}^{sat}|)$ . Un exemple de ce point est présenté Figure 4.86.b. Il apparait un bon accord entre les données issues des cycles majeurs, des mesures FORC et des études structurales, signifiant que le champ d'interaction à la saturation, et par extension le champ d'interaction moyen subit par les nanofils, ne varie pas suivant la température. Cependant les valeurs extraites des mesures FORC sont inférieures aux données issues des cycles majeurs et sont en moins bon accord avec le taux de compacité  $P^{struct}$  évalué à partir d'images MET. Ce dernier point semble contradictoire du fait de la fiabilité des mesures FORC en comparaison avec les données extraites des pentes des cycles majeurs. Comme évoqué précédemment, la pente des cycles majeurs contient toutes les contributions qui peuvent engendrer une variation de l'aimantation au cours du cycle d'hystérésis, ce qui peut altérer la détermination de  $N_{int,zz}$ . Notamment, la Figure 4.85 montre l'évaluation de la susceptibilité différentielle relevée autour de  $H_c$  sur un cycle effectué par un réseau d'hystérons simulés, dispersés en champ de retournement avec une dispersion allant de 0 mT à 165 mT et en interaction *via* un champ de type Ising d'amplitude égale dans chacune des simulations. Ce graphe permet de conclure que, pour une assemblée dispersée et en interaction *via* un champ d'Ising, la susceptibilité n'est pas uniquement fonction de l'amplitude du champ d'interaction mais également de la largeur de l'iSFD.

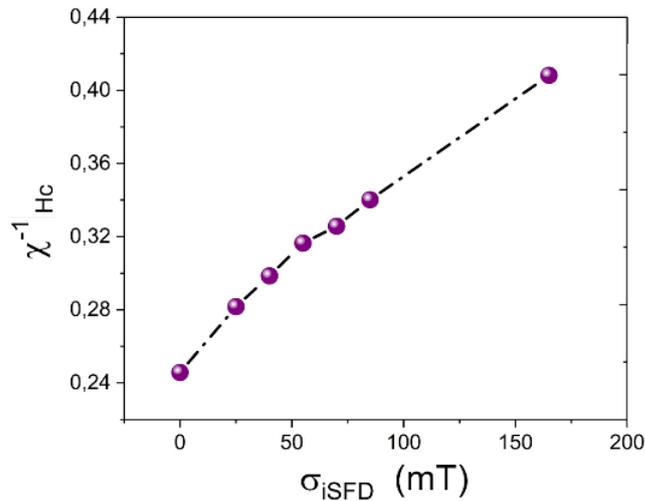


Figure 4.85 : susceptibilité différentielle relevée autour de  $H_c$  sur différents cycles majeurs effectués par une assemblée d'hystérons simulés de dispersion en champ de retournement de 0 mT à 165 mT, pour un champ coercitif de 300 mT et dont l'amplitude du champ d'interaction à la saturation moyenné sur toute l'assemblée vaut 530 mT.

Ainsi, force est de constater que les mesures de champ d'interaction par la susceptibilité différentielle du cycle majeur d'une part, et par le diagramme FORC d'autre part, peuvent donner des résultats différents suivant la largeur de la distribution de champ de retournement.

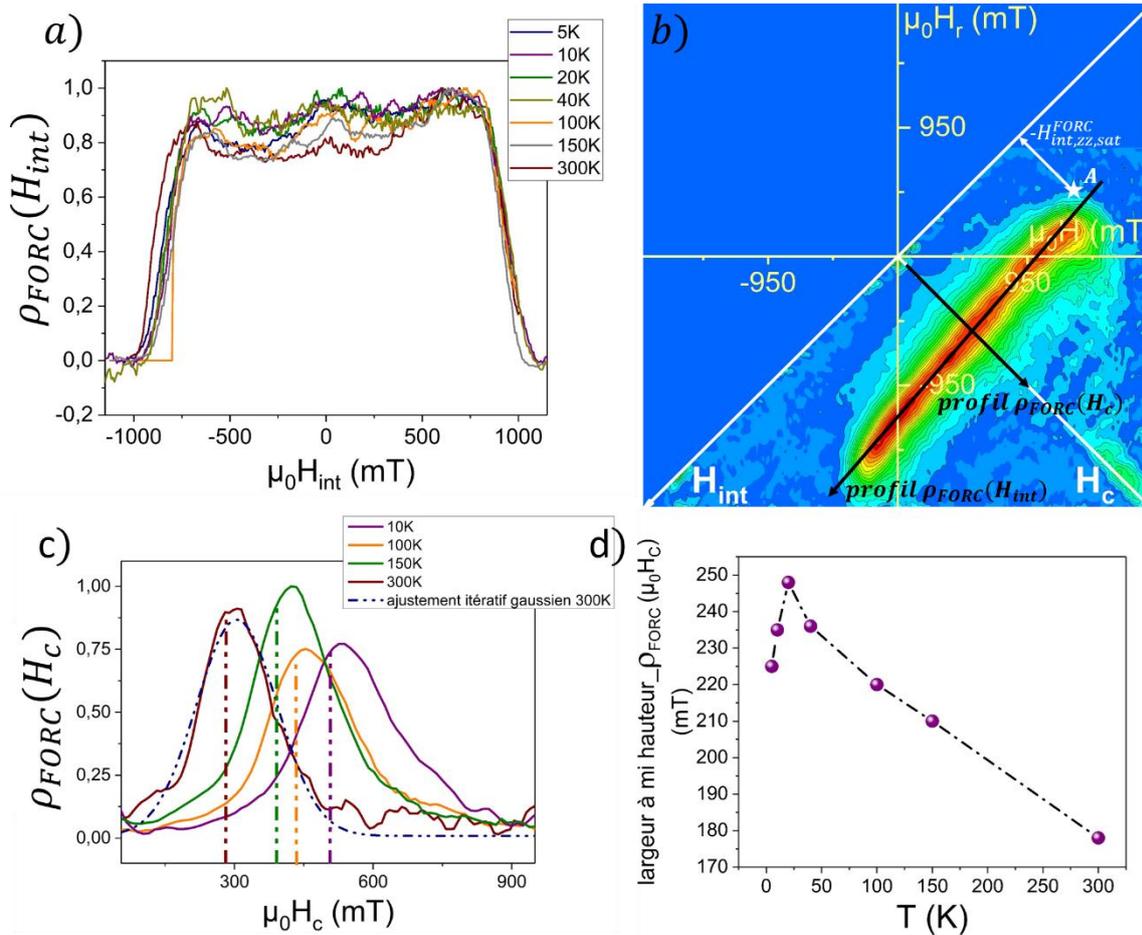


Figure 4.86 : a) profils relevés parallèlement à l'axe  $H_{int}$  nommé  $\rho_{FORC}(H_{int})$ , b) diagramme FORC obtenu à 10K, les lignes noires représentent la direction d'extraction des profils présentés en a) et en c), c) profils relevés parallèlement à l'axe  $H_c$  nommé  $\rho_{FORC}(H_c)$ , d) évolution en température de la largeur de  $\rho_{FORC}(H_c)$ .

La Figure 4.86.c) contient les profils de  $\rho_{FORC}$  le long de l'axe  $H_c$  ( $H_{int} = 0$ ), nommés  $\rho_{FORC}(H_c)$  et ce pour chacune des températures mesurées. Il est important de garder à l'esprit que  $\rho_{FORC}(H_c)$  ne sonde pas la distribution intrinsèque en champ de retournements (iSFD) [79] (chapitre 2, partie III.D.2, p.71). Cependant, selon les arguments développés dans le chapitre II, partie III.D.2, p.71, il est raisonnable d'avancer que l'évolution de la largeur de  $\rho_{FORC}(H_c)$  suit la même tendance que l'évolution de la largeur de l'iSFD. Les caractéristiques de la distribution sondée par  $\rho_{FORC}(H_c)$  sont évaluées à l'aide d'un ajustement itératif gaussien. L'évolution de la largeur de  $\rho_{FORC}(H_c)$  suivant la température montre une augmentation linéaire conséquente à mesure que diminue la température jusqu'à atteindre 20K, puis une forte diminution pour les deux points suivants, 5K et 10K. Ceci s'accompagne d'un changement de la forme globale du diagramme FORC, avec des diagrammes FORC à 5 et 10K tendant vers une géométrie wishbone absente aux températures plus élevées (Cf. Figure 4.83). Lors du chapitre II, partie III.D.2, p.71, les simulations d'assemblées d'hystérons, dans un contexte de champ d'interaction moyen, ont permis de déterminer que la cause de la transition de la géométrie linéaire à la géométrie wishbone provient de l'élargissement de l'iSFD. Il est donc possible d'interpréter ce changement de tendance et de forme comme un passage à la géométrie wishbone, ici rattaché à l'élargissement de l'iSFD. Ainsi, comparer la largeur de  $\rho_{FORC}(H_c)$  pour  $T < 20K$  avec la largeur des profils extraits de températures supérieures à 20K devient plus délicat. En se limitant à la plage de température 300 – 20 K,  $\rho_{FORC}(H_c)$  s'élargit linéairement avec la diminution de la température. En terme d'iSFD, on peut s'attendre, lorsque la température diminue, à ce que certaines impuretés superparamagnétiques à haute température

deviennent bloquées à plus basse température induisant un élargissement de l'iSFD. Un second argument en faveur de l'élargissement de l'iSFD à basse température peut être formulé sur l'idée que la coercivité des nanofils augmente du fait de l'augmentation de l'anisotropie magnétocristalline avec la diminution de la température, cependant pour les nanofils comportant des défauts (parties locales cubique à faces centrées, lacunes, macles, etc.)  $K_{mc}$  n'augmente pas comme pour les nanofils « sans » défauts, provoquant ainsi un élargissement de l'iSFD. Autrement dit l'évolution en température de l'anisotropie magnétocristalline d'un nanofil du réseau dépendrait de sa qualité cristalline.

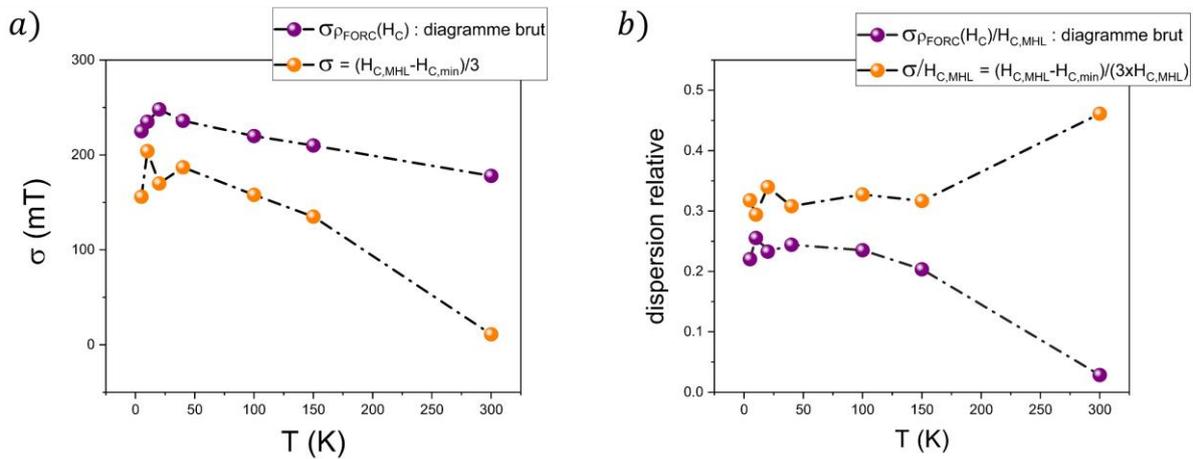


Figure 4.87 : a) dispersion en fonction de la température obtenue comme l'écart type de l'ajustement itératif gaussien des profils le long de l'axe  $H_c$  des diagrammes FORC bruts visibles Figure 4.86.c (points violets), les points orange sont obtenus par la relation  $\sigma_{iSFD, FORC} = \frac{H_{c,MHL} - H_{c,min}}{3}$ . b) Dispersion relative  $\frac{\sigma_{iSFD}}{H_{c,MHL}}$  ( $H_{c,MHL}$  relevé au point B des diagrammes Figure 4.84) en fonction de la température de mesure.

La Figure 4.87 présente une comparaison des différentes estimations de la largeur de la distribution en champ de retournement à partir de profils  $\rho_{FORC}(H_c)$  effectués sur les diagrammes FORC (points violets,  $\sigma_{\rho_{FORC}}(H_c)$  issu d'un ajustement itératif gaussien des profils Figure 4.86c), et de l'estimation à l'aide des points A et B :  $\frac{H_c - H_{c,min}}{3}$  (chapitre II, partie III.C et D). L'étude à partir des simulations d'hystérons au chapitre II a indiqué que seule l'estimation  $\sigma = \frac{H_{c,MHL} - H_{c,min}}{3}$  était quantitative. Ainsi, la dispersion relative en champ de retournement  $\frac{\sigma_{iSFD}}{H_{c,MHL}}$  peut être estimée autour de 30%. Cette valeur est clairement très importante. Il est toutefois à noter qu'il est connu que la dispersion de iSFD augmente lorsque la taille des nanoaimants est réduite [154]. Ceci est simplement dû au fait que lorsque la taille diminue, les défauts impactent plus fortement les propriétés magnétiques car la proportion de volume affectée est d'autant plus grande que les objets sont de petite taille. Etant donné le diamètre moyen et la distance interfil du présent système définissant une période du réseau de  $14.7 \pm 2.2 \text{ nm}$ , la largeur reportée ici s'inscrit dans la tendance observée dans les bit patterned media [154].

## C. Conclusion sur les réseaux synthétisés dans l'anisole

Les caractéristiques des nanofils qui constituent ces échantillons sont telles qu'un retournement de l'aimantation par nucléation de vortex aux extrémités et propagation le long de l'axe des nanofils est attendu d'après les simulations micromagnétiques et confirmé par la littérature (chapitre I, Eq. 1.34). L'ajustement itératif de la courbe  $H_c(T)$  argumente dans le sens d'un retournement localisé d'après un volume effectif très inférieur au volume d'un nanofil. La magnéto-métrie indique que l'aimantation à la saturation de ces échantillons est constante en température, ce qui est en accord avec un champ d'interaction à la saturation constant en température. Ces échantillons sont descriptibles par une théorie de champ moyen basée sur une susceptibilité de l'aimantation constante : l'aimantation  $M(H)$  est linéaire durant le retournement de l'assemblée. Le profil  $\rho_{FORC}(H_{int})$  est une constante, signature d'un régime d'interaction en champ moyen, et ce, à toutes les températures. La comparaison entre les données extraites des diagrammes FORC et les données extraites du cycle majeur révèle une tendance identique cependant un décalage entre les valeurs numériques est observé. Enfin l'analyse FORC fait apparaître un élargissement de la distribution de champs de retournement aux basses températures qui pourrait trouver son origine du fait de particules superparamagnétiques ayant une température de blocage inférieure à la température ambiante, et/ou d'une influence de défauts structuraux distribuant plus largement l'anisotropie aux basses températures.

## II. Réseaux synthétisés dans le toluène

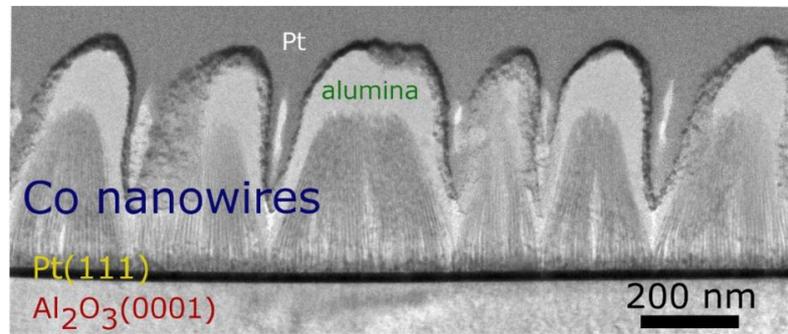
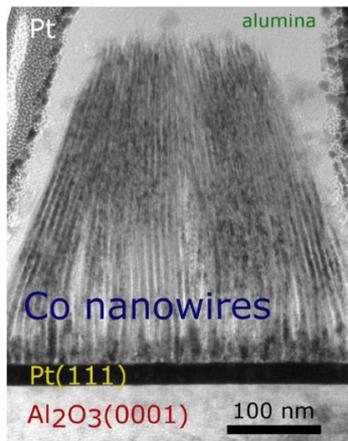
Ces échantillons ont demandé une investigation des propriétés magnétiques en profondeur. Des mesures sur deux échantillons représentatifs seront présentées, puis comparées avec les résultats de simulations micromagnétiques dans la partie suivante.

### A. Rappels du système

Rappelons les paramètres de synthèse et les caractéristiques structurales déterminées par microscopie électronique (Figure 4.88) :

- substrat de  $Pt(111)$  20 nm/ $Al_2O_3(0001)$  de  $1\text{cm}^2$ ,
- $[Co]=15\text{mMol}$ ,  $[Co]/[La]/[HDA]=1/2/2$ ,
- solvant : toluène,
- temps de réaction 16h,
- température de réaction :  $110^\circ\text{C}$ ,
- Diamètre :  $D = 6,2\text{ nm} \pm 0,9\text{ nm}$ ,
- longueur :  $L = 350\text{ nm}$ ,
- distance interfil :  $d = 2,5 \pm 0,5\text{ nm}$ ,
- $\langle H_c(300K) \rangle \approx 310\text{ mT}$ ,
- densité surfacique ou taux de compacité :  $P = 0,46 \pm 0,10$ ,
- nanofils monocristallins de structure  $Co\text{ hcp}$ , axe  $c$  parallèle à l'axe des nanofils.

**a)**



**b)**

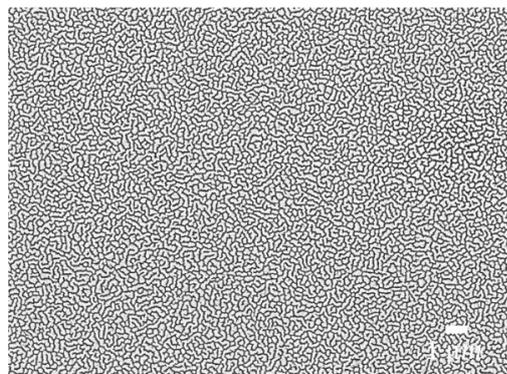
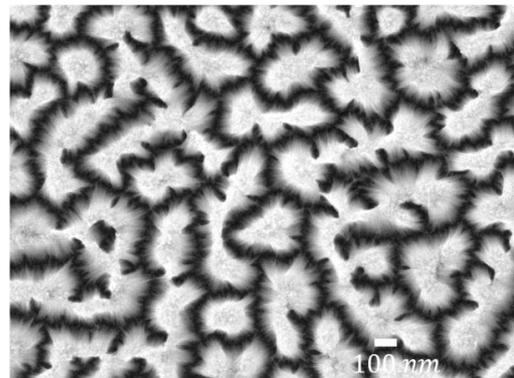
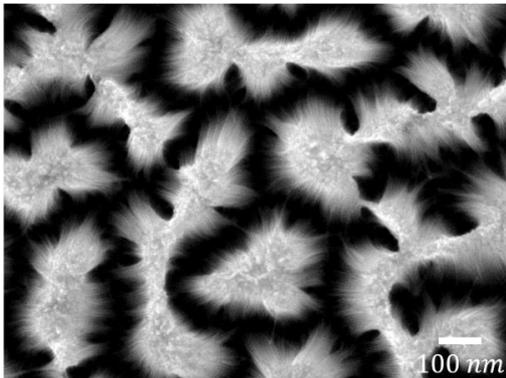


Figure 4.88 : a) MET : section transverse d'un échantillon issu d'une synthèse dans le toluène, de paramètres et de caractéristiques structurales cités ci-dessus (un dépôt de Pt est effectué au-dessus du réseau de nanofils durant la préparation de la lame mince). b) MEB : vue plane effectuées sur le même échantillon.

## B. Cycles $M(H)$

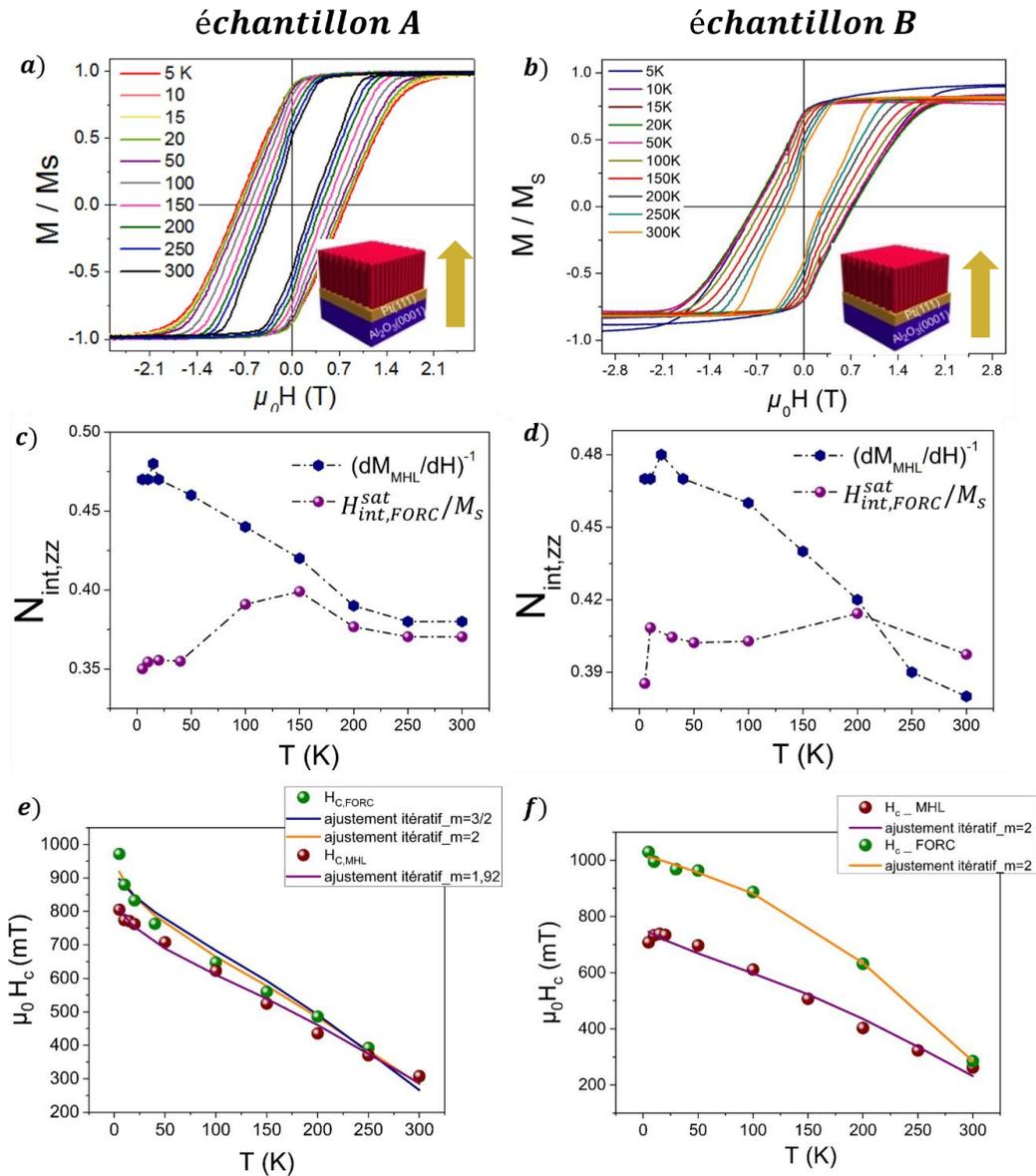


Figure 4.89 : a) et b) : cycles d'hystérésis majeurs mesurés pour différentes températures pour deux échantillons différents issus de synthèses de mêmes paramètres indiqués en début de cette partie. c) et d) : en bleu inverse de la susceptibilité différentielle relevée autour de la coercivité, en violet facteur de désaimantation déduit de  $H_{\text{int,FORC}}^{\text{sat}}$  relevé sur le diagramme FORC. e) et f)  $H_c(T)$  relevé sur les cycles d'hystérésis majeurs en rouge et sur le diagramme FORC en vert superposés à leur ajustement itératif respectif à l'aide de l'équation 4.94.

La Figure 4.89 présente les cycles  $M(H)$  redressés (la composante paramagnétique ou diamagnétique, extraite à fort champ, a été soustraite), à différentes températures, effectués sur deux échantillons issus de deux synthèses similaires. Comme dans le cas de la synthèse anisole, les cycles basse température mesurés après refroidissement sous champ de  $+5T$  ne font apparaître aucun décalage d'échange significatif associé à un couplage  $\text{Co}/\text{CoO}$  : les nanofils ne sont ainsi pas ou peu oxydés. Les cycles apparaissent cisailés, avec une coercivité augmentant aux basses températures. L'aimantation à saturation est à peu près constante (7% de variation, Figure 4.90), comme attendu d'après le  $\text{Co}$  massif. Toutefois il apparaît des désaccords avec les modèles d'une assemblée de nanofils uniquement couplés par interaction dipolaire de type champ moyen :

- la susceptibilité différentielle à  $H_c$  relevée sur le cycle majeur montre une forte évolution en température (Figure 4.89. c et d) : en désaccord avec  $(\chi)_{H_c}^{-1} = N_{int,zz} = P$ .
- la valeur du taux de compacité relevée sur les images MET ne correspond ni au facteur de désaimantation  $N_{int,zz}$  déduit du champ d'interaction à la saturation relevé sur le diagramme FORC,  $H_{int,zz,FORC}^{sat}$ , ni à l'inverse de la susceptibilité différentielle relevée autour de  $H_c$  sur les cycles d'hystérésis majeurs.

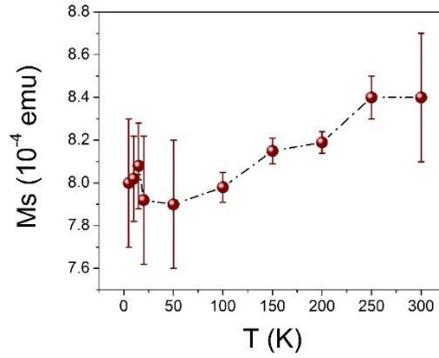


Figure 4.90 : variation de l'aimantation à saturation de l'échantillon A en fonction de la température.

Dans la littérature, les auteurs semblent unanimes sur la fiabilité de la valeur du champ d'interaction à la saturation relevé au point A sur les diagrammes FORC (*i.e.* zone représentant la nucléation du retournement) en ce qui concerne les mesures sur des réseaux de nanofils, et ce pour un champ d'interaction local ou un champ d'interaction moyen [111], [113], [114], [155]. En revanche le cycle d'hystérésis majeur contient, entre le champ de nucléation et de saturation, tous les effets entraînant des variations non linéaires de l'aimantation avec la variation du champ externe, venant perturber l'évaluation du facteur de désaimantation. Ainsi, le désaccord entre les résultats de ces deux mesures peut traduire une variation de la largeur de l'iSFD avec la diminution de la température, mais également l'existence d'un couplage autre que le couplage magnétostatique au sein du réseau. L'hypothèse étudiée dans ce chapitre est l'existence d'un couplage d'échange entre les nanofils de l'assemblée vectorisée par un pseudo-film mince magnétique sous-jacent aux nanofils, permettant la propagation de parois de domaines.

Les graphes e) et f) de la Figure 4.89 montrent la variation du champ coercitif de l'assemblée en fonction de la température. De la même manière que pour les réseaux synthétisés dans l'anisole, cette variation est ajustée par la formule de Sharrock (eq. 1.32). Le tableau suivant résume les caractéristiques déterminées par les ajustements itératifs des courbes  $H_{c,FORC}(T)$  (relevés au point B) et  $H_{c,MHL}(T)$  pour les données de l'échantillon A de la Figure 4.89 :

Echantillon A	Facteur d'amortissement : $\alpha$	Volume effectif : $V_{eff}$	$m$
$H_c(T)$ cycle majeur	0.43	$6,42 \cdot 10^{-25} m^3$	1.92
$H_c(T)$ diagramme FORC	0.47	$4.25 \cdot 10^{-25} m^3$	3/2
$H_c(T)$ diagramme FORC	0.50	$4.79 \cdot 10^{-25} m^3$	2

Le volume effectif  $V_{eff}$ , déterminé à partir de l'ajustement itératif de la courbe  $H_c(T)$  issu des mesures de cycles majeur est 72 fois inférieur au volume d'un nanofil calculé avec les caractéristiques données en début de partie ( $V_{NF} = 4,64 \cdot 10^{-23} nm^3$ ). Pour  $m = 3/2$ , le volume effectif est 109 fois inférieur au volume d'un nanofil. Ce volume, correspondant à un fragment de 3,2 nm de hauteur, ce qui sous-entend un mode de retournement de l'aimantation localisé. Au vue des valeurs très

différentes du cas anisole il est fort probable que le mode de retournement ne soit pas le même ici que dans les nanofils issu des synthèses dans l'anisole. De plus l'équation 1.34 indique que pour ce diamètre ( $D = 6,2 \pm 0,9 \text{ nm}$ ) un retournement par propagation de paroi transverse est attendu contrairement au cas anisole pour lequel un retournement par propagation paroi vortex est attendu. Comme pour les échantillons synthétisés dans l'anisole, ainsi que communément évoqué dans la littérature, le facteur d'amortissement  $\alpha$  est imputable aux défauts structuraux réduisant localement l'anisotropie et localisant le renversement.

## C. Mesures et diagrammes FORC

Des mesures FORC ont été réalisées afin d'expliciter le comportement magnétique de l'assemblée et de sonder les propriétés magnétiques intrinsèques. La Figure 4.91 contient les diagrammes FORC tracés suite à l'acquisition de jeux de courbes de renversement du premier ordre à différentes températures. L'acquisition d'un point se déroule sur  $0,5s$ , temps sur lequel est moyenné le signal acquis, la vitesse de balayage est de  $5 \text{ mT/s}$ , un point est relevé toutes les deux secondes, si bien que les points sont espacés d'environ  $10 \text{ mT}$  de champ externe. Les champs de renversement sont espacés d'un pas qui dépend de la température d'acquisition, défini par  $\Delta H_r = \frac{2 \times H_{r,max}}{90}$  avec  $H_{r,max}$  le champ de fermeture du cycle, de façon à effectuer 90 FORC. Précisons que le champ de fermeture du cycle n'est pas égal au champ de saturation. Au terme de chaque FORC, le champ externe atteint la valeur du champ de saturation, également dépendant de la température. La procédure d'acquisition d'un jeu de FORC est jointe en Annexe 7.

Un premier point notable par rapport aux échantillons synthétisés dans l'anisole est le fait que la distribution FORC, globalement linéaire aux températures proches de 300K, voit sa forme devenir progressivement wishbone à l'approche des basses températures. Au chapitre II, partie III.D, les simulations d'hystérons indiquent une telle transition d'une FORC dite linéaire à une FORC dite wishbone lorsque la distribution intrinsèque en champ de retournement dicte l'ordre de succession des retournements de chaque nanofils, prenant le dessus sur l'ordre imposé par une distribution en champ d'interaction. Dans le cas des échantillons synthétisés dans l'anisole, nous avons ainsi conclu à un élargissement de l'iSFD aux basses températures, mis en évidence d'une part par l'élargissement des profils  $\rho_{FORC}(H_c)$  aux basses températures, et d'autre part par un début de transition de FORC wishbone aux très basses températures (10 et 5K). Par ailleurs, les points *A*, *B* et *C* relevés sur un diagramme FORC, qu'il soit linéaire, wishbone, ou intermédiaire, permettent d'évaluer  $H_{c,MHL}$  et  $H_{int,FORC}^{sat}$  (chapitre II, partie III.D). Les valeurs de  $H_{int,FORC}^{sat}$  et  $H_{c,MHL}$  ainsi obtenus à partir des Figure 4.91 et Figure 4.92 sont représentées Figure 4.89.c) et e) pour l'échantillon *A*, et Figure 4.89.d) et f) pour l'échantillon *B*. Il apparaît que  $H_{int,FORC}^{sat}$  est globalement constant en fonction de la température, ce qui est un comportement attendu dans l'approche du champ moyen. Dans ce contexte, le champ d'interaction est guidé par la géométrie du réseau et l'aimantation à la saturation, grandeurs constantes en température. Cela est par ailleurs cohérent avec la constance de  $H_{int,FORC}^{sat}$  dans le système anisole.

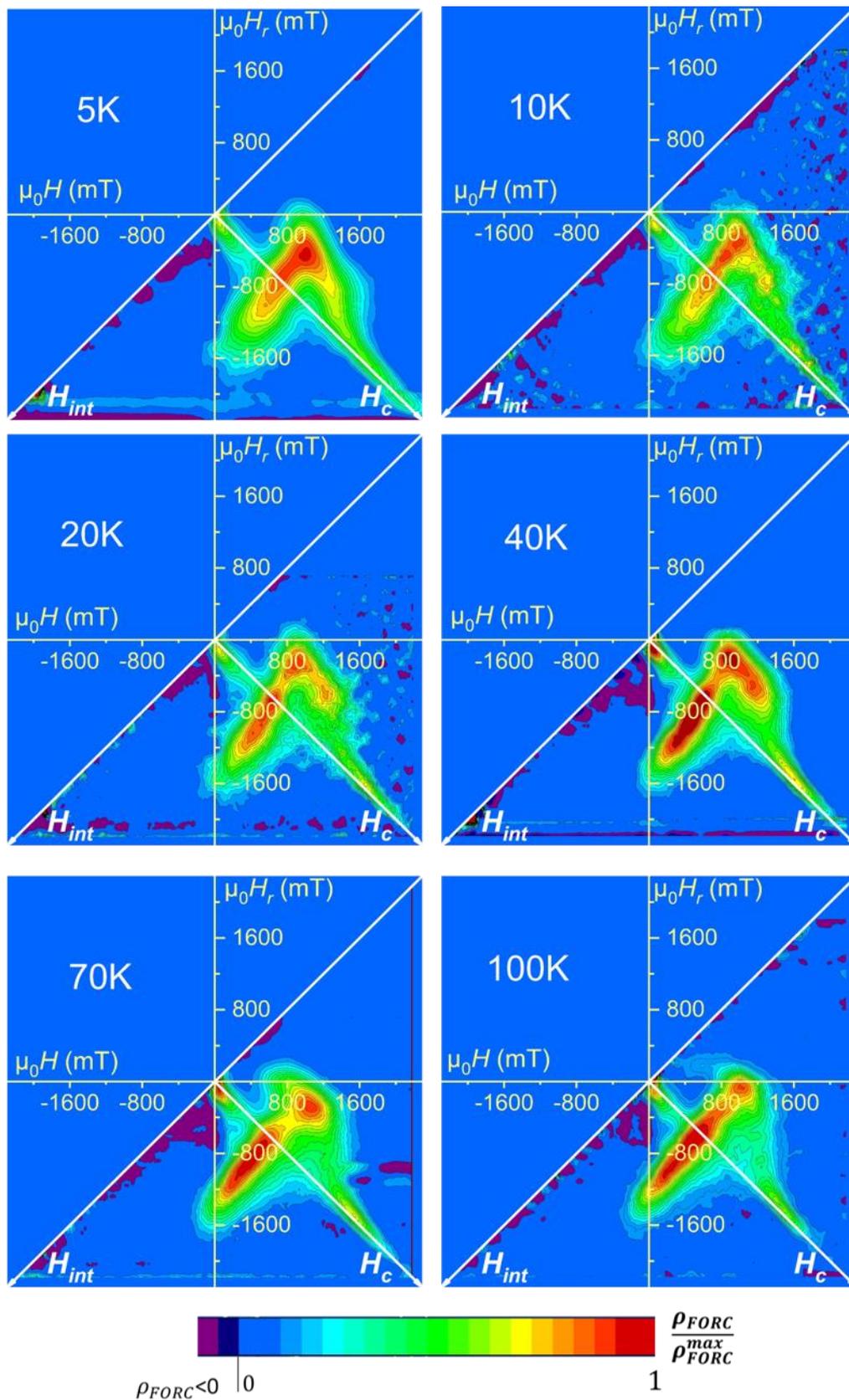


Figure 4.91 : Diagrammes FORC issus d'acquisitions effectuées entre 5K et 100K sur l'échantillon A.

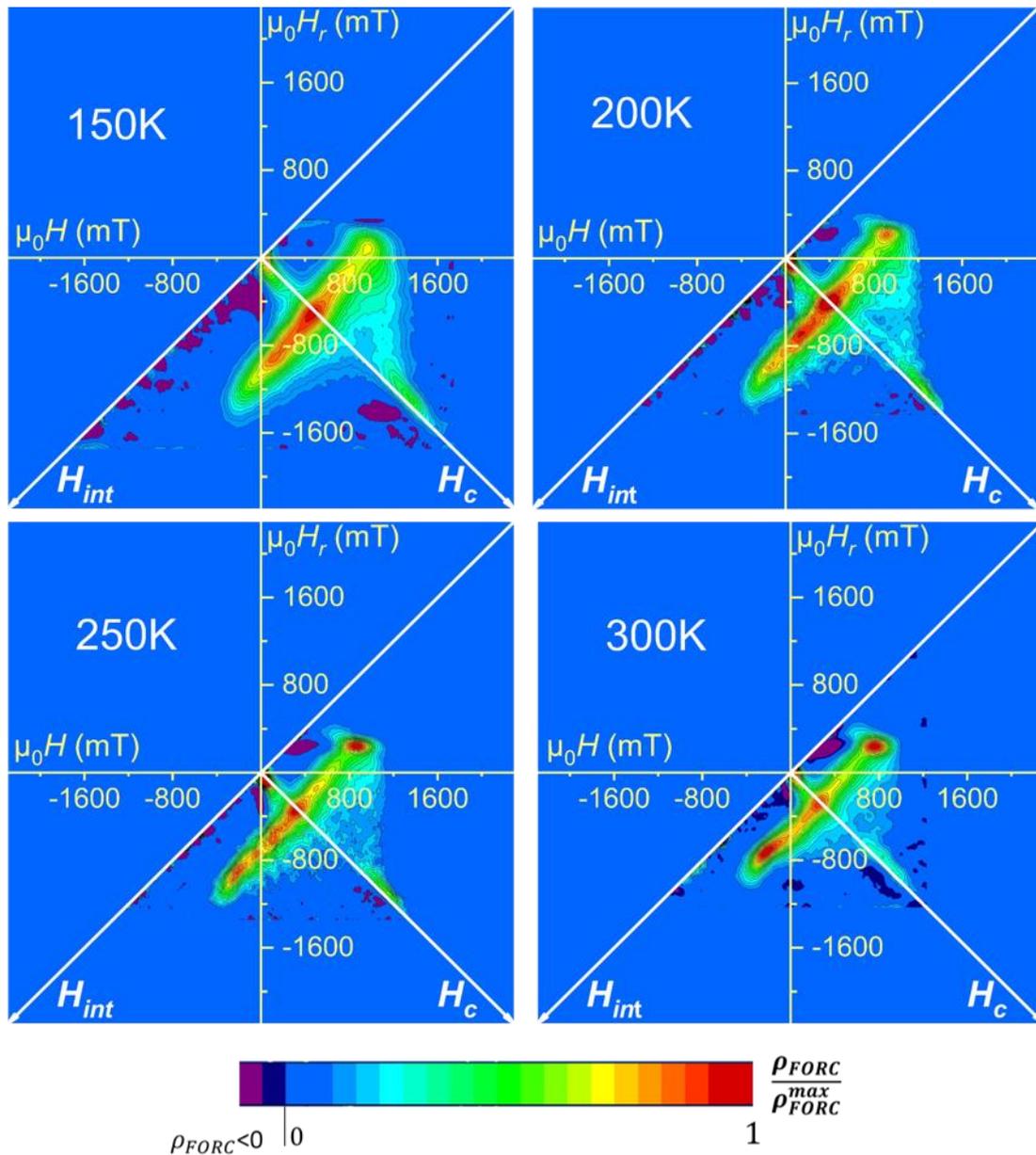


Figure 4.92 : Diagrammes FORC issus d'acquisitions effectuées entre 150K et 300K sur l'échantillon A.

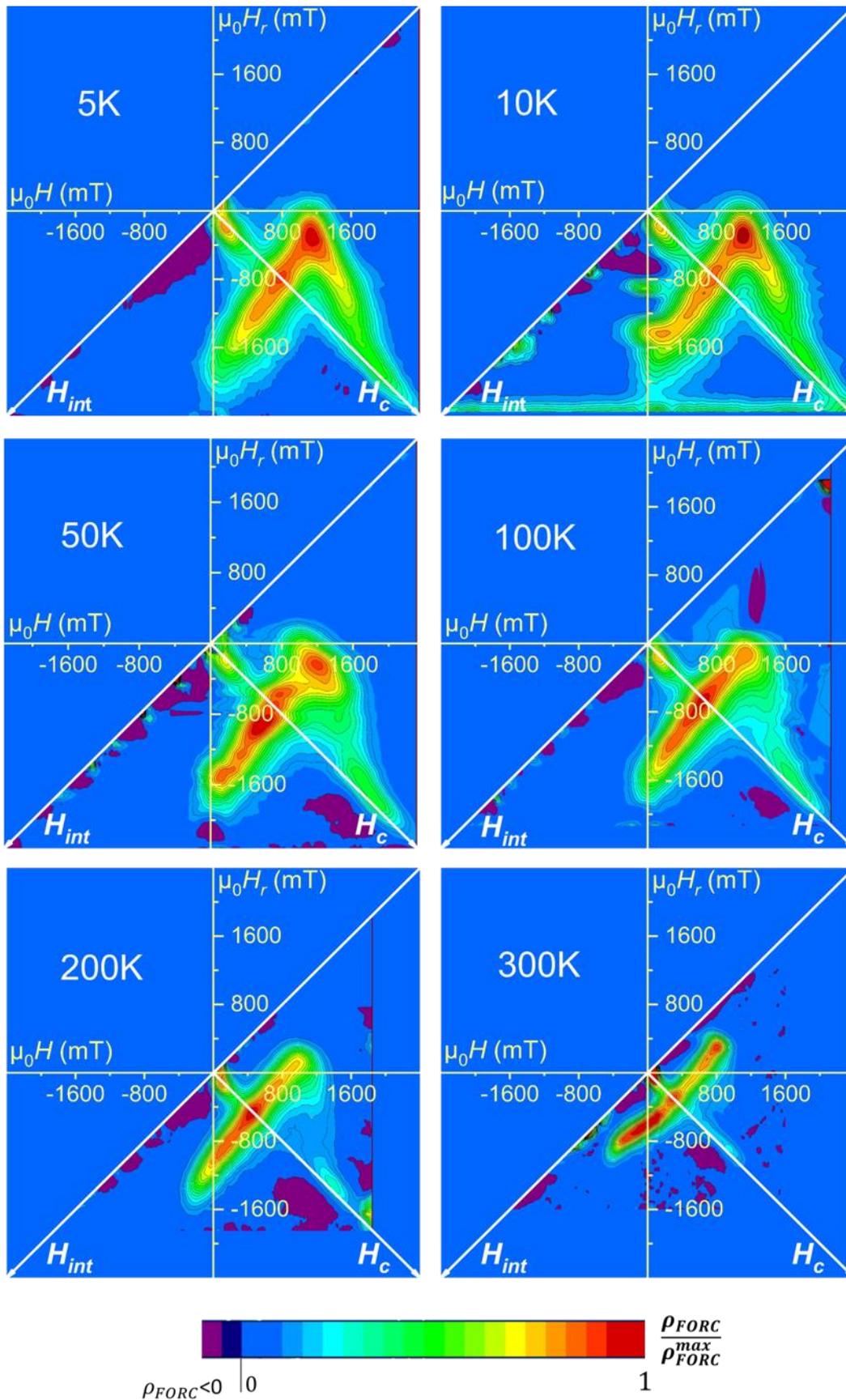


Figure 4.93 : Diagrammes FORC issus d'acquisitions effectuées 5K et 300K sur l'échantillon B.

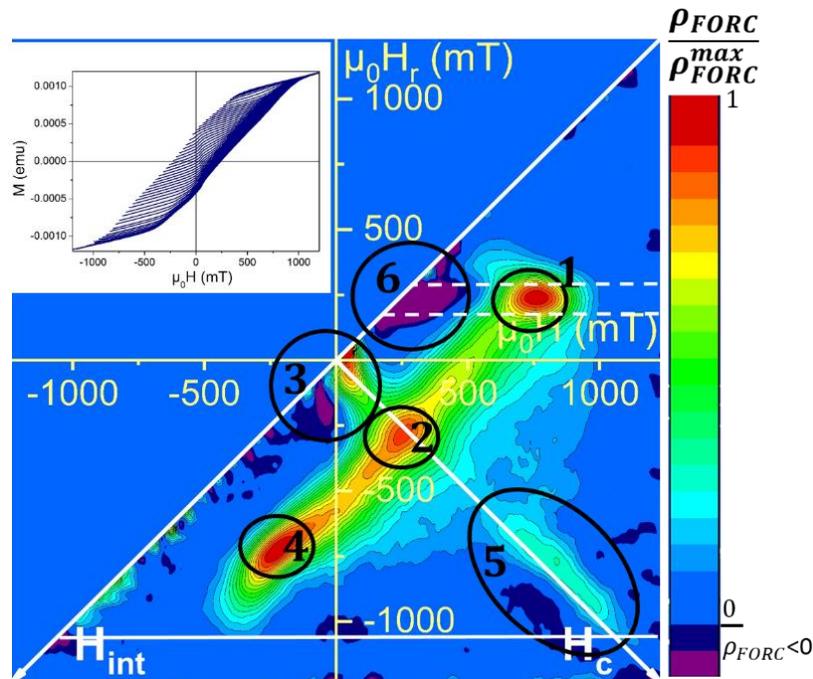


Figure 4.94 : diagramme FORC issu d'une mesure effectuée à 300K sur l'échantillon A sur lequel sont repérées différentes signatures.

En dehors de la distribution majeure centrale, on distingue deux distributions communément observées dans des diagrammes FORC, et identifiées 3 et 5 sur la Figure 4.94. **La distribution 3** est la signature de processus presque réversibles, ou tout au moins irréversibles à très faible coercivité donc à bas champ. C'est la signature FORC des points d'inflexion visibles sur les cycles  $M(H)$  immédiatement après le champ nul. Cette distribution pourrait être interprétée comme provenant d'impuretés ferromagnétiques à très faible coercivité [156], ici des particules parasites non désirées issues de la synthèse. Les analyses *MEB* (Figure 4.88) n'ont cependant révélées aucun nano-objet parasite posé sur la surface du réseau. Il est donc envisageable que des processus réversibles autres soient à l'origine de la distribution 3. Cette signature sera à nouveau discutée dans la prochaine partie, à la lumière des simulations micromagnétiques de réseaux de nanofils évasés à leur base. **La distribution 5** est tout-à-fait caractéristique des réseaux de nanofils. Elle correspond à la CFD (Coercive Field Distribution) décrite au chapitre II partie III.D.5, p.79. Elle concerne des nanofils ayant un fort champ de retournement au sein de la distribution totale de l'assemblée, qui se retournent après la coercivité moyenne de l'assemblée (FORC inférieures, schéma chapitre II partie III.D, p.69) et voient leur champ de retournement artificiellement augmenté par le champ d'interaction (équation 2.90 chapitre II partie III.D.2, p.7171). Ceux-ci se retournent donc sous des champs appliqués très loin de la valeur de leur champ de retournement intrinsèque [111], [117], [118], [157] ; on parle de coercivité artificiellement exaltée par les interactions ou encore de « memory effects ». Par ailleurs, ce diagramme, bien que globalement linéaire, présente des caractéristiques différentes du diagramme FORC issus des réseaux de nanofils synthétisés dans l'anisole. Particulièrement,  $\rho_{FORC}$  n'est pas constant le long de l'*IFD* : **la distribution 2** est connue dans la littérature comme une signature résultant de l'inhomogénéité du champ d'interaction [111], [114]. Comme vu au chapitre 2 (Figure 2.37), elle peut être simulée par une assemblée d'hystérons en interaction par un champ de type Ising. Lorsque  $H_{int}$  n'est pas uniforme, l'ordre de retournement des nanofils est dicté par la distribution du champ d'interaction (par exemple vis-à-vis de leur position dans le réseau), ce qui engendre une variation de la susceptibilité durant le cycle d'hystérésis, d'où le fait que  $\rho_{FORC}$  ne soit pas constant le long de l'*IFD*. Cette signature est notable dans le sens où elle diffère de l'*IFD* globalement constante mesurée sur les réseaux synthétisés

dans l'anisole. Ceci présume que le champ d'interaction, plutôt homogène pour les échantillons issus des synthèses dans l'anisole, serait ici de caractère tout au moins partiellement inhomogène. A.R. Stancu et C-I. Dobrotă [112] montrent un exemple d'inhomogénéité de champ d'interaction du fait d'un champ d'interaction plus faible en périphérie du réseau, où le nombre de voisins est moindre, comparativement au centre. Ainsi, les nanofils se retournent successivement selon un ordre qui dépend de la distance qui les sépare du centre, zone où ont lieu les premiers retournements de part la forte amplitude du champ d'interaction. Ceci nous amène à se questionner sur le rôle des crevasses visibles sur les clichés *MEB* séparant des groupes de nanofils (Figure 4.88). Des effets de bords sur de tels groupes de nanofils pourraient engendrer une dispersion du champ d'interaction. Le fait que les échantillons synthétisés dans l'anisole ne sont pas ou peu sujets à l'apparition de ces crevasses supporterait cette hypothèse (Figure 4.88).

Le diagramme visible Figure 4.94 révèle plusieurs signatures inconnues en ce qui concerne la littérature des réseaux de nanofils : les distributions 1, 4 et 6. En tenant compte des raisonnements mis en place dans le chapitre II, des hypothèses sont émises ici et seront ensuite confrontées aux résultats de simulations micromagnétiques dans la partie suivante. La distribution 6, pour laquelle  $\rho_{FORC}$  est négatif, apparaît pour des champs de renversement positif compris dans l'intervalle  $158 \text{ mT} < \mu_0 H_r < 310 \text{ mT}$ . Pour ces mêmes  $H_r$  (encadrés par les pointillés blanc horizontal sur la Figure 4.94), lorsque  $H$  augmente, s'en suit une zone du diagramme où  $\rho_{FORC} \approx 0$  pour ensuite atteindre la distribution 1 où  $\rho_{FORC}$  est positif. Plusieurs auteurs [151]–[153], [158], [159], en particulier Davies *et al.* [159] et Navas *et al.* [151], observent une alternance similaire de distributions positive/négative à  $H_r$  constant dans des diagrammes FORC de couches minces CoCrPt à anisotropie perpendiculaire. A partir d'imagerie magnétique, Davies *et al.* (microscopie par rayons X en transmission) et Navas *et al.* (microscopie Kerr) interprètent ce type de distribution comme suit : (i) Avant  $H_r$ , il apparaît des domaines renversés *down*, domaines qui croissent en début de FORC par un effet d'avalanche sans nécessairement que le champ appliqué n'augmente significativement (effet de viscosité magnétique); l'aimantation chute en début de FORC et provoque la région  $\rho_{FORC}$  négatif. (ii) Durant la même FORC (identifiée par son champ de renversement  $H_r$ ), lorsque  $H$  augmente, la structure en domaine est stable, ce qui se traduit par une zone où  $\rho_{FORC}$  est nul. (iii) Le champ  $H$  approchant la saturation, ces domaines *down* disparaissent, l'aimantation augmente si bien que l'annihilation de ces domaines *down* provoque la région  $\rho_{FORC}$  positif. Cette interprétation des distributions 6 et 1 semblent prévaloir ici, avec la nucléation/annihilation de domaines de nanofils. Des images de ce type de configurations en domaines n'ont pas pu être obtenues malgré des mesures MFM à température ambiante, sous champ et à la rémanence, qui n'ont révélé aucun un contraste magnétique. La distribution 4 peut être interprétée comme la nucléation de domaines. En effet, aux champs de renversement correspondant à ces FORC, la configuration magnétique du réseau est proche de la saturation. Ainsi, au cours de la FORC, l'augmentation de  $H$  occasionne la nucléation de domaines. Cette nucléation ne peut se faire qu'en partant d'un état proche de la saturation, dans le cas contraire seule l'expansion des domaines déjà existants ne pourra avoir lieu.

Ce type de variation abrupte de l'aimantation observée lors des phénomènes de nucléation/propagation/annihilation de domaines est, à notre connaissance, pas reporté dans la littérature des réseaux de nanofils. Les réseaux nanofils couplés par un champ magnétostatique démagnétisant, et sujet à une frustration empêchant l'ordre antiferromagnétique (réseau triangulaire), peuvent s'organiser en domaines, le plus souvent en labyrinthes [63], [160], [161]. Cependant la nucléation de ces domaines n'engendre pas de variation abrupte de l'aimantation et leur apparition se fait à mesure des retournements successifs, localisés dans les zones où le champ d'interaction est le plus fort. Ceci est également observé dans les simulations d'hystérons en

interaction via un champ d'Ising et dans les simulations micromagnétiques de réseau de nanofils qui seront présentées dans la partie III de ce chapitre. Dans un réseau de nanofils, en présence d'interactions démagnétisantes, un événement de retournement d'un nanofil tant à stabiliser la configuration en diminuant localement l'amplitude du champ d'interaction et s'oppose, à priori, à une avalanche de retournements. De plus, la configuration antiferromagnétique favorisée par les interactions démagnétisantes force la réduction spatiale des domaines magnétiques puisqu'elle tend à positionner l'aimantation dans une configuration antiparallèle entre premiers voisins. De fait les domaines, d'aimantation parallèle, sont de faible dimension. L'apparition de ces domaines de nanofils nécessite donc un apport d'énergie extérieure pour apparaître, ce qui est réalisé par l'augmentation progressive du champ externe. Notons également que l'apparition de ces domaines labyrinthiques est délocalisée sur la totalité de l'échantillon. Dans les réseaux de nanofils couplés par un champ démagnétisant, il est donc possible de voir cette organisation de l'aimantation en domaines labyrinthiques comme une transition de phase de premier ordre. Lorsqu'une interaction magnétisante entre premiers voisins est ajoutée au sein de l'assemblée, la nucléation engendre une variation abrupte de l'aimantation. Ici un nanofil s'étant retourné est susceptible d'occasionner une cascade de retournements localisés sur ses proches, et ce sans apport d'énergie supplémentaire à celle nécessaire au retournement du premier nanofil. Ce type de nucléation peut donc être vu comme une transition de phase de second ordre de la même nature que celle observée dans les couches minces [162]. La topologie des domaines n'est pas nécessairement conservée en labyrinthe en présence d'une interaction d'échange. L'observation en microscopie ou la simulation de réseau de nanofils couplés par échange et par interactions dipolaires est nécessaire pour avancer dans l'argumentation sur l'analyse des microstructures que forme l'aimantation durant le retournement de l'assemblée. Dans le cas présent nous avons prolongé l'étude à l'aide de simulations micromagnétiques.

### III. Simulations micromagnétiques de FORC

Les simulations d'hystérons présentées au chapitre II se basent sur des approximations qu'il convient de relativiser lors de la comparaison des résultats avec des systèmes réels de réseaux de nanofils. Ainsi les nanofils sont approximés par des hystérons parfaitement carrés ce qui peut être différent dans le cas réel. Le renversement de l'aimantation est considéré abrupt et cohérent alors que des simulations micromagnétiques sur des nanofils individuels témoignent, suivant le diamètre, de renversements par nucléation/propagation de parois transverse ou vortex. Enfin les simulations hystérons ne permettent pas de rendre compte d'imperfections géométriques, particulièrement la présence d'un film magnétique à la base des nanofils induisant un contact entre voisins. La modélisation d'une assemblée de nano-aimants par une approche micromagnétique est donc pertinente puisque le micromagnétisme repose sur la minimisation de la fonctionnelle de l'énergie libre et prend en compte les quatre termes énergétiques suivants : l'énergie d'échange, d'anisotropie magnétocristalline, de Zeeman et dipolaire, dans l'approximation du milieu continu. La modélisation est un outil efficace pour rendre compte des non-linéarités des équations du micromagnétisme ainsi que de la localité du champ dipolaire. Le but de ces simulations est de mettre à l'épreuve les hypothèses formulées et d'identifier la signature d'un comportement de groupe d'une assemblée ultra dense de nanofils couplés par interactions magnétostatiques et éventuellement par échange. De plus, elles permettent l'extraction d'images des configurations de l'aimantation à différents points du cycle

d'hystérésis (nucléation, coercivité, approche de la saturation, champ d'annihilation de microstructures, etc).

## A. Système anisole

Ces simulations sont réalisées avec OOMMF (Oriented Object Micro-Magnetic Framework : décrit en Annexe 6) [42]. Les paramètres du réseau simulé s'approchent autant que faire se peut des caractéristiques mesurées pour les réseaux synthétisés dans l'anisole. La longueur est ici clairement réduite par rapport aux longueurs mesurées (350nm) par souci du temps de calcul.

- le réseau hexagonal comporte 430 nanofils,
- longueur d'un nanofil :  $L = 100 \text{ nm}$ ,
- diamètre d'un nanofil :  $D = 15 \text{ nm}$ ,
- pas du réseau :  $d' = 18 \text{ nm}$  distance bord à bord :  $d = 3 \text{ nm}$ ,
- densité surfacique ou taux de compacité :  $P = 0,63$ ,
- anisotropie magnétocristalline uniaxiale:  $K_{mc} = 5,2 \times 10^5 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3}$  parallèle à l'axe du fil,
- constante d'échange du cobalt massif :  $A = 30 \cdot 10^{-12} \text{ J/m}$ ,
- aimantation à saturation du cobalt massif :  $\mu_0 M_S = 1759 \text{ mT}$ ,
- dimension de l'espace simulé :  $272 \text{ nm} \times 316 \text{ nm} \times 120 \text{ nm}$
- l'espace est discrétisé en cellules parallélépipédiques de taille  $2 \text{ nm} \times 2 \text{ nm}$  pour une hauteur de  $5 \text{ nm}$ ,
- $T=0\text{K}$ ,
- le module PBC (periodary bound conditions) est utilisé afin d'apporter une correction au champ dipolaire permettant de simuler le champ dipolaire d'un réseau infini [62]. Les conditions aux limites périodiques reproduisent l'espace simulé 100 fois dans chaque direction du plan du réseau.
- Les intervalles  $\Delta H$  et  $\Delta H_r$  sont choisis de façon effectuer 90 FORC en conservant la condition  $\Delta H \leq \Delta H_r$  [84],
- une dispersion gaussienne sur la constante d'anisotropie magnétocristalline est introduite par un tirage gaussien effectué à l'aide d'un algorithme Box-Muller :  $\sigma_{K_{mc}} = 500 \cdot 10^2 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3}$  ce qui représente 9,6% de dispersion sur l'anisotropie magnétocristalline.

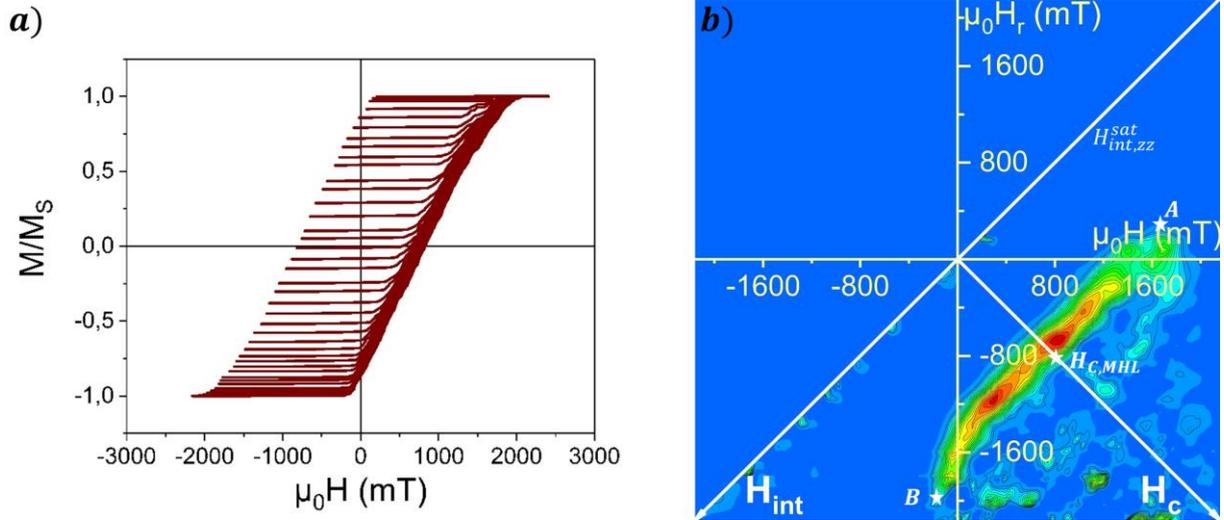


Figure 4.95 : a) jeu de courbes de renversement du 1<sup>er</sup> ordre d'un réseau hexagonal de 430 nanofils simulé sous OOMMF, dispersés en champ d'anisotropie magnétocristalline et couplés par interaction dipolaire uniquement. b) Diagramme FORC associé.

Peu d'études par simulations micromagnétiques de diagramme FORC sont répertoriées dans la littérature [79], [105], [146] et ce du fait du temps de calcul important associé. C'est pourquoi il convient de valider l'approche micromagnétique en retrouvant, dans les cycles et diagrammes FORC simulés, les principales lignes des modèles utilisés.

Le taux de compacité théorique de ce réseau hexagonal ( $d=3\text{nm}$ ,  $D=15\text{nm}$ ) est  $P_{théorique} = \frac{4\pi}{2\sqrt{3}} \cdot \frac{R^2}{(d+D)^2} = 0,63$ .

Dans ce type de réseau, l'égalité 4.92 permet de déterminer l'amplitude théorique du champ d'interaction à la saturation :  $|\mu_0 H_{int,zz,sat}^{théorique}| = -P_{théorique} \cdot \mu_0 M_S$ . Toujours d'après l'équation 4.92 et avec  $\mu_0 M_S = 1,759\text{ T}$  l'aimantation à saturation du cobalt, on trouve  $\mu_0 H_{int,zz,sat}^{théorique} = 1108\text{ mT}$ . Les données relevées sur le diagramme FORC (Figure 4.95.b) donnent les résultats suivants :  $\mu_0 H_{int,zz,sat}^{FORC} = 1096 \pm 16\text{ mT}$ , tandis que sur le cycle majeur (MHL) on relève les résultats suivants :  $\left(\frac{dM}{dH}\right)^{-1} = 0,55 \Rightarrow \mu_0 H_{int,zz,sat}^{MHL} = 967\text{ mT}$ , soit 12% d'écart avec la valeur théorique.

Le champ coercitif de l'assemblée est relevé au point B, qui représente la coercivité du cycle majeur, de coordonnées B:  $\left(H_{C,FORC}; H_{int,FORC} \frac{H_{C,max} - H_{C,min}}{2}\right)$ . On relève  $\mu_0 H_{C,FORC} = 856\text{ mT}$  à comparer avec  $\mu_0 H_{C,MHL} = 834\text{ mT}$ .

Les valeurs numériques issues du diagramme FORC présentent un bon accord avec celles extraites du cycle majeur. Les données extraites du diagramme FORC amènent à un champ d'interaction dont l'amplitude correspond aux propriétés géométriques et magnétiques du réseau. Cependant, les données extraites du cycle majeur sont relativement éloignées des caractéristiques structurales, or comme évoqué précédemment, il semblerait qu'en présence d'une distribution en champ de retournement les données issues du cycle majeur sont difficilement comparables avec les caractéristiques structurales.

La configuration magnétique à  $H_C$  visible Figure 4.96 montre une organisation en domaines labyrinthe, une configuration typique d'assemblées de nanofils électrodéposés dans des membranes poreuses (polycarbonate ou alumine) ainsi uniquement couplés par interaction dipolaire [160], [161],

[163]–[168]. La nucléation du renversement ne se fait que sur un nanofil proche du centre du réseau, endroit où le champ d'interaction est maximal et opposé à l'aimantation de chaque nanofil. A la saturation, seul un nanofil demeure dans une aimantation antiparallèle au reste de l'assemblée, localisé au centre du réseau, endroit où le champ d'interaction est maximal et contribue donc fortement à l'exaltation de sa coercivité.

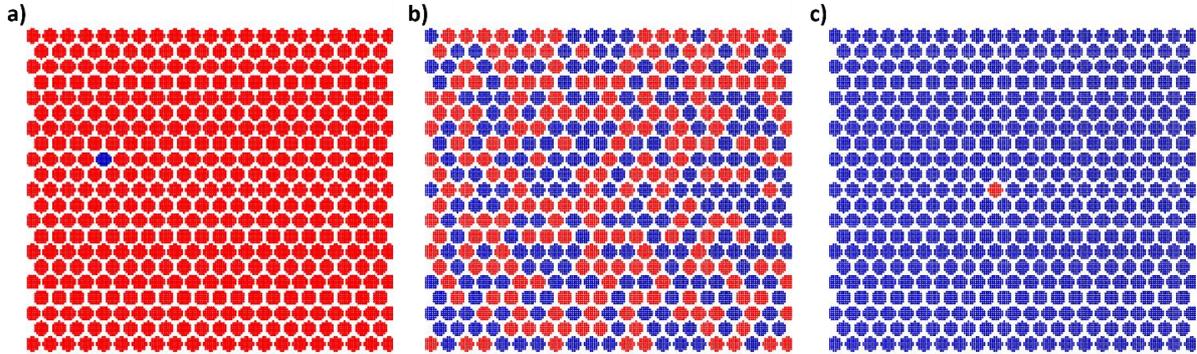


Figure 4.96 : simulation d'un réseau de nanofils  $d=3\text{nm}$ ,  $D=15\text{nm}$ ,  $L=100\text{nm}$ ,  $\sigma_{\text{ISFD}} = 5000 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3}$  a) vue planaire relevée à la hauteur  $z = L/2$  de la configuration à la nucléation : seul un fil s'est renversé, b) configuration de l'aimantation à la coercivité : formation de domaines en labyrinthe, c) configuration de l'aimantation à l'approche de la saturation : seul un nanofil demeure up au centre du réseau face à tous les autres fils down.

La dispersion en champ de retournement peut être estimée par plusieurs moyens : par un ajustement itératif gaussien du profil  $\rho_{\text{FORC}}(H_c)$ , qui d'après le chapitre 2 est une estimation peu précise (chapitre II, partie III,D), et surtout par la relation :  $\frac{H_{c,\text{MHL}} - H_{c,\text{min}}}{3}$  avec  $H_{c,\text{MHL}}$  relevé au point B et  $H_{c,\text{min}}$  au point A. La méthode par ajustement itératif du profil  $\rho_{\text{FORC}}(H_c)$  donne une dispersion  $\sigma_{\rho_{\text{FORC}}(H_c)} = 80 \text{ mT}$  soit une dispersion de 9.6%, alors que la seconde méthode donne une dispersion de 7.3%. La dispersion de 9.6% introduite dans la simulation est donc étonnamment très bien représentée par le profil le long de l'axe  $H_c$ . Il est à noter que la discrétisation de l'espace simulé en cellules parallélépipédiques introduit de fait quelques imprécisions quant au respect de la distance interfil  $d=3\text{nm}$  en tout point du réseau, écartant ainsi les résultats obtenus des résultats attendus.

La conclusion à partir d'une simulation seule reste difficile. Il est à envisager une amélioration de la mise en œuvre de ces simulations ainsi que d'autres simulations micromagnétiques de mesures FORC, et ainsi de pouvoir engager une étude paramétrique théorique permettant d'obtenir plus d'informations sur les effets du mode de retournement et sur la différence entre le champ coercitif relevé sur le diagramme et sur le cycle majeur, ce qui est inaccessible par des simulations d'hystérons. Le comportement microscopique peut être facilement analysé en imageant le retournement du réseau simulé. Il est ainsi possible de rattacher chaque signature lisible dans le diagramme FORC aux événements imagés durant le retournement.

## B. Système toluène

Comme dans les simulations précédentes, les paramètres du réseau simulé s'approchent autant que faire se peut des caractéristiques mesurées pour les réseaux synthétisés dans le toluène. Ici également, la longueur est clairement réduite par rapport aux longueurs mesurées (350nm) par souci du temps de calcul.

- longueur d'un nanofil :  $L = 100 \text{ nm}$ ,
- diamètre d'un nanofil :  $D = 6 \text{ nm}$ ,
- pas du réseau :  $9 \text{ nm}$  , distance bord à bord :  $d = 3 \text{ nm}$ ,
- densité surfacique ou taux de compacité :  $P = 0,40$ ,
- anisotropie magnétocristalline uniaxiale:  $K_{mc} = 5,2 \times 10^5 \text{ J.m}^{-3}$  parallèle à l'axe du fil,
- constante d'échange du cobalt massif :  $A = 30.10^{-12} \text{ J/m}$ ,
- aimantation à saturation du cobalt massif :  $\mu_0 M_S = 1759 \text{ mT}$ ,
- l'espace est discrétisé en cellules parallélépipédiques de taille  $1 \text{ nm} \times 1 \text{ nm}$  pour une hauteur de  $6 \text{ nm}$ .
- $T = 0 \text{ K}$ ,
- le module PBC (periodary bound conditions) est utilisé afin d'apporter une correction au champ dipolaire permettant de simuler le champ dipolaire d'un réseau infini [62]. Les conditions aux limites périodiques reproduisent l'espace simulé 100 fois dans chaque direction du plan du réseau.
- Les intervalles  $\Delta H$  et  $\Delta H_r$  sont choisis de façon effectuer 90 FORC en conservant la condition  $\Delta H \leq \Delta H_r$  [84]
- Le réseau hexagonal comporte 624 nanofils, soit un réseau de dimension  $220 \text{ nm} \times 218 \text{ nm} \times 120 \text{ nm}$ .

## 1. Structure des réseaux simulés.

Au vu de l'interprétation des diagrammes FORC des réseaux synthétisés dans le toluène, une interaction magnétisante, vectorisée par l'échange, entre nanofils pourrait être envisagée afin de rendre compte des mesures, particulièrement la nucléation/propagation/annihilation de domaines. Une interaction magnétisante, telle qu'une interaction d'échange entre nanofils, pourrait être vectorisée par un contact physique entre nanofils. Il semble peu probable que ce contact se fasse par les faces latérales : les nanofils sont enrobés de ligands qui les maintiennent hors contact. De plus, le contact par les extrémités inférieures est d'autant plus logique qu'il augmenterait la sensibilité aux effets de déplacement de parois de domaines dans le film sous-jacent aux nanofils. En effet nous avons montré lors du chapitre 1 que, pour un cylindre fini uniformément aimanté, la nucléation du retournement est localisée aux extrémités des nanofils [27], [49], [52]. D'autre part, lors d'observations *MET* d'échantillons synthétisés dans des conditions différentes de celles présentées dans cette thèse, un élargissement de diamètre des nanofils à leur base, au niveau du contact avec le substrat, a été détecté sur certains échantillons (Figure 4.97). Un tel élargissement forme alors un pseudo-film de *Co* à l'interface *Co/Pt*. Ainsi, dans le spectre de résonance ferromagnétique plusieurs contributions ont été détectées, avec parmi elles un faible signal pouvant s'apparenter à la résonance d'un film mince (informations supplémentaires de la référence [169]).

La Figure 4.97.a) présente des clichés *MET* d'échantillons sur lesquels des pieds coniques sont visibles. Les cônes sont d'une largeur à la base d'environ  $25 \text{ nm}$  et d'une hauteur de  $15 \text{ nm}$ , le diamètre des fils est d'environ  $7 \text{ nm}$ . Sur le cliché présenté en b) un film de  $20 \text{ nm}$  de hauteur est clairement détecté sous de réseau de nanofils exposants un diamètre d'une dizaine de  $\text{nm}$ . Bien que cela fût observé sur des échantillons synthétisés dans des conditions différentes de celles présentées dans cette thèse, et que les observations *MET* des échantillons présentés ici n'ont pas fait apparaître clairement de tels élargissements (Figure 3.64 et Figure 3.69), il n'est pas à exclure ici la présence de

pieds de fils formant un pseudo-film. Comme présentées dans le chapitre III, les observations MET à l'interface *Co/Pt* sont délicates du fait de la confusion du contraste, un contact entre fils ne peut y être complètement exclu.

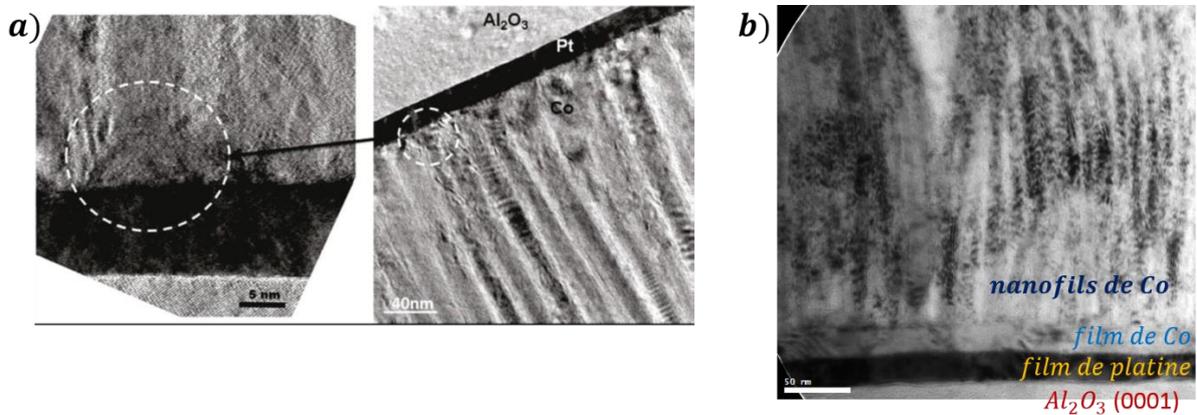


Figure 4.97 : a) Observation MET haute résolution en section transverse d'un réseau de nanofils, montrant l'apparition de « pieds » à l'interface *Co/Pt* ; synthèse avec rapport *Co/LA/HDA*=1/1,2/1,2,  $[Co]=2,1$  mM, dans le toluène à 100°C pendant 110h. b) Observation MET haute résolution en section transverse d'un réseau de nanofils, montrant l'apparition d'un film continu de cobalt à l'interface *Co/Pt*, les paramètres de cette synthèse sont : *Co/LA/HDA*=1/2/2,  $[Co]=15$ mM,  $T=150^{\circ}C$  pendant 17h30 dans l'anisole.

Afin de prendre en compte dans les simulations micromagnétiques de la présence d'un pseudo-film ou d'une couche continue de *Co* à la base des nanofils, trois systèmes illustrés ci-dessous ont donc été simulés (Figure 4.98). Le premier est un réseau idéal de nanofils (Figure 4.98.a), sans contact entre nanofils et donc uniquement couplés par interaction dipolaire. Le second système reproduit le même réseau de nanofils, mais tous en contact à leur base par un film mince de *Co* quasiment continu (Figure 4.98.b). En effet, chaque base de fil est un parallépipède : ces « pieds » de nanofils de 6nm de hauteur ne couvrent pas toute la surface sous le réseau et forment ainsi un film légèrement poreux de porosité  $\xi = 0,93$ , avec des pores de 4nm × 3nm. Le troisième système (Figure 4.98.c) représente le même réseau que le premier mais chaque fil possède une base de forme conique suffisamment évasée pour provoquer le contact entre voisins. Les dimensions des pieds parallépipédiques ont été fixées par une hauteur de 6nm et des côtés de 9nm et les pieds coniques ont par une hauteur de 12nm, et une base de 9nm de diamètre.

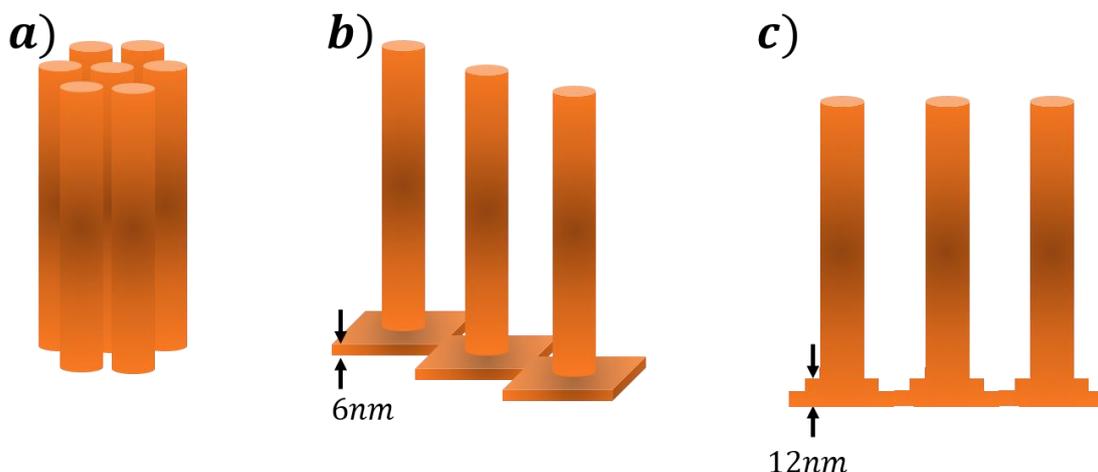


Figure 4.98 : illustration des trois types de réseaux simulés sous OOMMF : a) réseau de nanofils couplés uniquement par interaction magnétostatique, b) réseau de nanofils en contact via un film poreux, c) réseau de nanofils en contact via un pseudo film composé par les pieds conique des nanofils.

## 2. Diagramme FORC d'un réseau de nanofils dispersés en champ d'anisotropie et couplés uniquement par un champ magnétostatique

Le réseau simulé ici est le système représenté Figure 4.98.a. Le taux de compacité théorique de ce réseau hexagonal ( $d=3\text{nm}$  ,  $D=6\text{nm}$ ) est  $P_{théorique} = \frac{4\pi}{2\sqrt{3}} \cdot \frac{R^2}{(d+D)^2} = 0,40$ . La dispersion en champ d'anisotropie est introduite par un tirage gaussien (algorithme de Box-Muller), sur la définition de la constante d'anisotropie magnétocristalline attribuée à chaque nanofil. Elle est de  $\frac{\sigma_{ISFD}}{K_{mc}} = 9,6\%$  pour un écart type de  $\sigma_{ISFD} = 5 \cdot 10^4 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3}$  avec  $K_{mc} = 5,20 \cdot 10^5 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3}$ .

Le diagramme FORC du réseau ainsi simulé et représenté Figure 4.99 présente une allure différente du diagramme mesuré (Figure 4.94) : les différentes distributions identifiées dans la mesure sont absentes ici. Ce diagramme FORC simulé montre bien le comportement magnétique d'un réseau de nanofils couplés par un champ magnétostatique comme montré au chapitre II et tel qu'obtenu dans la simulation précédente d'un réseau de nanofils de diamètre plus larges (15nm) uniquement couplés par interaction dipolaire.

Quantitativement, dans ce type de réseau, l'égalité 4.92 établie en champ moyen permet d'estimer l'amplitude théorique du champ d'interaction à la saturation :  $\mu_0 H_{int,zz,sat}^{théorique} = -P_{théorique} \cdot \mu_0 M_S$ . Ainsi avec  $\mu_0 M_S = 1759 \text{ mT}$  l'aimantation à saturation du cobalt, on trouve  $\mu_0 H_{int,zz,sat}^{théorique} = 0,40 \times 1759 = 703 \text{ mT}$ . Les données relevées sur le diagramme FORC, Figure 4.99, donnent les résultats suivants :  $\mu_0 H_{int,zz,sat}^{FORC} = 707 \pm 13 \text{ mT}$ , tandis que sur le cycle majeur on relève les résultats suivants :  $\left(\frac{dM}{dH}\right)^{-1} = 0,407 \Rightarrow \mu_0 H_{int,zz,sat}^{MHL} = 700 \text{ mT}$ . Cette étude montre donc que l'égalité 4.92 est respectée:  $\left(\frac{dM}{dH}\right)^{-1} \Big|_{H_c} = (\chi)_{H_c}^{-1} = P = N_{int,zz} = \frac{H_{int,zz,sat}^{FORC}}{M_S}$ .

Le champ coercitif de l'assemblée est relevé au point B de coordonnées  $\left(H_{c,FORC}; H_{int,FORC} \frac{H_{c,max}-H_{c,min}}{2}\right)$  ;  $\mu_0 H_{c,FORC} = 1104 \text{ mT}$  à comparer à  $\mu_0 H_{c,MHL} = 1133 \text{ mT}$ . Ainsi, les valeurs numériques issues du diagramme FORC sont en bon accord avec celles extraites du cycle majeur. Il est à noter que la discrétisation de l'espace simulé en cellules parallélépipédiques introduit une erreur inévitable de fait quelques imprécisions quant au respect de la distance interfil  $d=3\text{nm}$  en tout point du réseau.

La dispersion en champ de retournement sondée par l'ajustement itératif gaussien du profil le long de l'axe  $H_c$  :  $\rho_{FORC}(H_c)$  donne  $\sigma_{\rho_{FORC}(H_c)} = 62 \text{ mT}$  ce qui nous amène une dispersion relative de 5,5%. A l'aide des coordonnées des points A et B on trouve alors  $\frac{H_{c,FORC}-H_{c,min}}{3} = 60,6 \text{ mT}$ , et donc une dispersion relative de 5,3%. Ici ces deux méthodes donnent une dispersion identique mais relativement éloignée de la distribution intrinsèque de 9,6%.

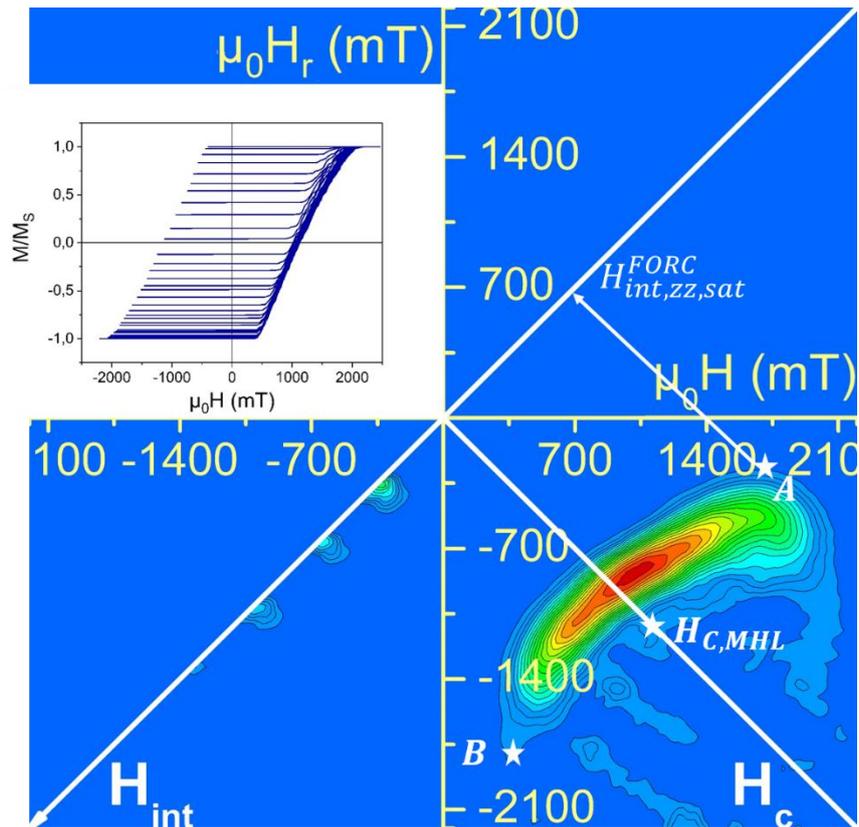


Figure 4.99 : Diagramme FORC issu d'un jeu de courbes de renversement du 1<sup>er</sup> ordre d'une assemblée de nanofils simulée sous OOMMF, dispersés en champ d'anisotropie magnétocristalline et couplés par interaction dipolaire seulement.

Sur le diagramme FORC, la nucléation représentée par le point A n'est pas un évènement qui implique une forte variation de l'aimantation. L'observation de la configuration magnétique du réseau à la nucléation du renversement (non présentée ici) montre que seul un nanofil a vu son aimantation renversée, comme dans la simulation présentée pour rendre compte du système anisole (Figure 4.96). La Figure 4.100 montre que le mode de retournement intrafil est un renversement par nucléation d'une paroi transverse aux extrémités (une ou les deux) d'un nanofil et propagation de celle-ci selon l'axe du nanofil, conformément au retournement d'un nanofil unique d'un tel diamètre (Eq. 1.34). Cette image indique également que des nanofils voisins peuvent se retourner simultanément, formant ainsi des domaines très limités.

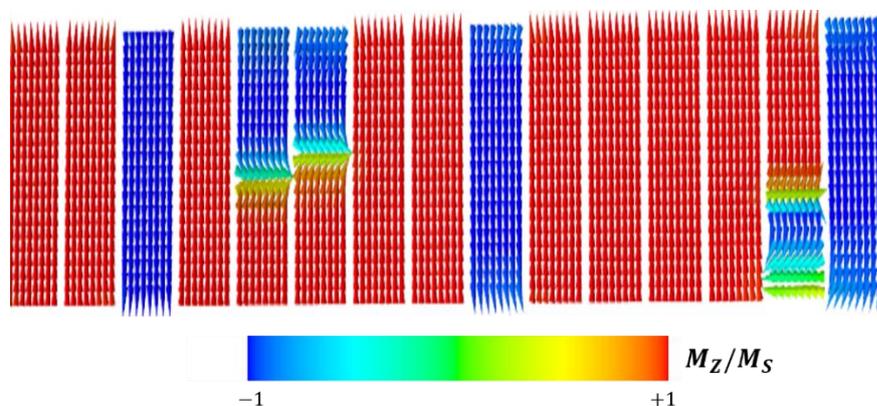


Figure 4.100 : section transverse de l'aimantation simulée dans un réseau de nanofils capturée lors du retournement de l'aimantation de nanofils qui se révèle être un retournement par nucléation/propagation d'une ou deux paroi(s) transverse(s).

La configuration magnétique du réseau à la coercivité est également une donnée importante permettant de se représenter l'influence des interactions dominantes sur les microstructures que forme l'aimantation. Comme pour les simulations du système anisole, la Figure 4.101 révèle une structure complexe qui semble s'approcher d'une organisation en domaines labyrinthe. Ce type de configuration en labyrinthe est par ailleurs identifié sur les configurations issues des simulations hystérons (Figure 4.101.b). Ceci montre ainsi que l'émergence de microstructures de l'aimantation peut être obtenue sans manipuler la fonctionnelle de l'énergie libre. Dans le cas présent cette topologie de domaines émerge du calcul de la géométrie du champ d'interaction ainsi que de l'ISFD puisque ce sont les deux seuls éléments contenus dans l'algorithme dictant la condition de retournement de chaque hystéron après un pas de champ externe.

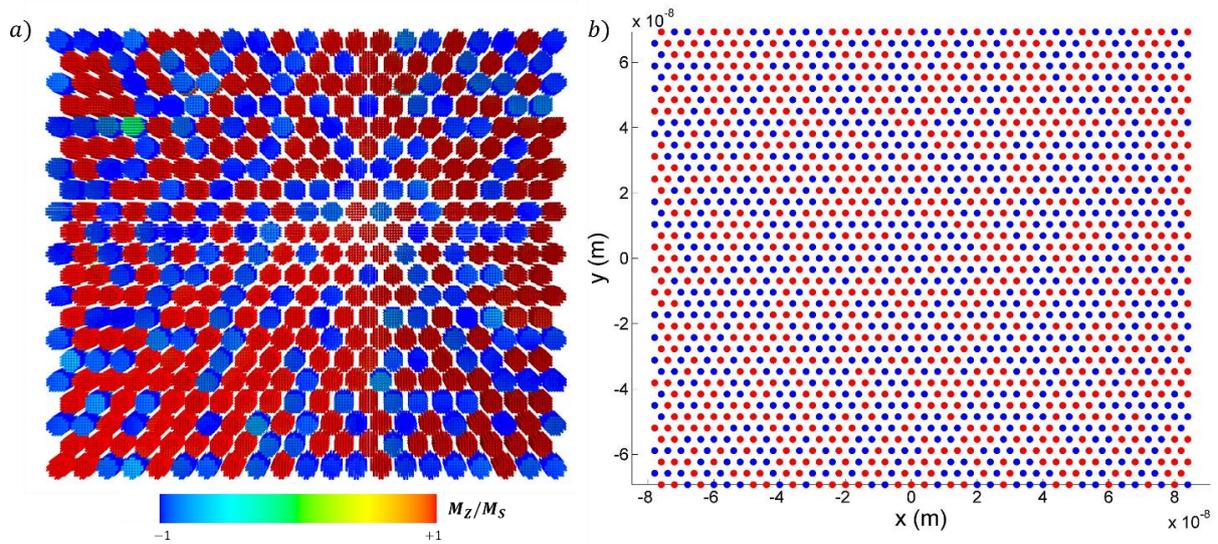


Figure 4.101 : vue plane de la configuration magnétique à  $H_C$  d'un réseau de nanofils couplés uniquement par interaction dipolaire ( $z=L$ ). a) issue d'une simulation micromagnétique effectuée avec OOMMF b) issue d'une simulation hystérons en interaction avec via un champ d'Ising avec  $d = 3\text{nm}$ ,  $D = 7\text{nm}$ ,  $L = 100\text{nm}$ ,  $\sigma_{\text{ISFD}} = 50\text{mT}$ ,  $N = 1681$  hystérons,  $\mu_0 H_{\text{SW}} = 300\text{mT}$ .

En conclusion, ce diagramme FORC montre bien la signature d'une assemblée de nanofils uniquement couplés par un champ magnétostatique qui ne rend pas compte des diagrammes mesurés pour les échantillons synthétisés dans le toluène. L'extraction de la largeur de la distribution en champ de retournement est peu précise. L'introduction d'un contact entre nanofils est décrite par la suite afin d'approcher la signature mesurée.

### 3. Récapitulatif des simulations des réseaux de nanofils couplé par un champ dipolaire

Le tableau comparatif dressé ci-dessous référence les grandeurs qui peuvent être extraites des diagrammes FORC et des cycles  $M(H)$ . Si on s'intéresse aux simulations uniquement dans un premier temps, la correspondance entre les valeurs extraites des diagrammes FORC et des cycles majeurs est correcte, et ce aussi bien pour le système anisole que pour le système toluène. La distribution en champ de retournement, qui ici n'est extraite que du diagramme FORC, est relativement bien

déterminée pour les simulations du système anisole, cependant elle l'est moins pour le système toluène. Les investigations n'ont pas permis d'en rendre compte, aussi d'autres simulations doivent être effectuées afin d'identifier la cause de ce désaccord. En outre, une différence de mode de retournement a été mise en lumière précédemment entre les fils isolés de 6 et 15 nm de diamètre pouvant éventuellement être à l'origine de ce désaccord.

Concernant le système toluène, la comparaison entre les mesures et les simulations présente un fort désaccord au niveau du champ coercitif avec une valeur issue des simulations 3,68 fois supérieure à la valeur simulée. Du reste, malgré la ressemblance des pentes entre le cycle simulé et le cycle mesuré, leur facteur de compacité diffère de 15%, ce qui est non négligeable, et invalide, là aussi, la ressemblance entre le système simulé et le système mesuré. Ce désaccord de taux de compacité entre les simulations et les mesures structurales n'est pas souhaitable malgré le choix de cette valeur dans les simulations. Son origine vient du fait que les simulations sont antérieures au croisement entre les mesures SAXS (pas du réseau) et les caractérisations HRTEM (mesure des diamètres). Il est à noter que la valeur du champ d'interaction relevée à la saturation est plus faible pour les mesures que les simulations, malgré un taux de compacité plus fort dans le cas des mesures, ce qui est également contradictoire. Concernant la dispersion en champ de retournement, de nouvelles simulations doivent être réalisées pour conclure sur ce point. En conclusion, ces comparaisons entre simulations et mesures indique bien que le système simulé ne représente pas le système mesuré.

La corrélation simulations/mesures du système anisole est correcte pour les pentes des cycles  $M(H)$ , ce qui est attendu au regard des taux de compacité similaires. Toutefois, les diagrammes FORC ne sont pas tout à fait en accord laissant supposer une potentielle différence dans le mode de retournement. En effet les clichés MET (Figure 3.63 et Figure 3.64) affichent un réseau cristallin fauté et pollué par des impuretés magnétiques (oursins notamment) qui ne sont pas prises en compte dans les simulations, jouant potentiellement sur la localisation de la nucléation et le mode de retournement. Ceci pourrait également rendre compte des forts écarts constatés entre les valeurs de champ coercitif simulés et mesurés ainsi que de la dispersion en champ de retournement très élevée. Il est à noter que les deux méthodes d'extraction de la largeur de dispersion donnent des résultats très éloignés. Or, il est fort peu probable que cette dispersion soit faible au vu des clichés MET, aussi prendrons-nous la valeur la plus élevée comme la plus plausible. En outre des simulations supplémentaires sont nécessaires pour rendre compte de ces valeurs de dispersion en champ de retournement. En conclusion, ces systèmes sont assez bien représentés en ce qui concerne les interactions, cependant un affinement de la structure du réseau simulé est souhaitable pour rendre compte du reste des grandeurs magnétiques.

	Système anisole		Système toluène	
	simulation	Mesure 300K	simulation	Mesure 300K Echantillon A
$\mu_0 H_{C,FORC}$	856 mT	353 mT	1104 mT	300 mT
$\mu_0 H_{C,MHL}$	834 mT	282 mT	1133 mT	300 mT
$\mu_0 H_{int,zz,sat}^{théorique}$ $= -P_{théorique} \cdot \mu_0 M_S$	1090 mT	1090 mT	709 mT	809 mT
$\mu_0 H_{int,zz,sat}^{FORC}$	1065 mT	949 mT	703 mT	650 mT
$\left(\frac{dM}{dH}\right)^{-1} \Big _{H_c}$	0,55	0,54	0,40	0,38
$\frac{H_{int,zz,sat}^{FORC}}{M_S}$	0,62	0,53	0,40	0,37
taux de compacité : $P$	0,63	0,62	0,40	0,46
Dispersion introduite dans les simulations en %	9,6%		9,6%	
$\frac{H_{C,FORC} - H_{C,min}}{3 H_{C,FORC}}$	7,3%	46,1%	5,3%	33,0%
$\frac{\sigma_{\rho_{FORC}(H_c)}}{H_{C,FORC}}$	9,6%	2,8 %	5,5%	26,0%

#### 4. Diagramme FORC d'un réseau homogène de nanofils, couplés par interactions dipolaire et d'échange vectorisée par un pseudo-film sous-jacent aux nanofils.

La structure du réseau simulé ici est illustrée Figure 4.98.b). Les courbes FORC ainsi que le diagramme FORC déduit sont présentés Figure 4.102.a) et b). Les cycles mineurs mettent en évidence l'influence du film poreux. Le diagramme FORC montre que l'ajout d'un film sous-jacent au réseau joue un rôle important dans le comportement collectif, et en particulier sur la nucléation et la saturation, mais également sur la valeur du champ coercitif.

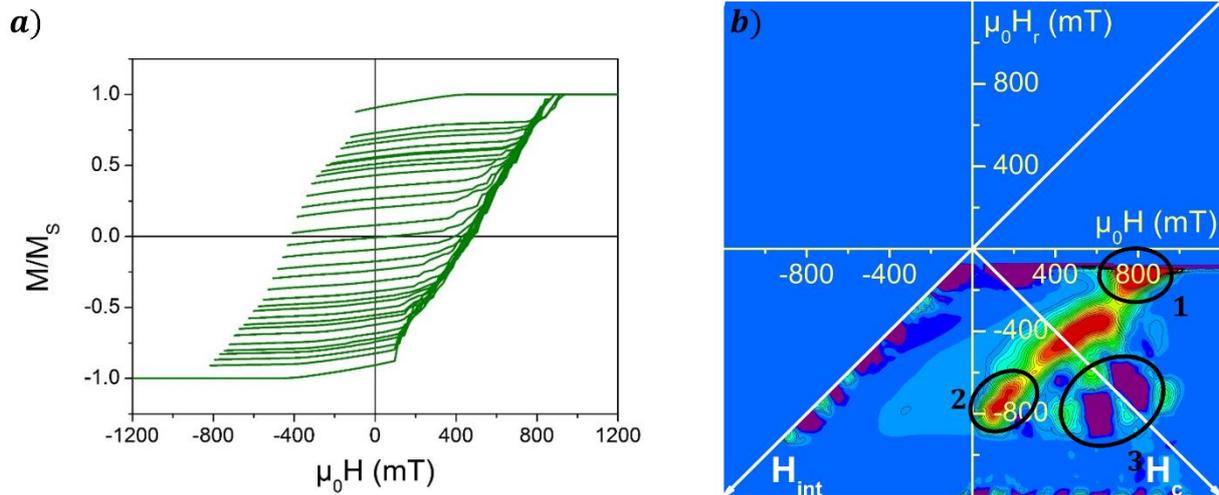


Figure 4.102 : Jeu de courbes de renversement de premier ordre (en insert) et diagramme FORC associé pour un réseau de nanofils simulés avec OOMMF, couplés par interaction dipolaire et par une interaction d'échange vectorisée par un film mince poreux sous-jacent aux nanofils.

La configuration magnétique à la nucléation relevée au point rouge de la Figure 4.105.b est présentée Figure 4.103. a) et b). Il apparaît clairement un phénomène de nucléation d'un domaine de nanofils comprenant un grand nombre de nanofils (Figure 4.103.a), d'une taille bien plus importante que les domaines labyrinthe observés précédemment dans le cas des nanofils couplés uniquement par interaction dipolaire. Cette formation de domaines est présente aussi bien dans les simulations hystérons (Figure 4.103.c) que dans les simulations micromagnétiques. Les simulations hystérons sont effectuées avec une assemblée de 1681 hystérons, dispersés en champ de retournement ( $\sigma_{ISFD} = 50 \text{ mT}$ ), en interaction via un champ d'Ising magnétisant, limité aux voisins distants de quatre distances interfil ou moins. Ce champ d'Ising magnétisant est combiné à un champ moyen démagnétisant avec  $\alpha_m = -200 \text{ mT}$ . Concernant les simulations micromagnétiques, le domaine est clairement localisé dans le film mince également (Figure 4.103.b). Le pic intense proche de la nucléation, entouré et numéroté 1 sur le diagramme FORC, peut donc être associé à cette nucléation de domaines de fils renversés. Ce changement de topologie des domaines provient directement de l'interaction d'échange entre nanofils vectorisée par le film. La distribution 2 correspondrait alors à la nucléation de ce type de domaines en partant d'un état quasiment saturé négativement.

Il est noté que la nucléation est localisée sur les bords du réseau provenant du fait que le module de conditions aux bords périodiques disponible sur OOMMF ne corrige que les interactions dipolaires longues portées. Ce module est conçu pour rendre compte des interactions longues portées, aussi une singularité d'échange est localisée sur la périphérie du film poreux, favorisant la nucléation aux extrémités. La situation est similaire dans les simulations hystérons : les hystérons localisés en

périphérie du réseau ont des lacunes dans leur nombre de proches voisins diminuant donc l'interaction magnétisante, ce qui favorise la nucléation sur les bords du réseau.

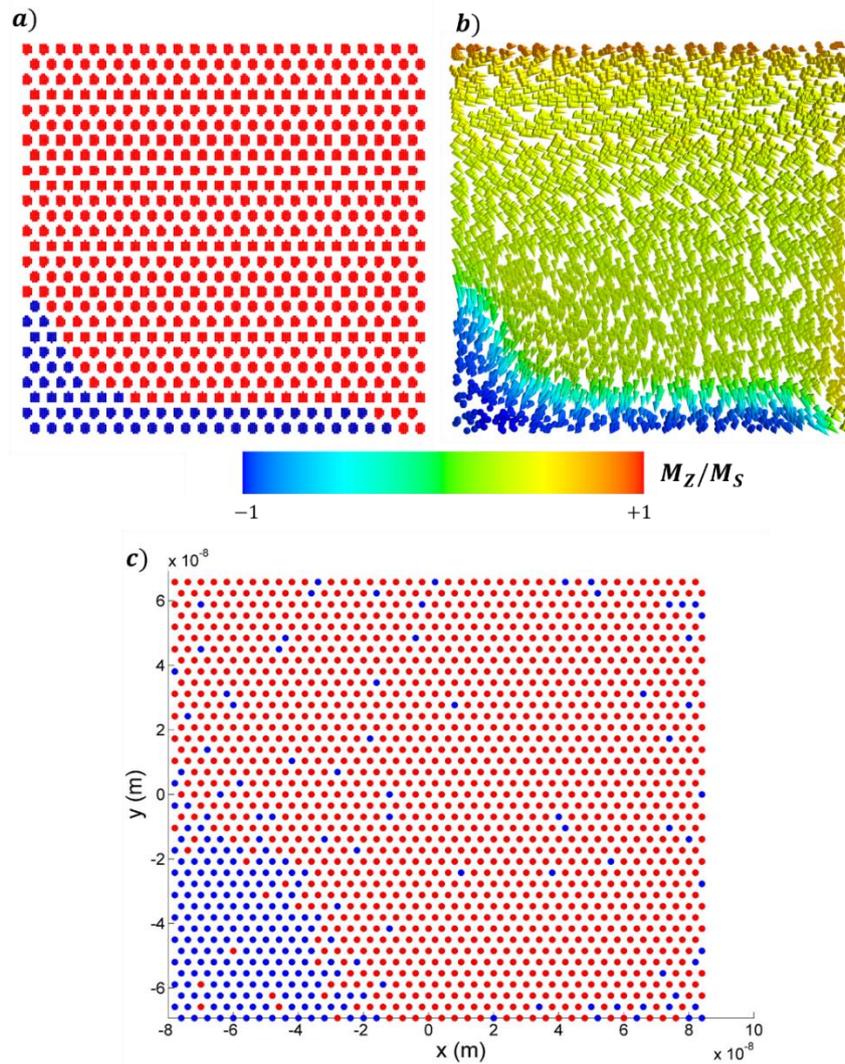


Figure 4.103 : a) vue plane de la configuration de l'aimantation des nanofils simulés à la nucléation ( $z = L/2$ ). b) configuration de l'aimantation du film mince simulé sous-jacent aux nanofils, à la nucléation. c) configuration prise à la nucléation lors d'une simulation hystérons en interaction via un champ d'Ising magnétisant entre voisins proches de quatre distances interfil ou moins, combiné à un champ moyen démagnétisant avec  $\alpha_m = -200 \text{ mT}$ ,  $d = 3 \text{ nm}$ ,  $D = 7 \text{ nm}$ ,  $L = 100 \text{ nm}$ ,  $\sigma_{iSFD} = 50 \text{ mT}$ ,  $N = 1681$  hystérons,  $\mu_0 H_{SW} = 300 \text{ mT}$ .

La Figure 4.104 expose les configurations magnétiques relevées proches de du champ coercitif (point vert Figure 4.105.b). Cette configuration révèle des domaines de grande taille, le retournement de l'aimantation s'effectue de proche en proche du fait de l'interaction d'échange vectorisée par le film poreux dans le cas des simulations micromagnétiques, et du fait du couplage magnétisant entre proches voisins dans la simulation d'hystérons. La paroi de domaine contenue dans le film mince, relevée le long de la flèche noire visible en c), est une paroi de Néel comme en attestent les profils d'aimantation présentés en b). L'image c) montre que ceci est vrai sur toute sa longueur. Les moments magnétiques de mêmes coordonnées  $(x, y)$  sont colinéaires introduisant une continuité de l'aimantation entre le film et les nanofils. Il est cependant difficile de dire si le déplacement de la paroi engendre le retournement des nanofils ou si le retournement des nanofils engendre le déplacement de la paroi. Les lacunes (carrés blancs) contenues dans le film sont les pores. L'image d) illustre la différence entre les simulations micromagnétiques et les simulations hystérons : dans les simulations

hystérons quelques « nanofils » sont antiparallèles dans un domaine, ce qui semble peu probable dans la réalité du fait de l'interaction d'échange.

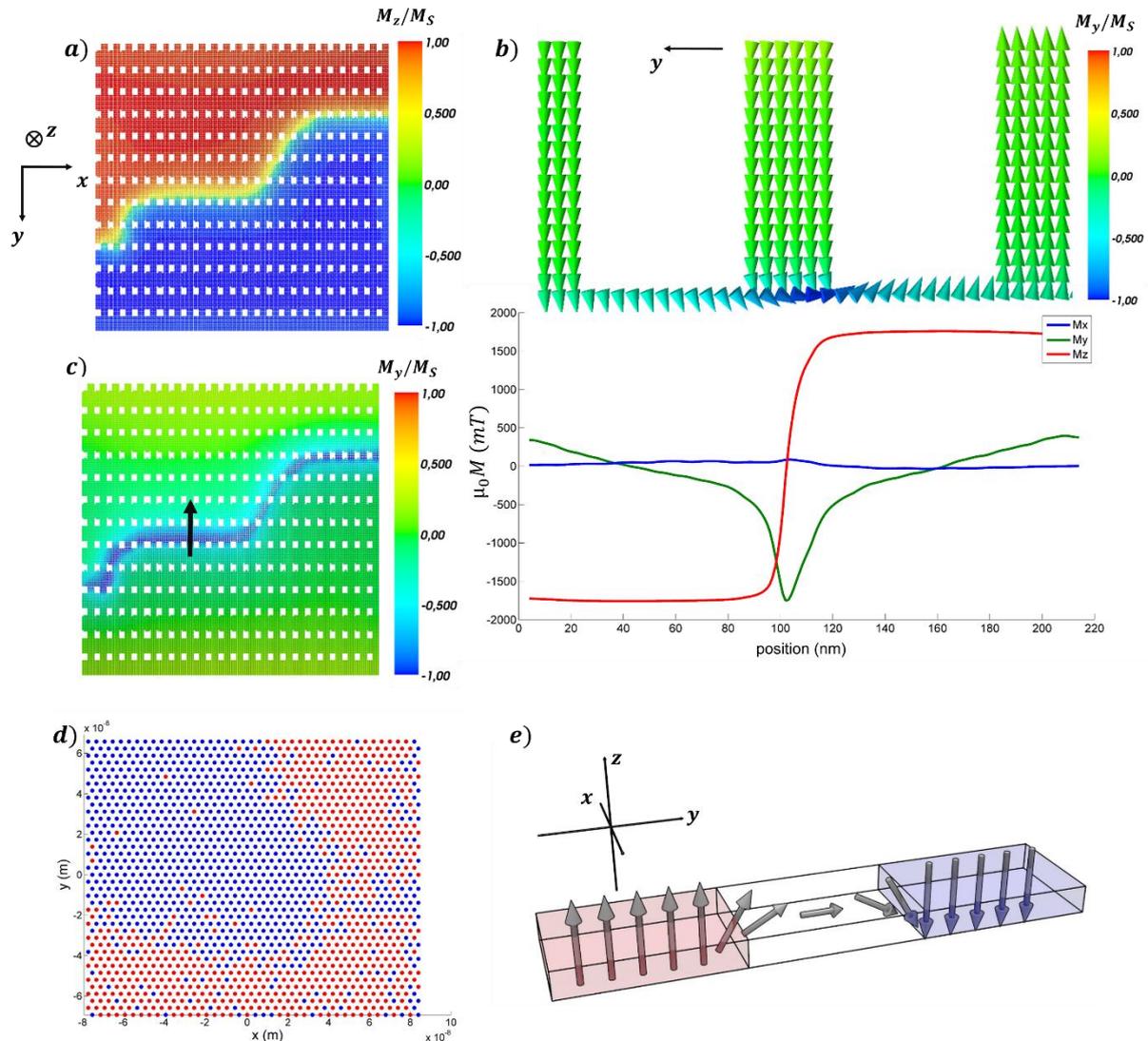


Figure 4.104 : a) et c) vue plane du film poreux, prise à une hauteur  $z = 15\text{nm}$ , proche du champ coercitif (point vert sur la Figure 4.105). La flèche noire en c) correspond à la position où est relevé le profil, l'échelle de couleur est fonction de l'angle entre les moments et la direction  $Oz$  pour a) et  $Oy$  pour c). b) coupe perpendiculaire à la direction  $Ox$  et profil de la paroi de domaine de type Néel contenue dans le film poreux. d) configuration prise au champ coercitif lors d'une simulation hystérons en interaction via un champ d'Ising magnétisant entre voisins proche de quatre distances interfil ou moins, combiné à un champ moyen démagnétisant avec  $d = 3\text{nm}$ ,  $D = 7\text{nm}$ ,  $L = 100\text{nm}$ ,  $\sigma_{iSFD} = 50\text{mT}$ ,  $N = 1681$  hystérons,  $\mu_0 H_{SW} = 300\text{mT}$ . e) illustration d'une paroi de Néel.

La Figure 4.105.a présente des configurations magnétiques issues des simulations micromagnétiques uniquement. On peut y voir la configuration de l'aimantation du film mince poreux sous-jacent aux nanofils à l'approche de la saturation négative (point violet sur la Figure 4.105.b). Cette configuration révèle un domaine de forme cylindrique correspondant à ce qui est nommé dans la littérature comme un skyrmion [46], [170]–[173]. C. Kooy et U. Enz [174] montrent que dans les couches minces à anisotropie perpendiculaire, à l'approche de la saturation, la distance entre deux domaines non renversés augmente considérablement jusqu'à former des structures cylindriques, connues dans la littérature comme des bulles magnétiques [175], [176]. Ces domaines sont plus stables que les domaines formant des labyrinthes, par conséquent, les bulles ont un champ de saturation plus élevé. Lorsque le champ externe augmente, leur diamètre diminue jusqu'à les faire disparaître

brutalement à un champ critique appelé le champ d'annihilation. Les simulations présentées ici révèlent l'apparition de ce type de domaines qui suit la description donnée par C. Kooy et U. Enz. Les investigations menées depuis sur les bulles magnétiques ont montré qu'elles peuvent prendre différentes configurations. De par sa topologie, l'objet présenté ici est classifié parmi les skyrmions [46]. Sa dimension, d'environ  $50\text{nm}$ , est de l'ordre de grandeur des skyrmions observés ou simulés sous champ externe non nul. Dans les simulations étudiées ici, le skyrmion est localisé dans la couche mince ce qui permet d'envisager un déplacement de cette structure au sein du film poreux, contrairement aux cas pour lesquels les skyrmions sont confinés [177]–[179]. Les simulations présentées ne contiennent pas de terme relatif à l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya, souvent nécessaire pour stabiliser un skyrmion dans un film mince [180], [181]. Cette interaction qui, d'un point de vue topologique, tend à faire varier l'angle entre moments magnétiques voisins, est remplacé par le réseau de nanofils au-dessus du film mince et sa fonction est assurée par la continuité de l'interaction d'échange et de l'interaction dipolaire entre le film mince et les nanofils forçant les moments du film mince à se positionner hors plan. Il est à noter que ce skyrmion est un mélange de type Néel et de type Bloch. L'apparition puis annihilation des domaines circulaires à l'approche de la saturation concerne les FORC identifiées par leur champ de renversement surlignées en rouge visible Figure 4.105.b. Dans ces FORC, le skyrmion apparu avant  $H_r$  est annihilé durant la FORC tandis que les renversements irréversibles du réseau apparaissent. A l'approche de la saturation positive, un skyrmion apparait en tant que domaine persistant.

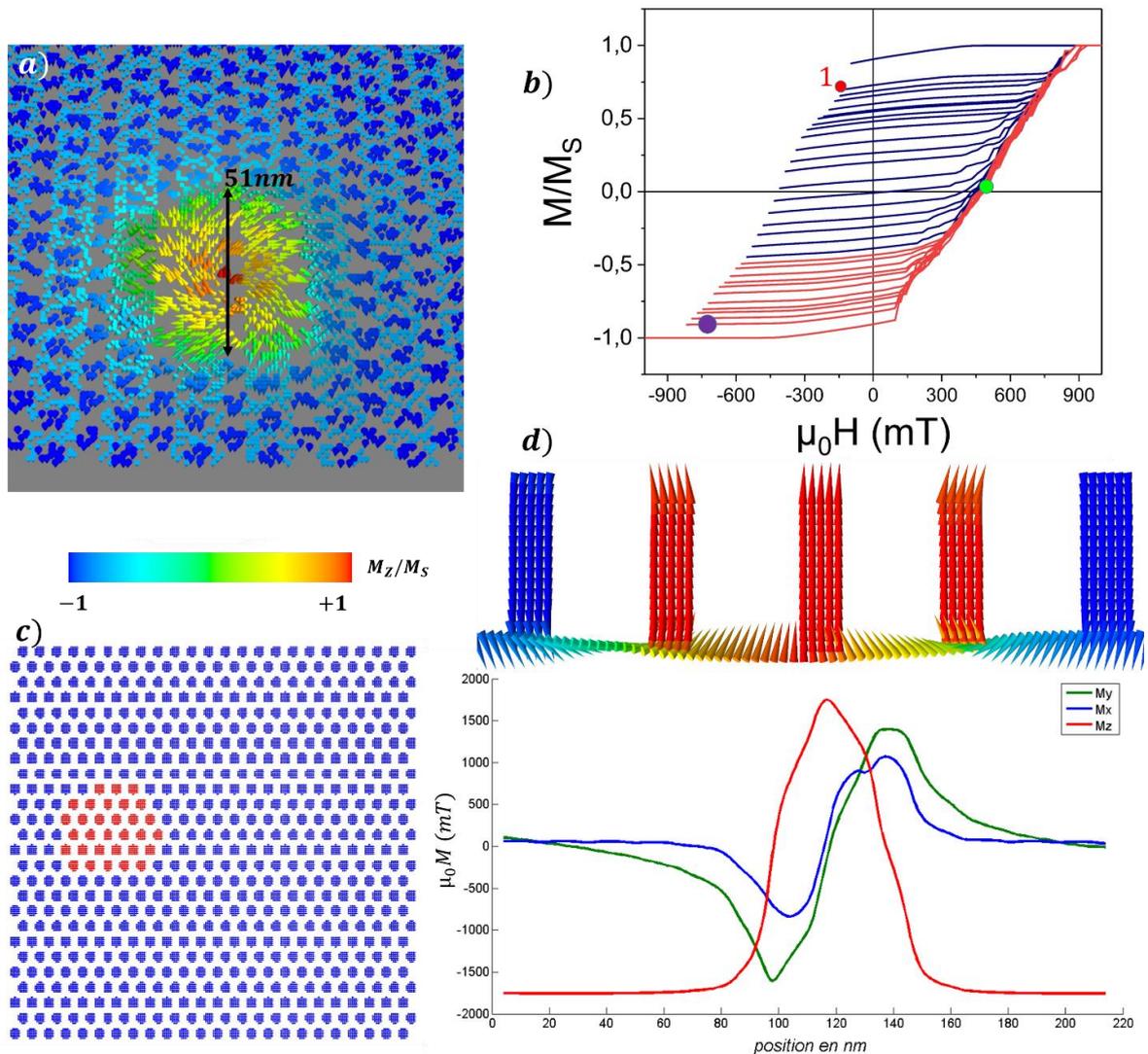


Figure 4.105 : a) et c) image représentant la configuration magnétique à l'approche de la saturation, ici négative, lors d'une simulation d'un réseau de 624 nanofils reliés par un film poreux sous-jacent ; a) dans le film mince sous-jacent aux nanofils, et c) dans le réseau de nanofils à la hauteur  $z = L/2$ . b) courbes FORC simulées, le point violet sur la FORC rouge indique d'où sont extraites les images a), c) et d). d) configuration magnétique en coupe transverse du réseau au niveau du skyrmion visible en a) et profil effectué le long de la flèche noire en a).

Cette étude est explicite quant à la modification de la topologie des domaines de nanofils et de la nucléation du renversement en présence d'une interaction magnétisante ou non entre nanofils voisins. En présence d'échange dans les simulations, la nucléation est un phénomène critique de second ordre [162] similaire au phénomène de nucléation dans les couches minces : elle est localisée et n'a pas besoin d'un grand apport d'énergie pour avoir lieu. Ce comportement, similaire à la mesure à 300K présentée Figure 4.94, en ce qui concerne la nucléation et la saturation (distribution 1 et 2 Figure 4.102 et distribution 1 et 4 Figure 4.94), semble venir d'une interaction magnétisante entre premiers voisins. Cependant, les parties négatives rectangulaires à fort champ coercitif visibles sur le diagramme issu des simulations ne sont pas présentes sur le diagramme Figure 4.94. Enfin, la distribution 3 à faible champ observée sur le diagramme FORC expérimental n'est pas présente ici.

5. Diagramme FORC d'un réseau de nanofils non dispersés couplés par interaction dipolaire et interaction d'échange, vectorisée par un pseudo-film formé par des pieds coniques de nanofils.

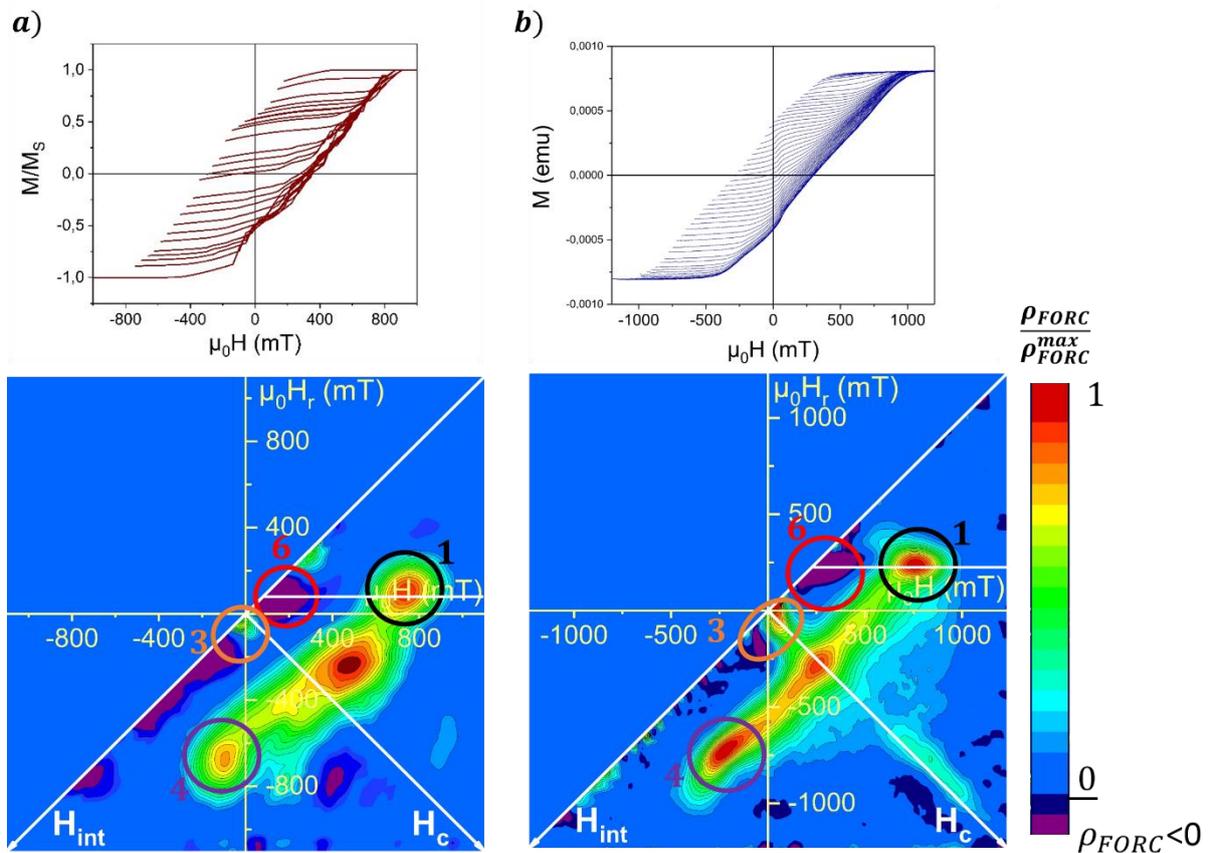


Figure 4.106 : a) courbes FORC et diagramme FORC issus d'une simulation de 624 nanofils couplés par interaction dipolaire et par échange via les pieds coniques des nanofils. b) mesure FORC à 300K et diagramme FORC associé. Les distributions entourées représentent les principales signatures analogues dans les deux cas, celles portant un numéro sont discutées dans la suite.

La géométrie du système simulé est celle incluant un pied conique à chaque nanofil représentée Figure 4.98.c. Le diagramme FORC simulé d'une telle assemblée est présenté Figure 4.106 et comparé au diagramme expérimental mesuré sur un échantillon synthétisé dans le toluène. Les similitudes discutées par la suite sont numérotées en respectant la notation utilisée Figure 4.94.

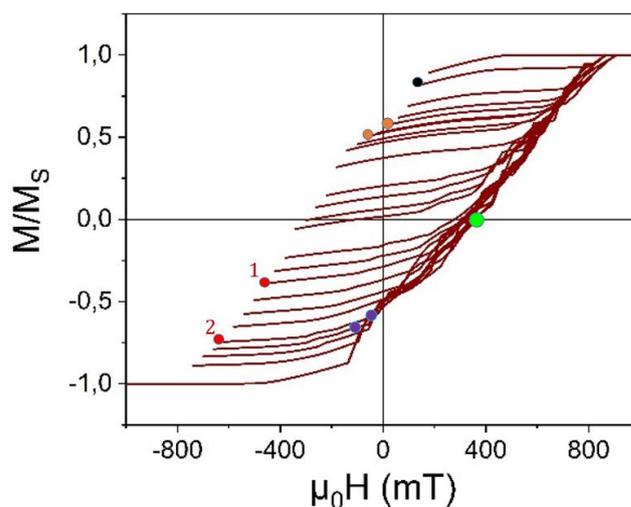


Figure 4.107 : courbes FORC issue d'une simulation de 624 nanofils couplés par interaction dipolaire et par échange via les pieds coniques des nanofils. Chaque point coloré correspond à une configuration de l'aimantation relevée et présentée par la suite : noir → Figure 4.108 (distribution 1), vert → Figure 4.110 (coercitif), orange → Figure 4.111 (distribution 3), rouge et violet → Figure 4.112 (distribution 4).

La Figure 4.108 illustre la configuration de l'aimantation à la nucléation (relevée au point noir Figure 4.107). La distribution 1 représente l'annihilation du domaine *down* observé sur la Figure 4.108. En effet, la nucléation puis annihilation d'un tel domaine est représentée dans le diagramme par la zone centrée sur la ligne horizontale blanche passant par les distributions 6 et 1. Cette zone correspond aux valeurs de  $H_r$  où apparaît la nucléation de domaines de nanofils *down*, et ce juste avant  $H_r$ . S'en suit une zone  $\rho_{FORC} < 0$  (distribution 6) qui correspondrait à une expansion du domaine en début de FORC (analogue à un effet de viscosité), puis une zone  $\rho_{FORC} = 0$  correspondant à la stabilité du domaine lorsque  $H$  augmente, et enfin la zone  $\rho_{FORC} > 0$  correspondant à l'annihilation du domaine renversé à la saturation de cette FORC. Grâce à la Figure 4.108, il est possible d'associer cette forte augmentation de  $\rho_{FORC}$  (distribution 1) au retournement de nanofils durant l'annihilation du domaine. Contrairement au cas du film poreux (Figure 4.103), les moments situés dans le pseudo-film sous le domaine *down* ne sont pas alignés selon la direction  $-z$  (Figure 4.108.b) mais forment un angle de  $45^\circ$  en moyenne. La Figure 4.109 illustre la possibilité qu'à l'aimantation d'effectuer une rotation à l'intérieur des pieds coniques, contrairement au cas précédent du film poreux. Cette rotation peut être considérée comme une paroi de domaine entre le pseudo-film possédant une forte anisotropie planaire et le réseau de nanofils d'anisotropie hors-plan. La rotation de l'aimantation dans une géométrie similaire de nanofil évasé à son extrémité a déjà été mise en évidence par simulation par F. Ott *et al.* pour un nanofil isolé [182].

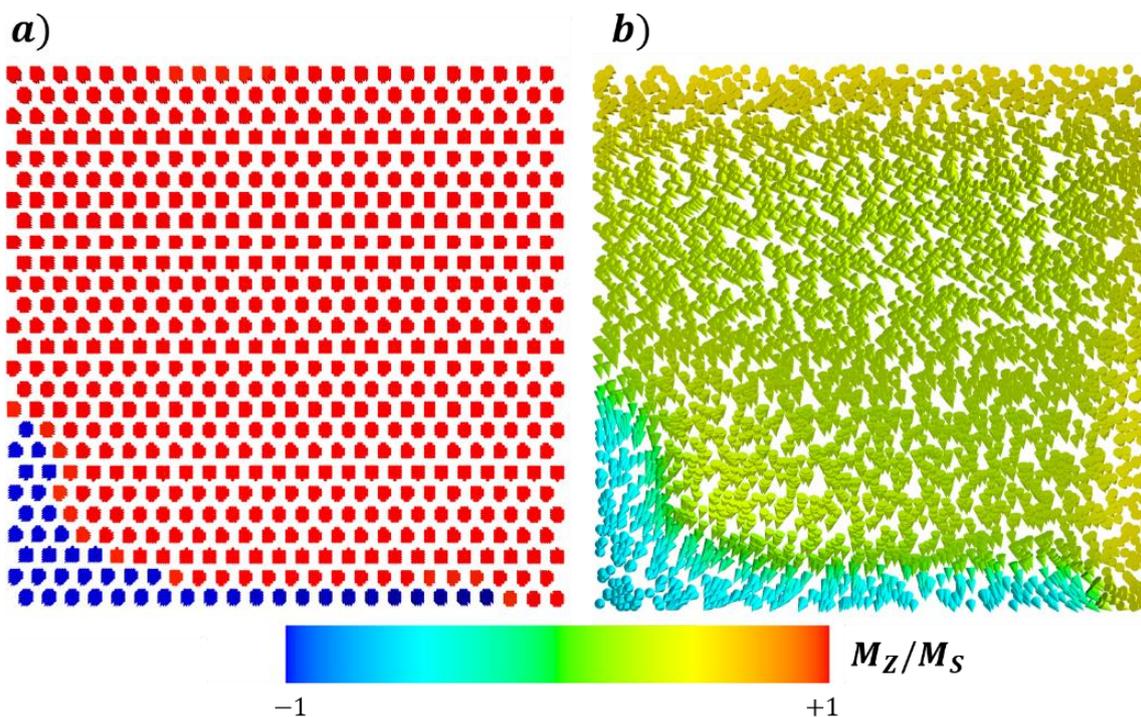


Figure 4.108 : a) configuration de l'aimantation des nanofils simulés extraite à la nucléation, à la hauteur  $z = L/2$  (point noir Figure 4.107). b) configuration de l'aimantation du pseudo-film au même point.

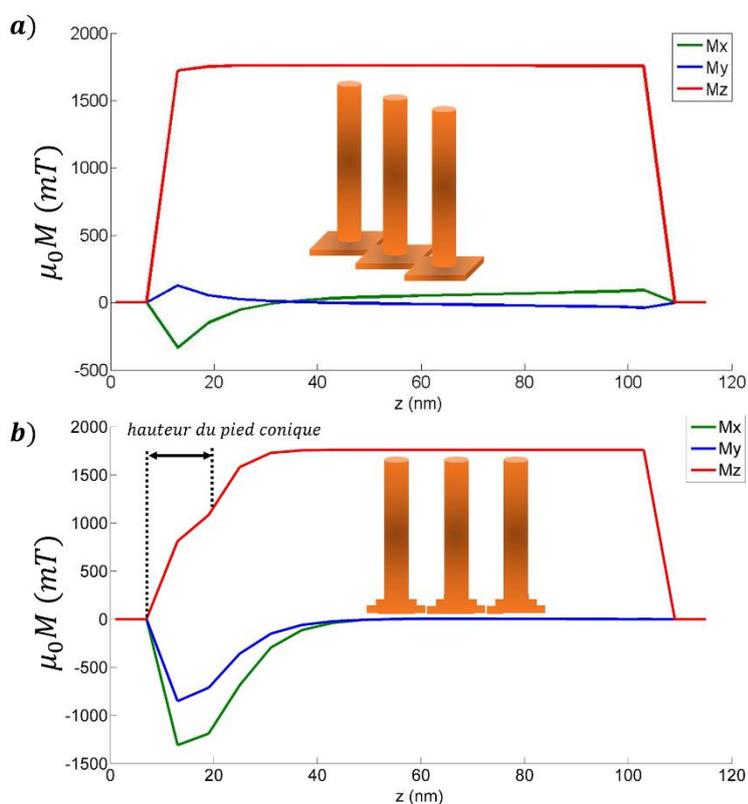


Figure 4.109 : profil de l'aimantation le long de l'axe d'un nanofil simulé pour un état proche du champ coercitif de l'assemblée : a) relevé sur la configuration magnétique de la Figure 4.104 ; b) relevé sur la configuration magnétique de la Figure 4.110.

Les configurations magnétiques de l'aimantation au champ coercitif, dans les nanofils et dans le pseudo-film, sont présentées respectivement Figure 4.110.a et Figure 4.110.b (point vert de la Figure 4.107). Il apparaît clairement deux domaines de fils *up* et *down* dans le réseau, séparés par une paroi de domaine. Cela contraste avec les simulations de fils couplés uniquement par interaction dipolaire présentant un arrangement magnétique type labyrinthe à l'état désaimanté (Figure 4.96b), Figure 4.100). Par rapport au réseau couplé *via* un film poreux (Figure 4.104), la frontière séparant les domaines de fils renversés/non renversés est ici clairement plus longue et courbée. Ceci est représentatif de la manifestation des interactions magnétostatiques en compétition avec le couplage d'échange fils/film. Notons que, de la même façon qu'à la nucléation, sous les nanofils *up* alignés selon  $+z$ , donc antiparallèles au champ externe, les moments contenus dans le pseudo-film ne sont pas alignés suivant  $+z$ . Comme explicité plus haut, ceci nous amène à la conclusion que la continuité des interactions entre le film et le réseau de nanofils est moindre du fait de la possibilité qu'a l'aimantation d'effectuer une rotation dans le pied des nanofils.

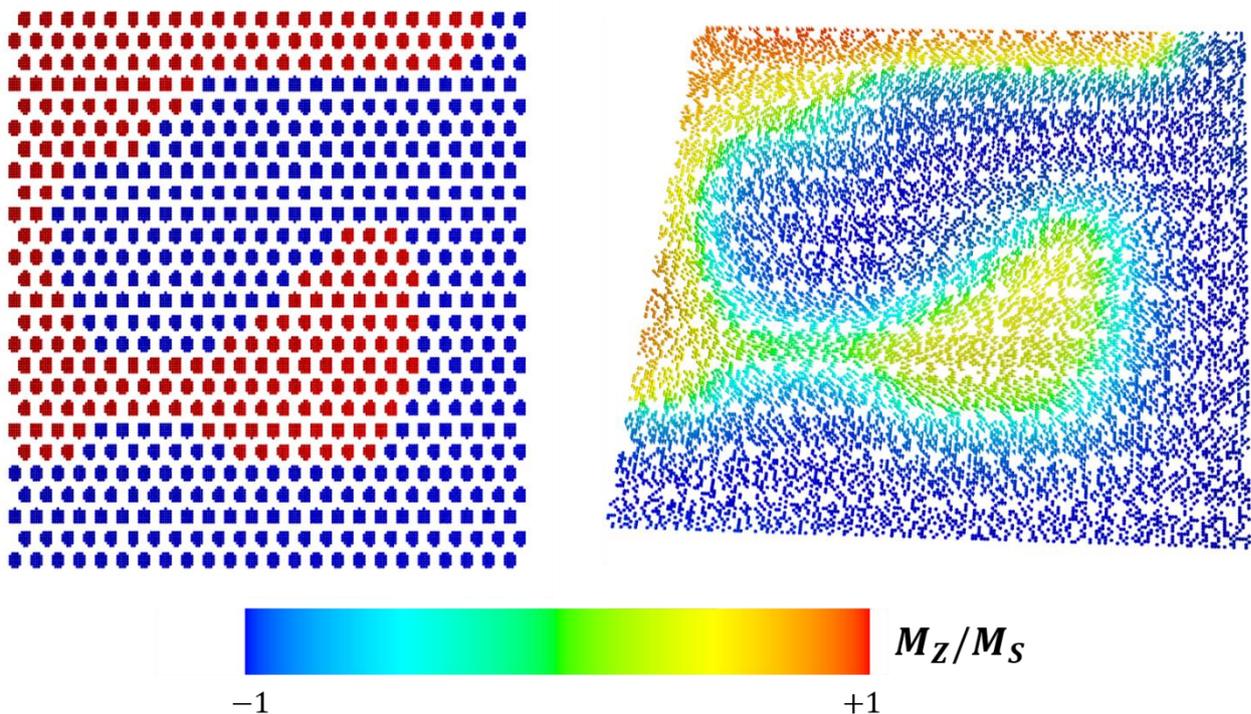


Figure 4.110 : a) configuration de l'aimantation des nanofils simulés au champ coercitif à la hauteur  $z = L/2$ . b) configuration de l'aimantation du pseudo-film au champ coercitif.

Les configurations magnétiques du réseau et du pseudo-film ont été relevées autour de  $H = 0$  (aux points orange de la Figure 4.107) afin d'investiguer l'origine de la distribution numérotée 3 sur la Figure 4.106. Ces configurations présentées Figure 4.111 ne révèlent pas de différence notable en ce qui concerne les nanofils du réseau. Le nombre de nanofils ayant opéré le retournement de leur aimantation est dans l'ordre de grandeur de celui observé entre deux pas de champ externe pris à différents stades du cycle (hors de la nucléation et de la saturation). Si l'intérêt est maintenant porté sur la configuration de l'aimantation dans le pseudo-film, il apparaît une différence notable quant à l'orientation moyenne des moments localisés sous les nanofils aimantés selon  $+z$ . Avant le champ externe nul, ces moments magnétiques sont inclinés à  $45^\circ$  environ de la direction  $+z$ , alors qu'une fois que le champ externe devient négatif, les moments s'alignent pratiquement dans le plan du pseudo-film. Ceci occasionne la marche à bas champ visible dans les cycles simulés. Cette rotation de

l'aimantation est quasiment réversible puisque l'aimantation suit le champ effectif (somme de toutes les contributions au champ total). Il est ainsi avancé que la marche à bas champ observée expérimentalement à l'origine de la distribution 3 trouve son origine dans cette relaxation des moments dans les pieds des nanofils.

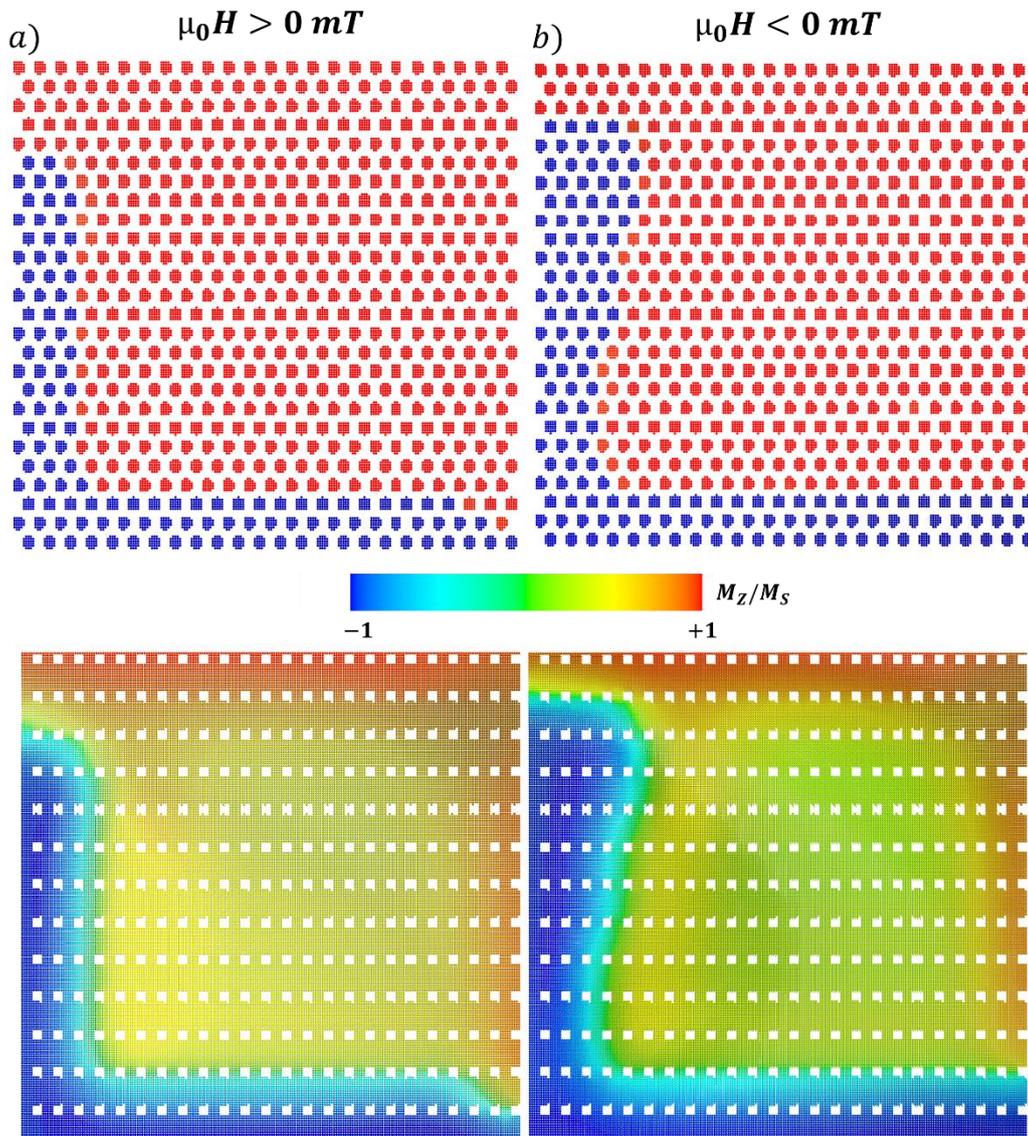


Figure 4.111 : configurations magnétiques du réseau de nanofils à la hauteur  $z = L/2$  (en haut) et du pseudo-film de pieds (en bas) issues d'une simulation d'un réseau de 624 nanofils, a) avant le champ externe nul (point orange Figure 4.107), et b) après le champ externe nul (point orange Figure 4.107).

La Figure 4.112 présente plusieurs configurations magnétiques du réseau de nanofils et du pseudo-film à la nucléation d'un domaine circulaire (relevés aux points rouge et violet de la Figure 4.107). Contrairement au cas du film poreux, ce domaine n'a pas la topologie d'un skyrmion et ne présente pas de persistance face à l'augmentation du champ externe telle que les skyrmions identifiés précédemment (Figure 4.105). Il est probable que la continuité des interactions entre le réseau de nanofils et le pseudo-film soit masquée par la paroi contenue dans le pied des nanofils, ainsi les moments du pseudo-film sont moins sujets aux interactions qui contraignent leur alignement hors plan, inhibant la formation de skyrmions.

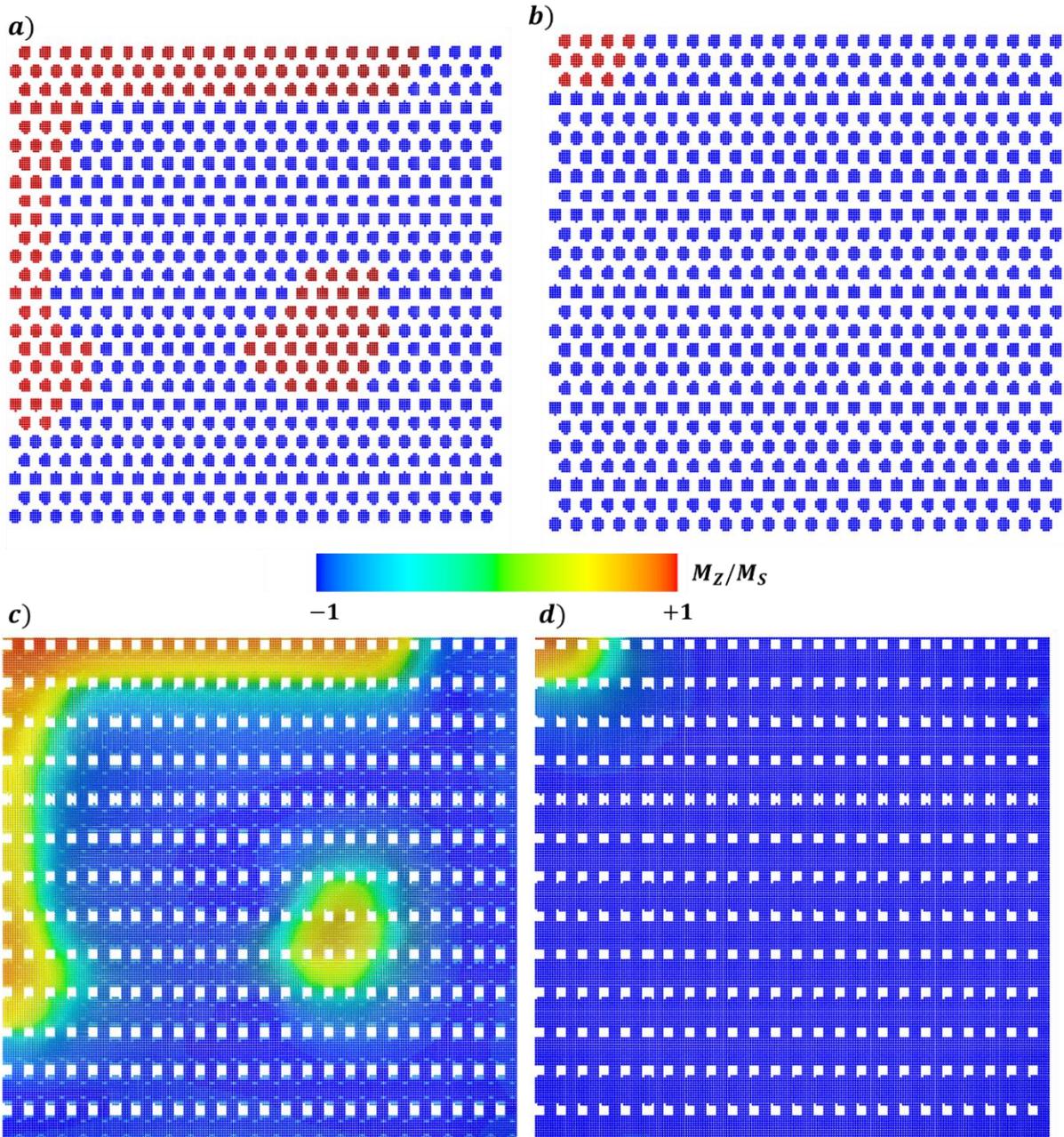


Figure 4.112 : configurations a) de l'aimantation des nanofils à la hauteur  $z = L/2$ , et c) de l'aimantation du pseudo-film à la nucléation d'un domaine circulaire (point rouge 1 de la Figure 4.107). Configurations b) de l'aimantation des nanofils à la hauteur  $z = L/2$  et d) de l'aimantation du pseudo-film à l'approche de la saturation, relevées au point rouge 2 de la Figure 4.107.

La distribution 4 du diagramme simulé concerne les FORC pour lesquelles  $-650 \text{ mT} < \mu_0 H_r < -700 \text{ mT}$ . La Figure 4.113 présente les configurations magnétiques relevées aux champs externes correspondant à la distribution 4, à savoir  $\mu_0 H_r = -675 \text{ mT}$  et  $\mu_0 H = -87 \text{ mT}$  pour l'image a) et  $\mu_0 H = -50,25 \text{ mT}$  pour l'image b) : ces images sont relevées aux points violets de la Figure 4.107, et sont espacées d'un pas de champ externe :  $\mu_0 \Delta H = 36,75 \text{ mT}$ . La Figure 4.113 témoigne de la nucléation d'un domaine d'une grande dimension face au dimension du réseau simulé, à l'origine la forte augmentation de  $\rho_{FORC}$ . On peut donc conclure qu'une forte augmentation de  $\rho_{FORC}$  dans cette

région du diagramme va de pair avec un comportement de nucléation par retournement de large domaines.

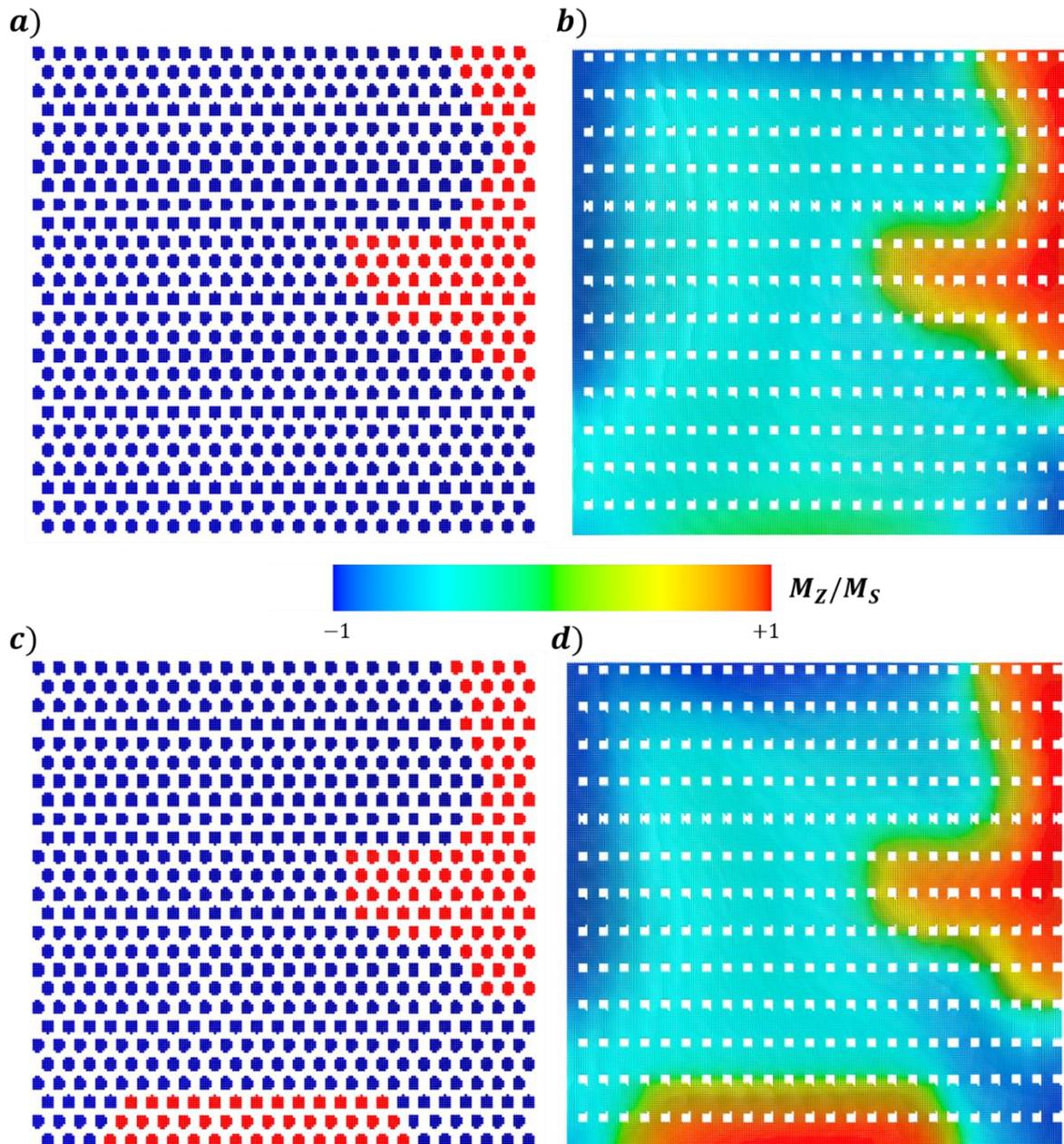


Figure 4.113 : images relevées lors d'une FORC aux points violets de la Figure 4.107. a) et b) configuration de l'aimantation proche de la saturation négative, juste avant la nucléation d'un domaine responsable de la distribution 4 : a) configuration du réseau de nanofils à la hauteur  $z = L/2$ , b) configuration du pseudo-film. c) et d) configuration de l'aimantation à la nucléation du domaine responsable de la distribution 4 : c) configuration du réseau de nanofils à la hauteur  $z = L/2$ , d) configuration du pseudo film.

La Figure 4.114 montre la comparaison des FORC extrémales (de plus faible champ de renversement), dans les différentes géométries simulées, superposées au demi-cycle mesuré à 300K. Le couplage d'échange film/fils et les interactions magnétostatiques ont des effets antagonistes sur la susceptibilité magnétique de l'assemblée : l'échange augmente la susceptibilité de par sa propriété magnétisante entre premiers voisins, tandis que les interactions magnétostatiques, à plus longue portée, s'opposent aux retournements entre nanofils provoquant la diminution de cette susceptibilité [95]. Ces arguments sont en accord avec la valeur des pentes explicitées Figure 4.114. Effectivement,

la courbe représentative de l'assemblée sur un film poreux (verte) semble traduire un couplage magnétisant entre nanofils plus fort que dans le cas de la courbe représentative du réseau de nanofils aux pieds coniques (rouge). Au regard de toute cette partie simulation, le couplage interfil est donc très dépendant de la géométrie de l'interface entre le film et le réseau.

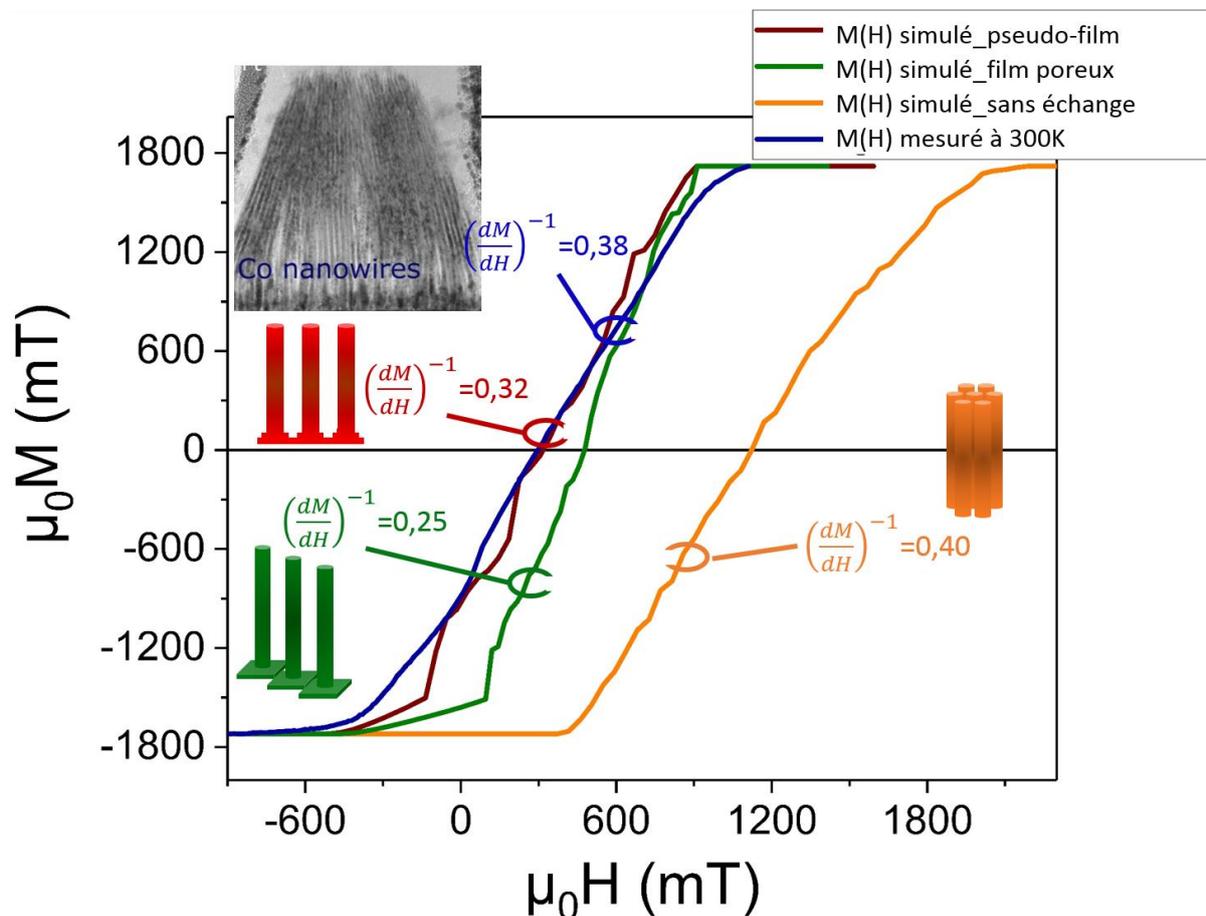


Figure 4.114 : comparaison des FORC extrémales, pour lesquelles  $H_r$  est minimal, avec interaction d'échange (courbes verte et rouge), sans interaction d'échange (courbe orange) et issu de l'aimantation mesurée (bleu). La variation de la pente suivant les différentes géométries permet de comparer l'intensité des interactions.

## 6. Conclusions concernant le diagramme FORC mesuré à 300K

Au regard des simulations micromagnétiques, il est désormais possible de discuter le diagramme FORC expérimental obtenu à 300 K sur les échantillons synthétisés dans le toluène. Il s'avère que contrairement aux observations *MET* qui ne font pas apparaître clairement de contact entre nanofils à l'interface *Co/Pt*, l'interprétation du diagramme FORC dans son ensemble suggère un couplage direct entre fils. L'accord expérience/simulations le plus satisfaisant est obtenu pour des nanofils évasés à leur base provoquant ce couplage direct. Ce faisant, les diagrammes FORC générés à partir des données mesurées et des données simulées témoignent d'un très bon accord, les différentes distributions peuvent alors être adressées.

Comme pressenti à partir de l'étude bibliographique, les distributions 6 et 1 sont la signature de la nucléation de larges domaines de nanofils renversés puis de leur annihilation. La distribution 4 en est le reflet en champ négatif : partant d'un état proche de la saturation, l'augmentation du champ externe vers la saturation positive occasionne la nucléation d'un ou plusieurs large(s) domaine(s). La

distribution 3 pourrait être attribuée à la relaxation de l'aimantation dans les pieds coniques des nanofils proche du champ nul. La distribution 5 (Figure 4.94) observée expérimentalement est nommée la CFD (Coercive Field Distribution). Elle n'est pas reproduite par la simulation, ce qui est attendu du fait que la CFD a pour origine, d'une part, la présence d'une dispersion en champ de retournement qui n'est pas introduite dans les simulations micromagnétiques de fils évasés, et d'autre part d'une distribution en champ d'interaction qui n'est pas présente non plus du fait des conditions aux bords périodiques. Un point important est que le couplage direct interfil induit une dynamique de domaines de nanofils, ce qui n'apparaît pas dans le cas d'un couplage uniquement magnétostatique.

Pour aller plus loin, une étude paramétrique, partiellement décorrélée des observations expérimentales, est souhaitable dans le but de décrire : (1) les effets de l'épaisseur du film, (2) les effets de la distribution en champ de retournement, (3) les effets de l'anisotropie magnétocristalline dans le couplage film-réseau, (4) les effets des défauts de cristallinité, (5) les éventuels effets à l'interface Pt/réseau de nanofils. La question de l'effet du mode de retournement n'a pas été bien investiguée et pourrait jouer sur les valeurs de la distribution en champ de retournement extraite dans le diagramme FORC, de même une étude FORC sur des grandeurs magnétiques en fonction du taux de compacité pourrait éclaircir certains désaccords relevés entre les grandeurs extraites des diagrammes et des cycle  $M(H)$ .

Les simulations hystérons ne peuvent rendre compte de systèmes mettant en jeu des mouvements de paroi et dépendant du mode de retournement comme dans le cas présent. A ce titre, les simulations micromagnétiques sont incontournables pour simuler fidèlement comportement magnétique d'un réseau de nanofils. Cependant le temps de calcul d'une simulation micromagnétique de mesure FORC est trop important, il serait intéressant de développer un système hybride, à savoir la simulation micromagnétique d'un réseau de macrospin. Ce type de simulation est plus précis en ce qui concerne le calcul du champ dipolaire, et pourrait ainsi permettre une étude du comportement magnétique d'un réseau en fonction du taux de compacité.

## 7. Evolution en température des diagrammes FORC mesurés

Concernant l'évolution en température des diagrammes FORC des échantillons synthétisés dans le toluène, il apparaît une transition progressive d'une forme plutôt linéaire à 300K vers une forme clairement wishbone aux basses températures. Une telle tendance a été observée dans le système anisole, bien que dans ce cas le diagramme tende vers la forme wishbone sans toutefois être aussi manifeste que pour le système toluène. L'extraction de la largeur de la distribution en champ de retournements réalisés sur les diagrammes FORC du système anisole a révélé un élargissement de la distribution de la coercivité FORC aux basses températures. Or, les simulations d'hystérons effectuées au chapitre II, partie III ont montré que l'extraction de la largeur de distribution en champ de retournement à partir des coordonnées des points  $A$  et  $B$  est fidèle à 90% de la largeur de l'iSFD pour une assemblée de 1000 hystérons (chapitre II, partie III.D.2, p.71 et partie III.D.5, p.79). Par ailleurs, ces mêmes simulations ont montré une transition de diagramme FORC linéaire vers wishbone à mesure que la iSFD s'élargit, et ce particulièrement dans le cas d'hystérons interagissant en champ moyen (Figure 2.40, chapitre II, partie III.D.2, p.71). Egalement, nous avons noté la transition linéaire vers linéaire + CFD, dans le cas d'une interaction par un champ local (Figure 2.47, partie III.D.5, p.79). Alors que ces deux arguments, élargissement  $\rho_{FORC}(Hc)$  et augmentation de la dispersion estimée par  $\sigma = \frac{H_{c,MHL} - H_{c,min}}{3}$  ainsi que la tendance wishbone, se conjuguent dans le système anisole, il a été conclu que l'iSFD s'élargissait aux basses températures dans ce système. Dans le cas présent du système toluène, la transition linéaire vers wishbone est clairement identifiée, ce qui va dans le sens

d'une augmentation de la dispersion en champ de retournement aux basses températures. La Figure 4.115 présente la dispersion absolue et relative de la SFD estimée par  $\sigma_{iSFD, FORC} = \frac{H_{c,MHL} - H_{c,min}}{3}$  d'après les relevés sur les diagrammes FORC aux points *A* et *B*.

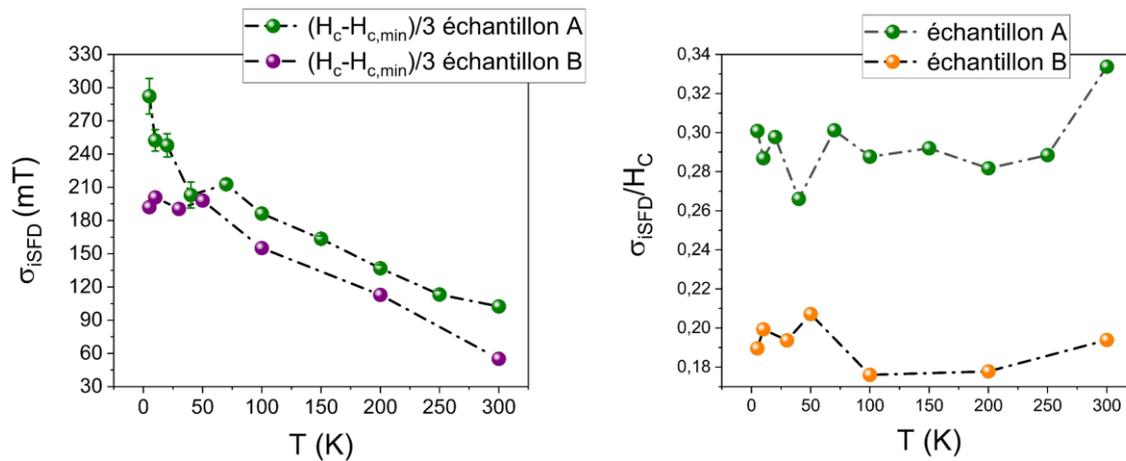


Figure 4.115 : a) dispersion en fonction de la température obtenue par la relation  $\sigma_{iSFD, FORC} = \frac{H_{c,MHL} - H_{c,min}}{3}$ . b) Dispersion relative de la SFD.  $\frac{\sigma_{iSFD}}{H_c} = \frac{(H_{c,MHL} - H_{c,min})/3}{H_{c,MHL}}$  en fonction de la température de mesure.

Il apparaît clairement que la dispersion en champ de retournement augmente avec la diminution de la température pour les deux échantillons investigués, de même que pour les échantillons issus des synthèses anisole. Les arguments avancés pour expliquer cette augmentation sont similaires au cas anisole, à savoir : les nanofils les mieux cristallisés verraient leur coercivité augmenter à basse température principalement du fait de l'augmentation de la constante d'anisotropie magnétocristalline du *Co hcp*, tandis que les nanofils comportant des défauts (fautes d'empilements, macles, portions *Co cfc*, etc) ne verraient pas leur anisotropie magnétocristalline augmenter suivant la même amplitude, ce qui aurait pour conséquence d'augmenter la dispersion en champ de retournement. De plus, il est possible que des impuretés superparamagnétiques telles que des nano-objets parasites de faible dimension éventuellement présentes au sein du réseau se trouvent bloquées à basse température, ce qui aurait également pour effet d'augmenter la dispersion. La Figure 4.115b montre que la dispersion relative reste pratiquement constante en fonction de la température. Comme pour le système anisole, elle est d'un ordre de grandeur d'environ 30%. Cette valeur est en soi importante mais, compte tenu la très faible période du réseau de 9 nm, est plutôt conforme à ce qui peut être projeté d'après les données établies dans les *bits patterned media* qui se situent actuellement à des périodes d'environ 20nm avec des dispersions relatives de iSFD de 9.5%.

## IV. Discussion générale comparative.

### Echantillons synthétisés dans l'anisole :

Les nanofils obtenus sont en forme d'aiguille, relativement larges ( $12,7 \text{ nm} \pm 2,1 \text{ nm}$  de diamètre) et de longueur homogène. La géométrie de  $\rho_{FORC}$  est linéaire (IFD+CFD) pour toutes les températures mesurées. Les profils le long de l'IFD dévoilent que  $\rho_{FORC}$  peut être considéré comme constant à toutes les températures mesurées : ceci constitue la principale signature du régime de champ moyen.

Les simulations micromagnétiques sur un nanofil isolé de 12 nm de diamètre révèlent un retournement par nucléation d'un vortex aux extrémités puis propagation le long de l'axe. Expérimentalement, l'analyse de la variation de la coercivité en température indique un volume effectif 36 fois inférieur à celui du nanofil, ce qui permet de conclure à un retournement localisé pour les nanofils en interaction dans le réseau. D'après les simulations, lors de son retournement, le réseau s'organise en domaines limités de nanofils dans une configuration magnétique type labyrinthe.

D'après la mesure de la susceptibilité différentielle (cycle majeur) et des coordonnées du point *A* relevées sur les diagrammes FORC, le champ d'interaction à la saturation a une amplitude constante en température, en accord avec la description des interactions par un champ moyen dépendant du facteur *P* du réseau et la constance de  $M_S$  en température.

Enfin, l'élargissement de la distribution sondée le long de l'axe  $H_C$  des diagrammes FORC, ainsi que l'estimation de la largeur de la distribution en champ de retournement par  $\frac{H_{c,MHL} - H_{c,min}}{3}$ , sont d'après les simulations les indicateurs d'un élargissement de la distribution de champ de retournement intrinsèque à mesure que la température diminue. Cela est attribué aux défauts du réseau cristallin et particules parasites résiduelles de la synthèse.

### Echantillons synthétisés dans le toluène :

Les nanofils obtenus sont de forme cylindrique, fins ( $6,5 \pm 0,9 \text{ nm}$  de diamètre), de longueur homogène et le réseau présente des affaissements formés par des fagots de nanofils. Contrairement au cas anisole, le profil  $\rho_{FORC}(H_{int})$  le long de l'IFD n'est pas constant, avec particulièrement un pic sur l'axe  $H_c$  caractéristique d'un régime d'interaction de type local. D'après les simulations d'hystérons, cela constitue la signature d'un champ d'interaction plutôt inhomogène, surtout comparativement au système anisole, qui pourrait trouver son origine dans la présence des affaissements dans le réseau. Les distributions FORC observées dans les zones correspondant à la nucléation et la saturation indiquent un grand nombre d'évènements irréversibles, assimilables au retournement groupé de nanofils, phénomène non imputable à un réseau de nanofils couplés uniquement par interaction dipolaire. Ces évènements attribuables à des processus de nucléation/extension/annihilation de domaines de nanofils apparaissent dans les simulations micromagnétiques où un contact entre nanofils est opéré par leur base évasée, ainsi que dans les simulations hystérons en présence d'un champ d'interaction magnétisant de type Ising limité aux proches voisins (ici les 4 premiers voisins). Les cartographies de configurations magnétiques de réseaux ainsi simulés indiquent que le retournement du réseau se fait par nucléation et propagation de proche en proche. Dans le film mince, les domaines *up* et *down* sont séparés par une paroi de Néel dont le déplacement et les retournements des nanofils coïncident spatialement. Les simulations indiquent également que le retournement propre d'un nanofil dans le réseau s'opère *via* le mode de retournement local de nucléation/propagation d'une paroi transverse, de même que pour un nanofil

isolé. L'analyse expérimentale de la variation de la coercivité en température témoigne d'un volume effectif très inférieur au volume du nanofil ce qui va dans le sens d'un retournement localisé.

Le champ d'interaction à la saturation relevé sur les diagrammes FORC est relativement constant avec la variation de la température montrant que, comme pour le système anisole, l'amplitude du champ d'interaction ne dépend que du taux de compacité  $P$  et de l'aimantation à saturation, tous deux constants en température. Un point notable est que la susceptibilité différentielle n'est pas en accord avec le champ d'interaction relevé sur les diagrammes FORC puisqu'elle montre une variation en température. Cette variation est attribuée à la variation de la dispersion du champ de retournement en fonction de la température mais également au découplage entre le pseudo-film et le réseau de nanofils à mesure que l'anisotropie magnétocristalline augmente avec la diminution de la température. Les simulations hystérons montrent que la susceptibilité est guidée par la dispersion en champ de retournement, mais également par l'interaction magnétisante.

Au travers de plusieurs indicateurs, il apparaît que la distribution de champ de retournement s'élargit à mesure que la température diminue. D'après les simulations d'hystérons, cela est attesté par la transition des diagrammes FORC expérimentaux de linéaire à wishbone à mesure que la température diminue. Ce type de transition semble ne jamais avoir été répertorié dans la littérature. Il est important de noter qu'il existe peu d'études FORC en température. Il apparaît que les largeurs de SFD ainsi déterminées représentent près de 20-30% de la coercivité ce qui est important. L'évolution en température de la distribution en champ de retournement est attribuée aux mêmes raisons que dans le cas des échantillons synthétisés dans l'anisole, à savoir l'effet des défauts et la présence d'impuretés magnétiques.

# Conclusion

Les objectifs initiaux de ce travail de thèse ont été, pour la plupart, atteints. Un cadre théorique de description des réseaux de nanofils a été introduit en se basant sur la physique du nano-cylindre isolé ainsi que sur les résultats de simulations micromagnétiques et d'assemblées d'hystérons. La distribution en champ de retournement est désormais connue malgré le renforcement nécessaire des méthodes utilisées. La méthode FORC est développée et utilisée au LPCNO de façon systématique afin d'investiguer les comportements des assemblées de nanoparticules magnétiques. Du point de vue de la chimie, les synthèses sont encore en développement, toutefois les caractérisations structurales et la magnétométrie indique que l'évolution est en bonne voie. En conclusion la collaboration entre chimistes et physiciens s'est révélée fructueuse et demande à être prolongée dans le but d'approfondir les nombreux résultats obtenus et à venir.

Les nanocylindres finis dont il est question dans ce travail de recherche sont de dimension proche des longueurs caractéristiques du nanomagnétisme (longueur d'échange, largeur de paroi, rayon critique de renversement cohérent). Les simulations micromagnétiques et la revue de la littérature témoignent d'un retournement localisé par propagation de paroi, vortex ou transverse, selon leur diamètre. Deux parois nucléées à chaque extrémité et se propagent le long de l'axe du nanofil. De par leur faible dimension, ces nanocylindres sont des systèmes bistables monodomains, possédant un fort champ anisotropie. À ce titre, leur modélisation par un cycle carré est une approximation valable. De ce fait, les modèles théoriques explicités pour caractériser le cycle d'hystérésis d'un réseau de nanocylindres sont basés sur ces arguments.

Dans une assemblée, les entités sont toutes singulières, faisant ainsi naître une dispersion de leurs caractéristiques intrinsèques. Du reste, les entités au sein d'un groupe interagissent. Dans le cas des nanofils magnétiques, le champ de fuite rayonné par chacun des nanofils est à l'origine du champ d'interaction. Les propriétés émergentes du regroupement de nanofils au sein d'un réseau résultent donc du champ d'interaction et de la dispersion des caractéristiques intrinsèques aux nanofils. Dans le modèle théorique servant de fil conducteur tout au long de ce manuscrit, les interactions dipolaires démagnétisantes sont représentées par un champ moyen ayant pour effet de cisailer le cycle d'hystérésis. Le cisaillement du cycle fait apparaître une pente d'une valeur identique à celle de l'inverse de la susceptibilité différentielle, mais également à l'inverse du taux de compacité (*i.e.* densité surfacique). Afin de valider ce modèle, des simulations micromagnétiques ont été réalisées en présence de conditions aux bords périodiques, influençant le champ dipolaire de façon à être en accord avec une vision de champ d'interaction moyen. Le résultat de ces simulations est en bon accord avec le modèle analytique, présentant une évolution de la susceptibilité différentielle égale au taux de compacité du réseau simulé. Les limites d'un modèle de champ moyen sont nombreuses, l'une d'elles a été mise en lumière concernant la variation du champ coercitif avec le taux de compacité du réseau. En effet, aucune évolution du champ coercitif d'un réseau n'est attendue avec la variation du taux de compacité dans un contexte de champ moyen. Pourtant, une série de simulations micromagnétiques ont démontré que plus le réseau est dense, plus la valeur du champ coercitif chute. Cette chute s'explique par la possibilité qu'a un réseau de nanofils d'organiser son aimantation en domaines sous l'effet des interactions magnétostatiques, menant à un état désaimanté stable. En outre, il est également exposé dans cette démonstration que l'anisotropie magnétocristalline a un effet antagoniste à celui du champ d'interaction démagnétisant. À ce titre, tout se passe comme si l'anisotropie magnétocristalline repoussait la formation des domaines.

La distribution en champ de retournement a des effets non linéaires sur le cycle  $M(H)$  difficiles à distinguer des effets du champ d'interaction. La détermination de sa forme et de sa largeur est un enjeu de taille dans l'optique de voir ces réseaux intégrés dans des dispositifs comme des médias magnétiques à haute densité ou toute autre application. C'est pourquoi, dans le choix du cadre d'analyse, la méthode FORC (First-Order Reversal Curves) semble la plus pertinente pour l'investigation des propriétés de réseaux de nanofils. En effet, si aucun champ d'interaction n'est en vigueur au sein de l'assemblée, les mesures FORC donnent accès aux différentes distributions des caractéristiques magnétiques individuelles des entités magnétiques qui constituent le réseau. En présence d'interactions, ce diagramme est représentatif du renversement de l'assemblée. À partir d'un jeu de cycles mineurs, dont l'acquisition peut se faire avec un simple magnétomètre standard, cette méthode permet l'obtention d'un diagramme d'axes  $(H; H_r)$ . Chaque point de ce diagramme représente le résultat d'une dérivée seconde de l'aimantation, appelée  $\rho_{FORC}$ , par rapport au champ de renversement et au champ externe. Suivant la géométrie de la dérivée seconde, représentée dans le plan  $(H_r; H)$  ou à l'aide d'une rotation des coordonnées dans le plan  $(H_c; H_{int})$  (i.e. le diagramme FORC), il est possible de tirer des informations sur la façon dont s'ordonnent les événements irréversibles à l'échelle microscopique. Ainsi, pour des entités magnétiques soumises à un champ d'interaction démagnétisant, nous avons pu associer les différentes géométries obtenues à la dominance d'une grandeur sur le déroulement des événements irréversibles. Par exemple, pour la géométrie wishbone, la distribution en champ de retournement dicte l'ordre dans lequel s'effectuent les événements de renversement, alors que pour une géométrie dite linéaire (avec ou sans CFD) c'est la distribution en champ d'interaction qui dicte l'ordre des retournements. Concernant le champ d'interaction, son amplitude peut être déterminée à l'aide d'un profil parallèle à l'axe  $H_{int}$ . Lorsque le profil le long de  $\rho_{FORC}$  est constant, le champ d'interaction se résume à un champ moyen. Dans le cas d'un champ de type Ising, les effets locaux induisent une variation sur ce profil qui prend alors une forme caractéristique, signature du champ local. Il est également possible d'interpréter les événements représentatifs du comportement de certaines structures, comme les couches minces magnétiques, dont leur signature, localisable dans le diagramme FORC, réside dans les processus de nucléation/annihilation de domaines et du retournement de l'aimantation par propagation de paroi. Concernant la mesure de la distribution intrinsèque en champ de retournement, sa forme reste difficilement accessible. En outre, il est possible d'en évaluer fidèlement sa largeur à l'aide des coordonnées des points remarquables nommés  $A, B$  et  $C$ .

Préalablement à la description des mesures magnétiques, le chapitre III a introduit la description de la synthèse ainsi que des échantillons obtenus. À partir d'un mélange : hexadécylamine / acide laurique / précurseur de cobalt dissout dans un solvant, toluène ou anisole, la synthèse de réseaux de nanofils s'effectue par autoassemblage. Afin de profiter pleinement des propriétés magnétiques du cobalt *hcp*, la croissance est effectuée sur une surface de symétrie 6 :  $Al_2O_3$  (0001)/Pt(111). Ainsi la direction de croissance des nanofils, parallèle à l'axe  $c$ , permet la conjugaison de l'anisotropie magnétocristalline et de l'anisotropie de forme. Ceci permet d'accéder à une anisotropie effective perpendiculaire au substrat, malgré des densités importantes. En fin de synthèse, un réseau ultra dense ( $P = 0,62 \pm 0,08$  pour le cas anisole, et  $P = 0,46 \pm 0,10$  pour le cas toluène) de nanofils est bien obtenu. Les observations montrent que la croissance s'est déroulée perpendiculairement au substrat et les fils sont bien monocristallins *hcp*. Afin de modifier les caractéristiques structurales (distance interfil, diamètre...), d'autres réactifs ont été utilisés pour réaliser la synthèse de nanofils : le benzylamine a été substitué à l'hexadécylamine ou tandis que l'acide laurique a été substitué à l'acide phénylacétique. Des résultats sont encore en cours d'acquisition, cependant les premiers résultats qui demandent à être confirmés sont encourageants : les observations montrent bien une croissance de nanofils perpendiculaires au substrat et auto-organisés

en réseau hexagonal, les cycles d'hystérésis mesurés sont cisailés avec des pentes qui diffèrent selon les réactifs de synthèses utilisés, synonymes de caractéristiques structurales variables et de la direction de facile aimantation du réseau est perpendiculaire au substrat.

Les mesures magnétiques présentées ont été effectuées à différentes températures, entre 300K et 5K, sur des réseaux issus de synthèses dont la principale différence se trouve être le changement de solvant : anisole ou toluène.

En termes de structure, les nanofils synthétisés dans l'anisole sont plus larges que les nanofils synthétisés dans le toluène. Le système anisole répond bien aux interprétations utilisant le modèle du champ moyen à toutes les températures de mesure. Notamment, la susceptibilité différentielle est constante durant le renversement du réseau et ne varie pas avec la température, le champ d'interaction à la saturation est en accord avec la pente et les profils le long de  $\rho_{FORC}$ , effectués parallèlement à l'axe  $H_{int}$ , sont de hauteur constante à toutes les températures. D'autre part les simulations ainsi que l'ajustement itératif de la courbe  $H_c(T)$  et les raisonnements théoriques issus de la littérature argumentent en faveur d'un retournement localisé accompli par nucléation/propagation de parois vortex. Enfin, aux basses températures la distribution en champ de retournement semble s'élargir du fait des défauts, voyant leur évolution en anisotropie magnétocristalline augmenter différemment des zones parfaitement cristallines et provoquant l'élargissement de la distribution en champ de retournement.

Les mesures magnétiques effectuées sur le système toluène ne répondent pas au modèle de champ moyen. En effet, des désaccords entre la susceptibilité différentielle, les caractéristiques structurales et l'amplitude du champ d'interaction à la saturation sont observés. La susceptibilité différentielle évolue fortement avec la température et les profils le long de  $\rho_{FORC}$ , effectués parallèlement à l'axe  $H_{int}$ , sont représentatifs d'un champ d'interaction d'Ising. Les mesures FORC révèlent une transition en température de par le changement de géométrie de  $\rho_{FORC}$ . Entre 300K et 100K, la nucléation et l'approche à la saturation, traduites dans le diagramme FORC par une forte augmentation de  $\rho_{FORC}$  aux deux extrémités de l'IFD (Interaction Field Distribution), témoignent de similitudes avec les géométries des diagrammes issus de mesures sur les couches minces magnétiques à anisotropie perpendiculaire. Ces analogies laissent supposer l'existence d'une interaction magnétisante entre les nanofils du réseau. De façon à rendre compte de ces phénomènes, une interaction d'échange a été introduite dans des simulations micromagnétiques de courbes de renversement du premier ordre, effectuées par un réseau de nanofils, *via* un élargissement d'une des extrémités des nanofils formant, par contact, un pseudo-film. Le diagramme FORC obtenu à l'issue de ces simulations est en bon accord avec les diagrammes FORC provenant des mesures, c'est pourquoi les résultats de ces simulations ont pu servir d'appuis aux arguments d'interprétation du diagramme mesuré. Nous pouvons ainsi conclure sur l'existence d'une interaction magnétisante entre les nanofils du réseau. Cette interaction engendre des phénomènes de nucléation/annihilation de domaines de nanofils d'une topologie différente du cas où seule une interaction démagnétisante est en vigueur au sein du réseau. Ces simulations ont montré qu'il se forme une paroi de domaine piégée dans le pseudo film sous-jacent délimitant la partie *up* de la partie *down*, se propageant de façon à accorder l'aimantation dans le film mince avec l'aimantation du réseau. L'interaction magnétisante provoque une augmentation de la susceptibilité différentielle ainsi que des effets non linéaires comme la nucléation et de l'annihilation de domaines, induisant une forte variation de l'aimantation. La distribution en champ de retournement a pu être sondée. De la même façon que pour le système anisole, la dispersion augmente aux basses températures, s'expliquant par la présence d'impuretés et de défauts. La dispersion relative du champ coercitif, de l'ordre de 20 à 30%, peut paraître importante, mais elle s'inscrit dans la tendance, supposée linéaire, des *bits patterned media*, situés actuellement à des périodes d'environ 20nm avec des dispersions relatives de iSFD de 9.5%.



# Perspectives

Les perspectives et les questions en suspens concernant cette étude sont encore nombreuses. Les mécanismes précis de la synthèse sont encore en cours d'investigation, notamment la nucléation à l'origine de l'interface réseau de nanofils/film de *Pt*. Des études par GISAXS ou SANS sur des échantillons aux premiers stades de la croissance pourraient permettre de caractériser l'arrangement spontané des nanofils en réseau triangulaire, mais également de caractériser la qualité de la cristallinité et d'avoir une mesure de la densité surfacique de *Co* à plusieurs stades de la croissance, pouvant ainsi nous permettre de trancher sur l'existence ou non d'un film provoquant le contact interfil. Des expériences de caractérisation structurale in situ pourraient également apporter beaucoup d'arguments sur la compréhension du mécanisme de synthèse. Ainsi de telles études pourraient nous amener à un perfectionnement de la synthèse nous permettant de moduler la distance interfil et ainsi de moduler l'amplitude du champ d'interaction. L'étude abordée lors du chapitre III démontre que le changement de réactifs peut amener à une modulation structurale. L'utilisation de ligands à longues chaînes serait intéressante pour moduler fortement la distance interfil. Ceci est un réel défi en terme de synthèse dans le sens où les ligands utilisés contrôlent les surfactants enrobant les objets produits mais également les formes et tailles. Egalement de manière à moduler la distance interfil, il est possible de structurer le germe de platine de façon maîtriser la distance entre nanofils.

Concernant les caractérisations structurales, les mesures SAXS doivent être prolongées et devenir systématiques, nous permettant ainsi de connaître la périodicité et le motif du réseau. Cependant les mesures SAXS ne permettent pas de connaître la distance interfil ni le diamètre des fils, il serait donc intéressant de développer des mesures GISAXS permettant l'accès à ces grandeurs. Les effets d'affaissement visibles sur les images *MEB* n'ont pas été inclus dans cette étude, cependant il est évident qu'elles modifient le cycle  $M(H)$ . Leur formation est soupçonnée se produire au moment du séchage de l'échantillon ; des méthodes de séchage supercritiques sont à envisager.

Les microstructures que forme l'aimantation au sein du réseau de nanofil durant le renversement sont encore méconnues. L'imagerie magnétique pourrait éclaircir ce point. Un tableau contenu dans référence [183] p.66, recense les différentes méthodes d'imagerie magnétique. Il n'existe que très peu de méthodes répondant aux exigences des échantillons présentés dans ce manuscrit du fait de l'épaisseur de substrats et des dimensions des domaines susceptibles de se former au sein du réseau de nanofils. Finalement la mesure MFM semble être le meilleur compromis avec une résolution qui peut atteindre 40nm dans les meilleures conditions, ce qui peut être suffisant pour sonder les microstructures de l'aimantation dans le système toluène.

Durant sa thèse, Fanny Béron a proposé une mesure de la réversibilité à partir de mesure FORC. Le prolongement des études FORC serait donc de mettre en œuvre cette mesure de réversibilité afin de se donner la possibilité de corroborer les hypothèses de l'existence d'un film mince reliant les nanofils des réseaux mesurés. En effet un film mince induit des processus réversibles comme la propagation de paroi ou la rotation de moments qui suivent parfaitement le champ externe. De plus lorsque les nanofils sont sujets à un retournement non cohérent, il émerge une partie réversible de l'aimantation, ainsi la mesure de réversibilité peut donner une idée du mode de renversement.

Les simulations micromagnétiques présentées ici peuvent être améliorées, notamment utilisant un code parallélisé en MPI (*message passing interface*) remplaçant OOMMF, pour lequel l'extensibilité du code parallèle est physiquement limitée par la taille du nœud à mémoire partagée

sur lequel il s'exécute. Cette amélioration permettrait d'augmenter le nombre de nanofils simulés, mais surtout de diminuer le temps de calcul qui constitue une véritable barrière.

Concernant les modèles théoriques, plusieurs approches ont été utilisées, avec le formalisme des hystérons ou sur la base des équations du micromagnétisme. Nous avons montré l'apport des calculs micromagnétiques dans la compréhension des comportements intra-nanofil et collectifs. Les résultats présentés ici nécessitent des investigations supplémentaires et plus systématiques afin de confirmer et affiner les interprétations, mais démontrent la nécessité d'utiliser au mieux les calculs micromagnétiques. L'effort doit être poursuivi dans ce sens, notamment pour prendre correctement en compte les effets subtils de couplage direct (échange) et indirect (dipolaire). Il serait également intéressant de développer des approches hybrides micromagnétisme / hystérons, afin de combiner la précision et la souplesse de chacun. Les modèles micromagnétiques permettront de définir au mieux les populations d'hystérons (fonctions de morphologies individuelles), et étudier le comportement collectif d'hystérons lorsque celui-ci est principalement piloté par les effets dipolaires.

Sur le système toluène, les mesures magnétiques révèlent une variation de la susceptibilité différentielle. L'origine de cette variation n'est pas clairement identifiée. Il a été montré que la susceptibilité est affectée par la dispersion en champ de retournement qui peut donc constituer une des origines de cette variation. La variation en anisotropie effective semble également jouer sur la susceptibilité. En effet l'augmentation de l'anisotropie effective semble faire tendre le pseudo-film vers un système bistable, et donc diminue l'interaction magnétisante ce qui peut avoir un effet sur la susceptibilité différentielle. Les simulations micromagnétiques de cycles majeurs mettant en jeu un réseau de nanofils reliés par un pseudo-film de pieds serait un bon moyen de valider cette hypothèse. Le principe serait de construire la courbe  $\chi(K_{mc})$ . D'autre part, à l'aide de mesure de couple magnétique, il est possible d'accéder à la valeur de l'anisotropie magnétocristalline en fonction de la température. Ainsi, si la variation de la susceptibilité est dépendante de l'anisotropie effective, la soustraction de l'anisotropie magnétocristalline déduite de la mesure de couple magnétique, et de la valeur de l'anisotropie effective, déduite de la pente du cycle  $M(H)$ , pourrait permettre de déduire la tendance de l'anisotropie de surface en fonction de la température.

Des mesures de magnétométrie en fonction de l'angle d'application du champ externe permettraient de mieux comprendre les mécanismes, notamment aucunes mesures avec le champ externe appliqué dans le plan du réseau n'ont été étudiées.

Enfin, une autre voie possible pour répondre aux lacunes que présente le modèle de champ moyen concerne les phénomènes microscopiques. Une des améliorations possibles se trouve dans la résolution du modèle d'Ising en deux dimensions. En effet, le modèle d'Ising est parfaitement adapté à un réseau d'entités bistables (*i.e.* spin  $\frac{1}{2}$ ) et est exactement soluble en deux dimensions. Ce modèle peut permettre le calcul de la fonctionnelle de l'énergie libre exacte d'un réseau de nanofils aimantés, approximés comme bistables, et ainsi de formuler un problème dans le cadre de la théorie de Ginzburg-Landau. Grâce à cette théorie il est possible d'une part, de prédire théoriquement les phénomènes critiques, comme la nucléation de domaines, et leur classe d'universalité en fonction de l'énergie réseau, et donc du champ externe et du champ d'interaction, et d'autre part d'accéder à la longueur de corrélation en fonction de la distance entre premiers voisins de façon à formuler l'existence de phases et de comportement collectif telles que ceux mis en lumière par la géométrie que prend  $\rho_{FORC}$  dans le diagramme FORC. Un exemple de ce type d'étude est présenté dans la référence [184]. Il est également possible d'ajouter une interaction d'échange à ce type de modèle pour rendre compte des mesures présentées dans ce manuscrit d'une part et d'autre part de répondre à la question du changement de classe d'universalité des phénomènes critiques ayant lieu durant le renversement du réseau.





## Références

- [1] C. Achkar, “Etudes de nanostructures magnétiques auto-organisées et épitaxiées par synthèse organométallique en solution sur des surfaces cristallines,” PhD Thesis, INSA de Toulouse, 2014.
- [2] N. Liakakos, “Organometallic approach to the growth of metallic magnetic nanoparticles in solution and on substrates,” PhD Thesis, INSA de Toulouse, 2013.
- [3] E. P. Wohlfarth, “A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys,” *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A*, vol. 240, no. 826, pp. 599–642, 1948.
- [4] J. A. Osborn, “Demagnetizing Factors of the General Ellipsoid,” *Phys Rev*, vol. 67, no. 11–12, pp. 351–357, Jun. 1945.
- [5] L. Sun, Y. Hao, C.-L. Chien, and P. C. Searson, “Tuning the properties of magnetic nanowires,” *IBM J. Res. Dev.*, vol. 49, no. 1, pp. 79–102, 2005.
- [6] D.-X. Chen, J. A. Brug, and R. B. Goldfarb, “Demagnetizing factors for cylinders,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 27, no. 4, pp. 3601–3619, 1991.
- [7] F. Ono and H. Maeta, “Thermal expansion and magnetocrystalline anisotropy in hcp cobalt,” *Phys. B Condens. Matter*, vol. 161, no. 1–3, pp. 134–138, 1990.
- [8] L. Néel, “Anisotropie magnétique superficielle et surstructures d’orientation,” *J. Phys. Radium*, vol. 15, no. 4, pp. 225–239, 1954.
- [9] M. Johnson, P. J. H. Bloemen, F. J. A. den Broeder, and J. J. de Vries, “Magnetic anisotropy in metallic multilayers.” *Rep. Prog. Phys.* 59 1409, 25-Jul-1996.
- [10] P. Bruno, “Magnetic surface anisotropy of cobalt and surface roughness effects within Neel’s model,” *J. Phys. F Met. Phys.*, vol. 18, no. 6, p. 1291, 1988.
- [11] C. Chappert and P. Bruno, “Magnetic anisotropy in metallic ultrathin films and related experiments on cobalt films (invited),” *J. Appl. Phys.*, vol. 64, no. 10, pp. 5736–5741, Nov. 1988.
- [12] T. Blon, “Anisotropie magnétique perpendiculaire de films ultraminesces métal/cobalt/métal, maîtrise des interfaces : de l’épitaxie à l’irradiation ionique,” PhD Thesis, Université Paul Sabatier, Toulouse, 2005.
- [13] W. F. Brown Jr, “Thermal fluctuations of a single-domain particle,” *Phys. Rev.*, vol. 130, no. 5, p. 1677, 1963.
- [14] L. Néel, “Théorie du traînage magnétique des substances massives dans le domaine de Rayleigh,” *J. Phys. Radium*, vol. 11, no. 2, pp. 49–61, 1950.
- [15] R. H. Victora, “Predicted time dependence of the switching field for magnetic materials,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 63, no. 4, p. 457, 1989.
- [16] P. Schio *et al.*, “Magnetic response of cobalt nanowires with diameter below 5 nm,” *Phys. Rev. B*, vol. 82, no. 9, Sep. 2010.
- [17] H. Zeng, R. Skomski, L. Menon, Y. Liu, S. Bandyopadhyay, and D. J. Sellmyer, “Structure and magnetic properties of ferromagnetic nanowires in self-assembled arrays,” *Phys. Rev. B*, vol. 65, no. 13, Mar. 2002.
- [18] A. Aharoni, “Thermal agitation of single domain particles,” *Phys. Rev.*, vol. 135, no. 2A, p. A447, 1964.
- [19] M. P. Sharrock, “Time dependence of switching fields in magnetic recording media (invited),” *J. Appl. Phys.*, vol. 76, no. 10, pp. 6413–6418, Nov. 1994.
- [20] W. Wernsdorfer *et al.*, “Nucleation of magnetization reversal in individual nanosized nickel wires,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 77, no. 9, p. 1873, 1996.
- [21] W. Wernsdorfer *et al.*, “Measurements of magnetization switching in individual nickel nanowires,” *Phys. Rev. B*, vol. 55, no. 17, p. 11552, 1997.
- [22] W. Wernsdorfer *et al.*, “Experimental evidence of the Néel-Brown model of magnetization reversal,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 78, no. 9, p. 1791, 1997.
- [23] W. F. Brown Jr, “Criterion for Uniform Micromagnetization,” *Phys. Rev.*, vol. 105, no. 60, pp. 1479–82, Aug. 1956.

- [24] H. Forster, T. Schrefl, W. Scholz, D. Suess, V. Tsiantos, and J. Fidler, "Micromagnetic simulation of domain wall motion in magnetic nano-wires," *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 249, no. 1–2, pp. 181–186, 2002.
- [25] W. F. Brown Jr, "Theory of the approach to magnetic saturation," *Phys. Rev.*, vol. 58, no. 8, p. 736, 1940.
- [26] E. H. Frei, S. Shtrikman, and D. Treves, "Critical size and nucleation field of ideal ferromagnetic particles," *Phys. Rev.*, vol. 106, no. 3, p. 446, 1957.
- [27] M. Vázquez and L. G. Vivas, "Magnetization reversal in Co-base nanowire arrays," *Phys. Status Solidi B*, vol. 248, no. 10, pp. 2368–2381, Oct. 2011.
- [28] H. Kronmüller and M. Fähnle, *Micromagnetism and the Microstructure of Ferromagnetic Solids*. Cambridge University Press, 2003.
- [29] A. Aharoni, *Introduction to the Theory of Ferromagnetism*. Clarendon Press, 2000.
- [30] A. Aharoni, "Angular dependence of nucleation by curling in a prolate spheroid," *J. Appl. Phys.*, vol. 82, no. 3, pp. 1281–1287, Aug. 1997.
- [31] A. Aharoni and S. Shtrikman, "Magnetization curve of the infinite cylinder," *Phys. Rev.*, vol. 109, no. 5, p. 1522, 1958.
- [32] R. Skomski and J. M. D. Coey, *Permanent Magnetism*. Taylor & Francis, 1999.
- [33] A. Aharoni, "Theoretical search for domain nucleation," *Rev. Mod. Phys.*, vol. 34, no. 2, p. 227, 1962.
- [34] H. Kronmüller, "Mikromagnetische berechnung der magnetisierung in der umgebung unmagnetischer einschlüsse in ferromagnetika," *Z Phys*, vol. 168, no. 5, pp. 478–494, Oct. 1962.
- [35] G. S. Abo, Y.-K. Hong, J. Park, J. Lee, W. Lee, and B.-C. Choi, "Definition of Magnetic Exchange Length," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 49, no. 8, pp. 4937–4939, Aug. 2013.
- [36] R. Skomski, "Nanomagnetics," *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 15, no. 20, p. R841, 2003.
- [37] T. Maurer, "Magnetism of anisotropic nano-objects: Magnetic and neutron studies of Co (1-x) Ni (x) nanowires." Université Paris Sud-Paris XI, 2009.
- [38] G. Bertotti, Ed., *Hysteresis in Magnetism*. San Diego: Academic Press, 1998.
- [39] F. J. Bonilla, L.-M. Lacroix, and T. Blon, "Magnetic ground states in nanocuboids of cubic magnetocrystalline anisotropy," *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 428, pp. 394–400, Apr. 2017.
- [40] C. Gatel *et al.*, "Size-Specific Spin Configurations in Single Iron Nanomagnet: From Flower to Exotic Vortices," *Nano Lett.*, vol. 15, no. 10, pp. 6952–6957, Oct. 2015.
- [41] E. Snoeck *et al.*, "Magnetic Configurations of 30 nm Iron Nanocubes Studied by Electron Holography," *Nano Lett.*, vol. 8, no. 12, pp. 4293–4298, Dec. 2008.
- [42] M. J. Donahue and D. G. Porter, *OOMMF: Object Oriented MicroMagnetic Framework*. 2016.
- [43] C. H. Stapper, "Micromagnetic Solutions for Ferromagnetic Spheres," *J. Appl. Phys.*, vol. 40, no. 2, pp. 798–802, Feb. 1969.
- [44] C. Garnero, "Synthèse organométallique de nanoparticules de FeCo pour l'intégration sur inductance," PhD Thesis, Toulouse, INSA, 2016.
- [45] R. S. Sundar and S. C. Deevi, "Soft magnetic FeCo alloys: alloy development, processing, and properties," *Int. Mater. Rev.*, vol. 50, no. 3, pp. 157–192, Jun. 2005.
- [46] N. Nagaosa and Y. Tokura, "Topological properties and dynamics of magnetic skyrmions," *Nat. Nanotechnol.*, vol. 8, no. 12, pp. 899–911, Dec. 2013.
- [47] A. Arrott, B. Heinrich, and A. Aharoni, "Point singularities and magnetization reversal in ideally soft ferromagnetic cylinders," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 15, no. 5, pp. 1228–1235, Sep. 1979.
- [48] S. Da Col *et al.*, "Observation of Bloch-point domain walls in cylindrical magnetic nanowires," *Phys. Rev. B*, vol. 89, no. 18, May 2014.
- [49] R. Hertel, "Micromagnetic simulations of magnetostatically coupled Nickel nanowires," *J. Appl. Phys.*, vol. 90, no. 11, pp. 5752–5758, Dec. 2001.
- [50] R. Hertel, "Computational micromagnetism of magnetization processes in nickel nanowires," *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 249, no. 1, pp. 251–256, 2002.
- [51] R. Hertel and J. Kirschner, "Magnetization reversal dynamics in nickel nanowires," *Phys. B Condens. Matter*, vol. 343, no. 1–4, pp. 206–210, Jan. 2004.

- [52] P. Landeros, S. Allende, J. Escrig, E. Salcedo, D. Altbir, and E. E. Vogel, "Reversal modes in magnetic nanotubes," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 90, no. 10, p. 102501, Mar. 2007.
- [53] R. Lavin, J. C. Denardin, J. Escrig, D. Altbir, A. Cortes, and H. Gomez, "Magnetic Characterization of Nanowire Arrays Using First Order Reversal Curves," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 44, no. 11, pp. 2808–2811, Nov. 2008.
- [54] S. Allende, J. Escrig, D. Altbir, E. Salcedo, and M. Bahiana, "Angular dependence of the transverse and vortex modes in magnetic nanotubes," *Eur. Phys. J. B*, vol. 66, no. 1, pp. 37–40, Nov. 2008.
- [55] H. J. Richter, "The transition from longitudinal to perpendicular recording," *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 40, no. 9, pp. R149–R177, May 2007.
- [56] L.-P. Carignan, C. Lacroix, A. Ouimet, M. Ciureanu, A. Yelon, and D. Ménard, "Magnetic anisotropy in arrays of Ni, CoFeB, and Ni/Cu nanowires," *J. Appl. Phys.*, vol. 102, no. 2, p. 023905, Jul. 2007.
- [57] S. Vock, C. Hengst, Z. Sasvári, R. Schäfer, L. Schultz, and V. Neu, "The role of the inhomogeneous demagnetizing field on the reversal mechanism in nanowire arrays," *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 50, no. 47, p. 475002, Nov. 2017.
- [58] I. Dumitru, F. Li, J. B. Wiley, D. Cimpoesu, A. Stancu, and L. Spinu, "Study of magnetic interactions in metallic nanowire networks," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 41, no. 10, pp. 3361–3363, 2005.
- [59] J. D. Jackson, *Classical electrodynamics*, 2. ed. New York: Wiley, 1975.
- [60] L. Clime, P. Ciureanu, and A. Yelon, "Magnetostatic interactions in dense nanowire arrays," *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 297, no. 1, pp. 60–70, Feb. 2006.
- [61] L.-P. Carignan, "MODELISATION, DEVELOPPEMENT ET CARACTERISATION DE MATERIAUX MAGNETIQUES A BASE DE NANOFILS FERROMAGNETIQUES POUR LES TECHNOLOGIES HYPERFREQUENCES," PhD Thesis, école polytechnique de Montréal, Montréal, 2012.
- [62] K. M. Lebecki, M. J. Donahue, and M. W. Gutowski, "Periodic boundary conditions for demagnetization interactions in micromagnetic simulations," *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 41, no. 17, p. 175005, Sep. 2008.
- [63] T. Hauet *et al.*, "Reversal mechanism, switching field distribution, and dipolar frustrations in Co/Pt bit pattern media based on auto-assembled anodic alumina hexagonal nanobump arrays," *Phys. Rev. B*, vol. 89, no. 17, May 2014.
- [64] G. Möller and R. Moessner, "Magnetic multipole analysis of kagome and artificial spin-ice dipolar arrays," *Phys. Rev. B*, vol. 80, no. 14, Oct. 2009.
- [65] S. V. Isakov, R. Moessner, and S. L. Sondhi, "Why Spin Ice Obeys the Ice Rules," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 95, no. 21, Nov. 2005.
- [66] N. Rougemaille *et al.*, "Artificial Kagome Arrays of Nanomagnets: A Frozen Dipolar Spin Ice," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 106, no. 5, Feb. 2011.
- [67] M. Pousthomis *et al.*, "Localized magnetization reversal processes in cobalt nanorods with different aspect ratios," *Nano Res.*, vol. 8, no. 7, pp. 2231–2241, Jul. 2015.
- [68] R. G. Melko, B. C. den Hertog, and M. J. P. Gingras, "Long-Range Order at Low Temperatures in Dipolar Spin Ice," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 87, no. 6, Jul. 2001.
- [69] M. J. Gingras, "Spin ice," *ArXiv Prepr. ArXiv09032772*, 2009.
- [70] F. Zighem, T. Maurer, F. Ott, and G. Chaboussant, "Dipolar interactions in arrays of ferromagnetic nanowires: A micromagnetic study," *J. Appl. Phys.*, vol. 109, no. 1, p. 013910, Jan. 2011.
- [71] I. Panagiotopoulos *et al.*, "Packing fraction dependence of the coercivity and the energy product in nanowire based permanent magnets," *J. Appl. Phys.*, vol. 114, no. 14, p. 143902, Oct. 2013.
- [72] H.-J. Li *et al.*, "Effects of dipolar interactions on magnetic properties of Co nanowire arrays," *Chin. Phys. B*, vol. 26, no. 11, p. 117503, Oct. 2017.
- [73] P. Sergelius *et al.*, "Statistical magnetometry on isolated NiCo nanowires and nanowire arrays: a comparative study," *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 49, no. 14, p. 145005, Apr. 2016.
- [74] H. Fangohr, M. Albert, and M. Franchin, "Nmag micromagnetic simulation tool: software engineering lessons learned," 2016, pp. 1–7.

- [75] S. Umeki, H. Sugihara, Y. Taketomi, and Y. Imaoka, "The dependence of the coercivity on the volume packing fraction for magnetic particles," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 17, no. 6, pp. 3014–3016, Nov. 1981.
- [76] C. Chang and J. Shyu, "Nonlinear effect of small volume fraction on the coercivity for acicular particles," *J. Appl. Phys.*, vol. 73, no. 10, pp. 6659–6661, May 1993.
- [77] P. Toson, A. Asali, W. Wallisch, G. Zickler, and J. Fidler, "Nanostructured Hard Magnets: A Micromagnetic Study," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 51, no. 1, pp. 1–4, Jan. 2015.
- [78] A. Berger, Y. Xu, B. Lengsfeld, Y. Ikeda, and E. E. Fullerton, " $\Delta H ( M , \Delta M )$  method for the determination of intrinsic switching field distributions in perpendicular media," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 41, no. 10, pp. 3178–3180, Oct. 2005.
- [79] M. Winklhofer and G. T. Zimanyi, "Extracting the intrinsic switching field distribution in perpendicular media: A comparative analysis," *J. Appl. Phys.*, vol. 99, no. 8, p. 08E710, Apr. 2006.
- [80] R. J. M. van de Veerdonk, Xiaowei Wu, and D. Weller, "Determination of switching field distributions for perpendicular recording media," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 39, no. 1, pp. 590–593, Jan. 2003.
- [81] I. Tagawa and Y. Nakamura, "Relationships between high density recording performance and particle coercivity distribution," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 27, no. 6, pp. 4975–4977, 1991.
- [82] Y. Liu, K. A. Dahmen, and A. Berger, "Determination of intrinsic switching field distributions in perpendicular recording media: Numerical study of the  $\Delta H ( M , \Delta M )$  method," *Phys. Rev. B*, vol. 77, no. 5, Feb. 2008.
- [83] P. Postolache, M. Cerchez, L. Stoleriu, and A. Stancu, "Experimental evaluation of the preisach distribution for magnetic recording media," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 39, no. 5, pp. 2531–2533, Sep. 2003.
- [84] F. Béron, "PROPRIÉTÉS MAGNÉTOSTATIQUES DE RÉSEAUX DE NANOFILS VIA LES COURBES DE RENVERSEMENT DU PREMIER ORDRE," PhD Thesis, UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL, Montréal, 2008.
- [85] A. Berger, B. Lengsfeld, and Y. Ikeda, "Determination of intrinsic switching field distributions in perpendicular recording media (invited)," *J. Appl. Phys.*, vol. 99, no. 8, p. 08E705, Apr. 2006.
- [86] F. Preisach, "Über die magnetische Nachwirkung," *Z. Für Phys.*, vol. 94, no. 5–6, pp. 277–302, 1935.
- [87] M. A. Krasnosel'skiĭ and A. V. Pokrovskiĭ, *Systems with Hysteresis*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 1989.
- [88] I. D. Mayergoyz, "Hysteresis models from the mathematical and control theory points of view," *J. Appl. Phys.*, vol. 57, no. 8, pp. 3803–3805, Apr. 1985.
- [89] I. Mayergoyz, "Mathematical models of hysteresis," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 22, no. 5, pp. 603–608, 1986.
- [90] G. Kadar, E. Kisdi-Kszo, L. Kiss, I. Popocky, M. Zatroch, and E. Della Torre, "Bilinear product Preisach modeling of magnetic hysteresis curves," in *International Magnetism Conference*, 1989, pp. HC4-HC4.
- [91] G. Biorci and D. Pescetti, "Analytical theory of the behaviour of ferromagnetic materials," *Il Nuovo Cimento 1955-1965*, vol. 7, no. 6, pp. 829–842, Mar. 1958.
- [92] I. Bodale, L. Stoleriu, and A. Stancu, "Reversible and Irreversible Components Evaluation in Hysteretic Processes Using First and Second-Order Magnetization Curves," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 47, no. 1, pp. 192–197, Jan. 2011.
- [93] E. Della Torre, "Effect of interaction on the magnetization of single-domain particles," *IEEE Transactions on audio and electroacoustics*, vol. AU-14, no. 2, pp. 86–93, Jun. 1966.
- [94] E. Della Torre and F. Vajda, "Parameter identification of the complete-moving-hysteresis model using major loop data," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 30, no. 6, pp. 4987–5000, 1994.
- [95] C. Papisoi, M. Desai, and R. Acharya, "Evaluation of intergranular exchange coupling and magnetic domain size in  $\text{CoCrPt-SiO}_x$  thin films with perpendicular anisotropy," *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 48, no. 21, p. 215005, Jun. 2015.
- [96] T. Schrefl, T. Shoji, M. Winklhofer, H. Oezelt, M. Yano, and G. Zimanyi, "First order reversal curve studies of permanent magnets," *J. Appl. Phys.*, vol. 111, no. 7, p. 07A728, Apr. 2012.

- [97] Y. Han and J. Zhu, "Implementation procedure for the generalized moving Preisach model based on a first order reversal curve diagram," *Rare Met.*, vol. 28, no. 4, pp. 355–360, Aug. 2009.
- [98] R. Tanasa and A. Stancu, "Statistical Characterization of the FORC Diagram," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 42, no. 10, pp. 3246–3248, Oct. 2006.
- [99] L. Stoleriu, I. Bodale, A. Apetrei, and A. Stancu, "Realistic Reversible Magnetization Component in Preisach-Type Models," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 46, no. 6, pp. 2341–2344, Jun. 2010.
- [100] A. Stancu and E. Macsim, "Interaction Field Distribution in Longitudinal and Perpendicular Structured Particulate Media," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 42, no. 10, pp. 3162–3164, Oct. 2006.
- [101] S. Ruta, O. Hovorka, P.-W. Huang, K. Wang, G. Ju, and R. Chantrell, "First order reversal curves and intrinsic parameter determination for magnetic materials; limitations of hysteron-based approaches in correlated systems," *Sci. Rep.*, vol. 7, p. 45218, Mar. 2017.
- [102] C. R. Pike, A. P. Roberts, and K. L. Verosub, "Characterizing interactions in fine magnetic particle systems using first order reversal curves," *J. Appl. Phys.*, vol. 85, no. 9, pp. 6660–6667, May 1999.
- [103] R. Egli, "Theoretical aspects of dipolar interactions and their appearance in first-order reversal curves of thermally activated single-domain particles: INTERACTIONS IN FORCS," *J. Geophys. Res. Solid Earth*, vol. 111, no. B12, p. n/a-n/a, Dec. 2006.
- [104] A. R. Muxworthy, "Assessing the ability of first-order reversal curve (FORC) diagrams to unravel complex magnetic signals," *J. Geophys. Res.*, vol. 110, no. B1, 2005.
- [105] A. Muxworthy, D. Heslop, and W. Williams, "Influence of magnetostatic interactions on first-order-reversal-curve (FORC) diagrams: a micromagnetic approach: FORC diagrams and interactions," *Geophys. J. Int.*, vol. 158, no. 3, pp. 888–897, Jul. 2004.
- [106] A. R. Muxworthy and D. J. Dunlop, "First-order reversal curve (FORC) diagrams for pseudo-single-domain magnetites at high temperature," *Earth Planet. Sci. Lett.*, vol. 203, no. 1, pp. 369–382, 2002.
- [107] A. Muxworthy and W. Williams, "Magnetostatic interaction fields in first-order-reversal-curve diagrams," *J. Appl. Phys.*, vol. 97, no. 6, p. 063905, Mar. 2005.
- [108] C. Carvallo, A. R. Muxworthy, D. J. Dunlop, and W. Williams, "Micromagnetic modeling of first-order reversal curve (FORC) diagrams for single-domain and pseudo-single-domain magnetite," *Earth Planet. Sci. Lett.*, vol. 213, no. 3–4, pp. 375–390, Aug. 2003.
- [109] C. R. Pike, A. P. Roberts, M. J. Dekkers, and K. L. Verosub, "An investigation of multi-domain hysteresis mechanisms using FORC diagrams," *Phys. Earth Planet. Inter.*, vol. 126, no. 1–2, pp. 11–25, 2001.
- [110] A. P. Roberts, C. R. Pike, and K. L. Verosub, "First-order reversal curve diagrams: A new tool for characterizing the magnetic properties of natural samples," *J. Geophys. Res. Solid Earth*, vol. 105, no. B12, pp. 28461–28475.
- [111] C.-I. Dobrotă and A. Stancu, "What does a first-order reversal curve diagram really mean? A study case: Array of ferromagnetic nanowires," *J. Appl. Phys.*, vol. 113, no. 4, p. 043928, Jan. 2013.
- [112] C.-I. Dobrotă and A. Stancu, "Tracking the individual magnetic wires' switchings in ferromagnetic nanowire arrays using the first-order reversal curves (FORC) diagram method," *Phys. B Condens. Matter*, vol. 457, pp. 280–286, Jan. 2015.
- [113] F. Béron, D. Ménard, and A. Yelon, "First-order reversal curve diagrams of magnetic entities with mean interaction field: A physical analysis perspective," *J. Appl. Phys.*, vol. 103, no. 7, p. 07D908, Apr. 2008.
- [114] F. Béron, L.-P. Carignan, D. Ménard, and A. Yelon, "Extracting individual properties from global behaviour: first-order reversal curve method applied to magnetic nanowire arrays," in *Electrodeposited Nanowires and Their Applications*, InTech, 2010.
- [115] L. Spinu, A. Stancu, C. Radu, F. Li, and J. B. Wiley, "Method for Magnetic Characterization of Nanowire Structures," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 40, no. 4, pp. 2116–2118, Jul. 2004.

- [116] S. Samanifar, M. A. Kashi, and A. Ramazani, "Study of reversible magnetization in FeCoNi alloy nanowires with different diameters by first order reversal curve (FORC) diagrams," *Phys. C Supercond. Its Appl.*, vol. 548, pp. 72–74, May 2018.
- [117] X. Kou *et al.*, "Memory Effect in Magnetic Nanowire Arrays," *Adv. Mater.*, vol. 23, no. 11, pp. 1393–1397, Mar. 2011.
- [118] A. Rotaru *et al.*, "Interactions and reversal-field memory in complex magnetic nanowire arrays," *Phys. Rev. B*, vol. 84, no. 13, Oct. 2011.
- [119] M. P. Proenca, C. T. Sousa, J. Ventura, J. Garcia, M. Vazquez, and J. P. Araujo, "Identifying weakly-interacting single domain states in Ni nanowire arrays by FORC," *J. Alloys Compd.*, vol. 699, pp. 421–429, Mar. 2017.
- [120] S. Samanifara, M. A. Kashia, and A. Ramazania, "Magnetic Characterization of Fe<sub>0.49</sub>Co<sub>0.41</sub>Ni<sub>0.10</sub> Nanowire Arrays by First Order Reversal Curve Diagrams," in *Proc. of the 5rd Conference on Nanostructures, Kish Island, Iran, 2014*.
- [121] L. C. C. Arzuza, R. López-Ruiz, D. Salazar-Aravena, M. Knobel, F. Béron, and K. R. Pirota, "Domain wall propagation tuning in magnetic nanowires through geometric modulation," *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 432, pp. 309–317, Jun. 2017.
- [122] A. Ramazani, V. Asgari, A. H. Montazer, and M. Almasi Kashi, "Tuning magnetic fingerprints of FeNi nanowire arrays by varying length and diameter," *Curr. Appl. Phys.*, vol. 15, no. 7, pp. 819–828, Jul. 2015.
- [123] V. Vega *et al.*, "Template-Assisted CoPd Nanowire Arrays: Magnetic Properties and FORC Analysis," *J. Nanosci. Nanotechnol.*, vol. 12, no. 6, pp. 4736–4743, Jun. 2012.
- [124] T. R. F. Peixoto and D. R. Cornejo, "Characterizing magnetic interactions in Ni nanowires by FORC analysis," *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 320, no. 14, pp. e279–e282, Jul. 2008.
- [125] M. P. Proenca, C. T. Sousa, J. Escrig, J. Ventura, M. Vazquez, and J. P. Araujo, "Magnetic interactions and reversal mechanisms in Co nanowire and nanotube arrays," *J. Appl. Phys.*, vol. 113, no. 9, p. 093907, Mar. 2013.
- [126] F. Béron, L. Clime, M. Ciureanu, D. Ménard, R. W. Cochrane, and A. Yelon, "Magnetostatic Interactions and Coercivities of Ferromagnetic Soft Nanowires in Uniform Length Arrays," *J. Nanosci. Nanotechnol.*, vol. 8, no. 6, pp. 2944–2954, Jun. 2008.
- [127] C. Papusoi, K. Srinivasan, and R. Acharya, "Study of grain interactions in perpendicular magnetic recording media using first order reversal curve diagrams," *J. Appl. Phys.*, vol. 110, no. 8, p. 083908, Oct. 2011.
- [128] E. M. Palmero, F. Béron, C. Bran, R. P. del Real, and M. Vázquez, "Magnetic interactions in compositionally modulated nanowire arrays," *Nanotechnology*, vol. 27, no. 43, p. 435705, Oct. 2016.
- [129] C. R. Pike, C. A. Ross, R. T. Scalettar, and G. Zimanyi, "First-order reversal curve diagram analysis of a perpendicular nickel nanopillar array," *Phys. Rev. B*, vol. 71, no. 13, Apr. 2005.
- [130] J. Dobson, "Remote control of cellular behaviour with magnetic nanoparticles," *Nat. Nanotechnol.*, vol. 3, no. 3, p. 139, 2008.
- [131] N. Liakakos *et al.*, "Solution Epitaxial Growth of Cobalt Nanowires on Crystalline Substrates for Data Storage Densities beyond 1 Tbit/in<sup>2</sup>," *Nano Lett.*, vol. 14, no. 6, pp. 3481–3486, Jun. 2014.
- [132] N. Liakakos *et al.*, "Oriented Metallic Nano-Objects on Crystalline Surfaces by Solution Epitaxial Growth," *ACS Nano*, vol. 9, no. 10, pp. 9665–9677, Oct. 2015.
- [133] N. Liakakos *et al.*, "The Big Impact of a Small Detail: Cobalt Nanocrystal Polymorphism as a Result of Precursor Addition Rate during Stock Solution Preparation," *J. Am. Chem. Soc.*, vol. 134, no. 43, pp. 17922–17931, Oct. 2012.
- [134] K. Soulantica *et al.*, "Magnetism of single-crystalline Co nanorods," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 95, no. 15, p. 152504, Oct. 2009.
- [135] F. Wetz, K. Soulantica, A. Falqui, M. Respaud, E. Snoeck, and B. Chaudret, "Hybrid Co–Au Nanorods: Controlling Au Nucleation and Location," *Angew. Chem. Int. Ed.*, vol. 46, no. 37, pp. 7079–7081, Sep. 2007.

- [136] P. Grütter and U. T. Dürig, "Growth of vapor-deposited cobalt films on Pt (111) studied by scanning tunneling microscopy," *Phys. Rev. B*, vol. 49, no. 3, p. 2021, 1994.
- [137] B. Cormary, F. Dumestre, N. Liakakos, K. Soulantica, and B. Chaudret, "Organometallic precursors of nano-objects, a critical view," *Dalton Trans.*, vol. 42, no. 35, p. 12546, 2013.
- [138] B. Cormary *et al.*, "Concerted Growth and Ordering of Cobalt Nanorod Arrays as Revealed by Tandem in Situ SAXS-XAS Studies," *J. Am. Chem. Soc.*, vol. 138, no. 27, pp. 8422–8431, Jul. 2016.
- [139] B. D. Cullity and C. D. Graham, *Introduction to magnetic materials*, 2. ed. Piscataway, NJ: IEEE Press, 2009.
- [140] S. Wirth, M. Field, D. D. Awschalom, and S. Von Molnár, "Magnetization behavior of nanometer-scale iron particles," *Phys. Rev. B*, vol. 57, no. 22, p. R14028, 1998.
- [141] H. Tetsukawa and H. Kondo, "Activation volume and interaction of metal particulate media," *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 295, no. 3, pp. 191–196, Sep. 2005.
- [142] W. O. Rosa, L. G. Vivas, K. R. Pirota, A. Asenjo, and M. Vázquez, "Influence of aspect ratio and anisotropy distribution in ordered CoNi nanowire arrays," *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 324, no. 22, pp. 3679–3682, Nov. 2012.
- [143] L. G. Vivas *et al.*, "Magnetic anisotropy in CoNi nanowire arrays: Analytical calculations and experiments," *Phys. Rev. B*, vol. 85, no. 3, Jan. 2012.
- [144] D. Hinzke and U. Nowak, "Magnetization switching in nanowires: Monte Carlo study with fast Fourier transformation for dipolar fields," *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 221, no. 3, pp. 365–372, 2000.
- [145] J. M. Martínez Huerta, J. De La Torre Medina, L. Piraux, and A. Encinas, "Self consistent measurement and removal of the dipolar interaction field in magnetic particle assemblies and the determination of their intrinsic switching field distribution," *J. Appl. Phys.*, vol. 111, no. 8, p. 083914, Apr. 2012.
- [146] T. Schrefl, T. Shoji, M. Winklhofer, H. Oezelt, M. Yano, and G. Zimanyi, "First order reversal curve studies of permanent magnets," *J. Appl. Phys.*, vol. 111, no. 7, p. 07A728, Apr. 2012.
- [147] G. T. Zimanyi and M. Winklhofer, "The FORC  $\alpha$ . M2. S Method and its Applications," in *Electromagnetics in Advanced Applications, 2009. ICEAA'09. International Conference on*, 2009, pp. 979–982.
- [148] R. K. Dumas, C.-P. Li, I. V. Roshchin, I. K. Schuller, and K. Liu, "Magnetic fingerprints of sub-100 nm Fe dots," *Phys. Rev. B*, vol. 75, no. 13, Apr. 2007.
- [149] M. Winklhofer, R. K. Dumas, and K. Liu, "Identifying reversible and irreversible magnetization changes in prototype patterned media using first- and second-order reversal curves," *J. Appl. Phys.*, vol. 103, no. 7, p. 07C518, Apr. 2008.
- [150] J. E. Davies, O. Hellwig, E. E. Fullerton, and K. Liu, "Temperature-dependent magnetization reversal in (Co/Pt)/Ru multilayers," *Phys. Rev. B*, vol. 77, no. 1, Jan. 2008.
- [151] D. Navas *et al.*, "Microscopic reversal magnetization mechanisms in CoCrPt thin films with perpendicular magnetic anisotropy: Fractal structure versus labyrinth stripe domains," *Phys. Rev. B*, vol. 96, no. 18, Nov. 2017.
- [152] J. B. Abugri, P. B. Visscher, S. Gupta, P. J. Chen, and R. D. Shull, "FORC+ analysis of perpendicular magnetic tunnel junctions," *J. Appl. Phys.*, vol. 124, no. 4, p. 043901, Jul. 2018.
- [153] Y. Cao *et al.*, "Hysteresis in single and polycrystalline iron thin films: Major and minor loops, first order reversal curves, and Preisach modeling," *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 395, pp. 361–375, Dec. 2015.
- [154] T. R. Albrecht *et al.*, "Bit-Patterned Magnetic Recording: Theory, Media Fabrication, and Recording Performance," *IEEE Trans. Magn.*, vol. 51, no. 5, pp. 1–42, May 2015.
- [155] C.-I. Dobrotă and A. Stancu, "PKP simulation of size effect on interaction field distribution in highly ordered ferromagnetic nanowire arrays," *Phys. B Condens. Matter*, vol. 407, no. 24, pp. 4676–4685, Dec. 2012.
- [156] X. Wen, J. S. Andrew, and D. P. Arnold, "Exchange-coupled hard magnetic Fe-Co/CoPt nanocomposite films fabricated by electro-infiltration," *AIP Adv.*, vol. 7, no. 5, p. 056225, May 2017.

- [157] H. G. Katzgraber *et al.*, “Reversal-Field Memory in the Hysteresis of Spin Glasses,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 89, no. 25, Dec. 2002.
- [158] A. Markou, I. Panagiotopoulos, T. Bakas, P. Postolache, L. Stoleriu, and A. Stancu, “Magnetization reversal in graded anisotropy Co/Pt multilayers: A first order reversal curve study,” *J. Appl. Phys.*, vol. 112, no. 12, p. 123914, Dec. 2012.
- [159] J. E. Davies, O. Hellwig, E. E. Fullerton, G. Denbeaux, J. B. Kortright, and K. Liu, “Magnetization reversal of Co/Pt multilayers: Microscopic origin of high-field magnetic irreversibility,” *Phys. Rev. B*, vol. 70, no. 22, Dec. 2004.
- [160] K. Nielsch *et al.*, “High density hexagonal nickel nanowire array,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 249, no. 1–2, pp. 234–240, 2002.
- [161] K. Nielsch *et al.*, “Hexagonally ordered 100 nm period nickel nanowire arrays,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 79, no. 9, pp. 1360–1362, Aug. 2001.
- [162] A. Hubert and R. Schäfer, *Magnetic domains: the analysis of magnetic microstructures*, Corr. print., [Nachdr.]. Berlin: Springer, 2011.
- [163] D. Navas *et al.*, “Magnetic behavior of Ni<sub>x</sub>Fe<sub>(100-x)</sub> (65 ≤ x ≤ 100) nanowire arrays,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 290–291, pp. 191–194, Apr. 2005.
- [164] A. Asenjo, M. Jaafar, D. Navas, and M. Vázquez, “Quantitative magnetic force microscopy analysis of the magnetization process in nanowire arrays,” *J. Appl. Phys.*, vol. 100, no. 2, p. 023909, Jul. 2006.
- [165] J. Yuan *et al.*, “Study on magnetization reversal of cobalt nanowire arrays by magnetic force microscopy,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 320, no. 5, pp. 736–741, Mar. 2008.
- [166] L. Cattaneo *et al.*, “Electrodeposition of hexagonal Co nanowires with large magnetocrystalline anisotropy,” *Electrochimica Acta*, vol. 85, pp. 57–65, Dec. 2012.
- [167] M. R. Tabasum, F. Zighem, J. De La Torre Medina, L. Piraux, and B. Nysten, “Intrinsic Switching Field Distribution of Arrays of Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> Nanowires Probed by In Situ Magnetic Force Microscopy,” *J. Supercond. Nov. Magn.*, vol. 26, no. 4, pp. 1375–1379, Apr. 2013.
- [168] D. Pecko, M. S. Arshad, S. Sturm, S. Kobe, and K. Z. Rozman, “Magnetization-Switching Study of fcc Fe–Pd Nanowire and Nanowire Arrays Studied by In-Field Magnetic Force Microscopy,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 51, no. 10, pp. 1–4, Oct. 2015.
- [169] I. S. Camara *et al.*, “Enhanced magnetocrystalline anisotropy in an ultra-dense array of air-exposed crystalline cobalt nanowires,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 109, no. 20, p. 202406, Nov. 2016.
- [170] A. Bogdanov and A. Hubert, “Thermodynamically stable magnetic vortex states in magnetic crystals,” *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 138, no. 3, pp. 255–269, 1994.
- [171] A. N. Bogdanov and D. A. Yablonskii, “Thermodynamically stable ‘vortices’ in magnetically ordered crystals. The mixed state of magnets,” *Zh Eksp Teor Fiz*, vol. 95, no. 1, p. 178, 1989.
- [172] B. Binz and A. Vishwanath, “Chirality induced anomalous-Hall effect in helical spin crystals,” *Phys. B Condens. Matter*, vol. 403, no. 5–9, pp. 1336–1340, Apr. 2008.
- [173] J. M. Kosterlitz and D. J. Thouless, “Ordering, metastability and phase transitions in two-dimensional systems,” *J. Phys. C Solid State Phys.*, vol. 6, no. 7, p. 1181, 1973.
- [174] C. Kooy and U. Enz, “Experimental and theoretical study of the domain configuration in thin layer of BaFe<sub>12</sub>O<sub>19</sub>,” *Philips Res Repts*, no. 15, pp. 7–29, 1960.
- [175] S. D. Bader, “Colloquium : Opportunities in nanomagnetism,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 78, no. 1, pp. 1–15, Jan. 2006.
- [176] A. P. Malozemoff and J. C. Slonczewski, *Magnetic Domain Walls in Bubble Materials*. Academic Press, 1979.
- [177] D. A. Gilbert *et al.*, “Realization of ground-state artificial skyrmion lattices at room temperature,” *Nat. Commun.*, vol. 6, no. 1, Dec. 2015.
- [178] M. V. Sapozhnikov and O. L. Ermolaeva, “Two-dimensional skyrmion lattice in a nanopatterned magnetic film,” *Phys. Rev. B*, vol. 91, no. 2, Jan. 2015.
- [179] L. Sun *et al.*, “Creating an Artificial Two-Dimensional Skyrmion Crystal by Nanopatterning,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 110, no. 16, Apr. 2013.

- [180] I. Dzyaloshinsky, "A thermodynamic theory of 'weak' ferromagnetism of antiferromagnetics," *J. Phys. Chem. Solids*, vol. 4, no. 4, pp. 241–255, 1958.
- [181] T. Moriya, "Anisotropic superexchange interaction and weak ferromagnetism," *Phys. Rev.*, vol. 120, no. 1, p. 91, 1960.
- [182] F. Ott, T. Maurer, G. Chaboussant, Y. Soumare, J.-Y. Piquemal, and G. Viau, "Effects of the shape of elongated magnetic particles on the coercive field," *J. Appl. Phys.*, vol. 105, no. 1, p. 013915, Jan. 2009.
- [183] M. Saib, "Imagerie Magnéto-optique du retournement de l'aimantation dans des couches minces de La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>MnO<sub>3</sub>," PhD Thesis, Université de Caen, 2007.
- [184] Y. Yüksel, "Dynamic phase transition phenomena and magnetization reversal process in uniaxial ferromagnetic nanowires," *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 389, pp. 34–39, Sep. 2015.
- [185] Y. Aharonov and D. Bohm, "Significance of Electromagnetic Potentials in the Quantum Theory," *Phys. Rev.*, vol. 115, no. 3, pp. 485–491, Aug. 1959.
- [186] M. R. Hestenes and E. Stiefel, "Methods of Conjugate Gradients for Solving Linear Systems," *Journal of Research of the National Bureau of Standards*, vol. 49, no. 6, pp. 409–436, Dec-1952.



## Annexe 1. Modèle de Stoner-Wohlfarth

### Calcul du champ d'anisotropie et influence de l'anisotropie magnétocristalline au second ordre

Dans le cas où l'axe  $c$  de la structure cristalline  $hcp$  est aligné avec le grand axe de l'ellipsoïde prolate, le terme de densité d'énergie totale d'un aimant permanent ellipsoïdal comprend une contribution magnétocristalline, un terme Zeeman et l'anisotropie de forme (d'autres termes additionnels éventuels seront mentionnés par la suite):

$$\begin{aligned} \varepsilon_{tot} = & K_1 \sin^2(\theta) + K_2 \sin^4(\theta) + \frac{1}{4} \mu_0 M_s^2 (1 - 3N_c) \sin^2(\theta) \\ & - \mu_0 H_{app} M_s \cos(\gamma - \theta) \end{aligned} \quad (A.95)$$

Le modèle de Stoner-Wohlfarth est basé sur une philosophie de minimisation de l'énergie magnétique totale telle qu'exprimée ci-dessus. Dans un premier temps cette démarche permet d'accéder aux positions d'équilibre magnétique de l'aimant permanent monodomaine (dans le cas multidomaine, le terme d'anisotropie de forme se complexifie).

$$\begin{aligned} \left( \frac{\partial \varepsilon_{tot}}{\partial \theta} \right)_{\theta=\theta_{eq}} = & 2K_1 \cos(\theta) \sin(\theta) + 4K_2 \cos(\theta) \sin^3(\theta) + \frac{1}{2} \mu_0 M_s^2 (1 - 3N_c) \cos(\theta) \sin(\theta) \\ & + \mu_0 H_{app} M_s \sin(\theta - \gamma) = 0 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \left( \frac{\partial \varepsilon_{tot}}{\partial \theta} \right)_{\theta=\theta_{eq}} = & \frac{2K_1}{\mu_0 M_s} \cos(\theta) \sin(\theta) + \frac{4K_2}{\mu_0 M_s} \cos(\theta) \sin^3(\theta) + \frac{M_s}{2} (1 - 3N_c) \cos(\theta) \sin(\theta) \\ & + H_{app} \sin(\theta - \gamma) = 0 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \left( \frac{\partial \varepsilon_{tot}}{\partial \theta} \right)_{\theta=\theta_{eq}} = & H_{K_1} \cos(\theta) \sin(\theta) + H_{K_2} \cos(\theta) \sin^3(\theta) + H_{K,shape} \cos(\theta) \sin(\theta) \\ & + H_{app} \sin(\theta - \gamma) = 0 \end{aligned}$$

A cette étape, il convient de déterminer si les extremas de la densité d'énergie magnétique sont des maximas ou minimas. Rappelons que la dérivée seconde représente la courbure locale du profil énergétique. Une courbure positive indique un état stable d'énergie minimum et une courbure négative indique un état instable d'énergie maximum. Nous souhaitons déterminer le champ critique pour lequel l'état magnétique devient instable d'où:

$$\left( \frac{\partial \varepsilon_{tot}}{\partial \theta} \right)_{\theta=\theta_{eq}} = 0 \quad \text{et} \quad \left( \frac{\partial^2 \varepsilon_{tot}}{\partial \theta^2} \right)_{\theta=\theta_{eq}} = 0$$

$$\begin{aligned} \left( \frac{\partial^2 \varepsilon_{tot}}{\partial \theta^2} \right)_{\theta=\theta_{eq}} = & -H_{K_1} \sin^2(\theta) + H_{K_1} \cos^2(\theta) - H_{K_2} \sin^4(\theta) + 3H_{K_2} \cos^2(\theta) \sin^2(\theta) \\ & + H_{K,shape} \sin^2(\theta) + H_{K,shape} \cos^2(\theta) + H_{app} \cos(\theta - \gamma) \end{aligned}$$

$$\left(\frac{\partial^2 \varepsilon_{tot}}{\partial \theta^2}\right)_{\theta=\theta_{eq}} = H_{K_1} \cos(2\theta) + H_{K,shape} \cos(2\theta) - H_{K_2} \sin^4(\theta) + 3H_{K_2} \cos^2(\theta) \sin^2(\theta) + H_{app} \cos(\theta - \gamma) = 0$$

$$\left(\frac{\partial^2 \varepsilon_{tot}}{\partial \theta^2}\right)_{\theta=\theta_{eq}} = (H_{K_1} + H_{K,shape}) \cos(2\theta) - H_{K_2} \sin^4(\theta) + 3H_{K_2} \cos^2(\theta) \sin^2(\theta) + H_{app} \cos(\theta - \gamma) = 0$$

- Dans le cas où  $K_2 = 0$  :

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial \varepsilon_{tot}}{\partial \theta}\right)_{\theta=\theta_{eq}} &= \cos(\theta) \sin(\theta) + \frac{H_{ext}}{(H_{K_1} + H_{K,shape})} \sin(\theta - \gamma) & \left(\frac{\partial^2 \varepsilon_{tot}}{\partial \theta^2}\right)_{\theta=\theta_{eq}} &= (H_{K_1} + H_{K,shape}) \cos(2\theta) + H_{app} \cos(\theta - \gamma) \\ &= 0 & &= 0 \end{aligned} \quad (A.96)$$

$$\left(\frac{\partial \varepsilon_{tot}}{\partial \theta}\right)_{\theta=\theta_{eq}} = \cos(\theta) \sin(\theta) + H_{app} \sin(\theta - \gamma) = 0 \quad \left(\frac{\partial^2 \varepsilon_{tot}}{\partial \theta^2}\right)_{\theta=\theta_{eq}} = \cos(2\theta) + H_{app} \cos(\theta - \gamma)$$

- Dans le cas où  $K_2 \neq 0$  :

$$\left(\frac{\partial \varepsilon_{tot}}{\partial \theta}\right)_{\theta=\theta_{eq}} = \cos(\theta) \sin(\theta) + H_{app} \sin(\theta - \gamma) + \frac{H_{K_2}}{(H_{K_1} + H_{K,shape})} \cos(\theta) \sin^3(\theta) = 0$$

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial^2 \varepsilon_{tot}}{\partial \theta^2}\right)_{\theta=\theta_{eq}} &= \cos(2\theta) + H_{app} \cos(\theta - \gamma) \\ &- \frac{H_{K_2}}{(H_{K_1} + H_{K,shape})} (\sin^4(\theta) - 3\cos^2(\theta) \sin^2(\theta)) = 0 \end{aligned} \quad (A.97)$$

La question de l'influence de l'anisotropie magnétocristalline de second ordre se pose lorsque  $\gamma = 0$  ou  $\frac{\pi}{2}$  (respectivement direction de facile aimantation et difficile). Par la suite on posera  $m = \frac{M_z}{M_s} = \cos(\theta)$  :

$$\varepsilon_{tot} = K_1 \sin^2(\theta) + K_2 \sin^4(\theta) + \frac{1}{4} \mu_0 M_s^2 (1 - 3N_c) \sin^2(\theta) - \mu_0 H_{app} M_s \cos(\gamma - \theta)$$

➤  $\gamma = 0$  : application du champ dans la direction de facile aimantation ( $H_{app} // z$ ) :

$$\varepsilon_{tot} = K_1 (1 - m^2) + K_2 (1 - m^2)^2 + \frac{1}{4} \mu_0 M_s^2 (1 - 3N_c) (1 - m^2) - \mu_0 H_{app} M_s m$$

$$\frac{\partial \varepsilon_{tot}}{\partial M_z} = \frac{2K_1}{M_s} m - \frac{4K_2}{M_s} m + \frac{4K_2}{M_s} m^3 + \frac{1}{2} \mu_0 M_s (1 - 3N_c) m - \mu_0 H_{app} = 0$$

Cherchons maintenant le champ à appliquer pour passer la barrière d'énergie séparant les deux états d'équilibres :  $\theta = 0$  ou  $\pi$  (direction de facile aimantation).

$$\mu_0 H_{app} = \frac{2K_1}{M_s} m - \frac{4K_2}{M_s} m + \frac{4K_2}{M_s} m^3 + \frac{1}{2} \mu_0 M_s (1 - 3N_c) m$$

$$\mu_0 H_{app} = H_{K_1} m - H_{K_2} m + H_{K_2} m^3 + \frac{1}{2} \mu_0 M_s (1 - 3N_c) m$$

Pour aligner l'aimantation dans la direction de facile aimantation, i.e.  $M_s = M_z$  et donc  $m = 1$ , il faut appliquer un champ égal au champ d'anisotropie :

$$\mu_0 H_k = \frac{2K_1}{M_s} - \frac{4K_2}{M_s} + \frac{4K_2}{M_s} + \frac{1}{2} \mu_0 M_s (1 - 3N_c)$$

$$\boxed{\mu_0 H_k = \frac{2K_1}{M_s} + \frac{1}{2} \mu_0 M_s (1 - 3N_c)}$$

(A.98)

Il apparait ainsi que le second ordre des contributions magnétocristallines n'influe pas sur la hauteur de la barrière de potentiel à franchir pour renverser l'aimantation suivant l'axe facile. Autrement dit le champ de renversement dans la direction facile n'est pas influencé par la valeur de  $K_2$ . Les effets du premier et second ordre de l'anisotropie magnétocristalline sur la direction difficile ( $\gamma = \pi/2$ ) peuvent être également calculés:

$$\cos(\gamma - \theta) = \cos\left(\frac{\pi}{2} - \theta\right) = \sin(\theta)$$

$$\varepsilon_{tot} = K_1 \sin^2(\theta) + K_2 \sin^4(\theta) + \frac{1}{4} \mu_0 M_s^2 (1 - 3N_c) \sin^2(\theta) - \mu_0 H_{app} M_s \cos(\gamma - \theta)$$

$$\varepsilon_{tot} = K_1 \left(\frac{M_x}{M_s}\right)^2 + K_2 \left(\frac{M_x}{M_s}\right)^4 + \frac{1}{4} \mu_0 M_s^2 (1 - 3N_c) \left(\frac{M_x}{M_s}\right)^2 - \mu_0 H_{app} M_s \frac{M_x}{M_s}$$

$$\frac{\partial \varepsilon_{tot}}{\partial M_x} = \frac{2K_1}{M_s^2} M_x + \frac{4K_2}{M_s^4} M_x^3 + \frac{1}{2} \mu_0 (1 - 3N_c) M_x - \mu_0 H_{app} = 0$$

$$\mu_0 H_{app} = \frac{2K_1}{M_s} + \frac{4K_2}{M_s} + \frac{1}{2} \mu_0 M_s (1 - 3N_c)$$

Ainsi, à la saturation, lorsque  $M_x = M_s$  il vient  $\mu_0 H_{app} = \mu_0 H_{sat}$  :

$$\boxed{\mu_0 H_{sat} = \frac{2K_1}{M_s} + \frac{4K_2}{M_s} + \frac{1}{2} \mu_0 M_s (1 - 3N_c)}$$

(A.99)

### Dépendance en angle du champ d'anisotropie :

Exprimons  $\frac{\partial \varepsilon_{tot}}{\partial \theta} = 0$  :

$$2K_{eff} \sin(\theta) \cos(\theta) + H_{app} \sin(\theta - \gamma) = 0$$

Ce qui nous amène à :

$$\sin(2\theta) = -\frac{H_{app}}{K_{eff}} \sin(\theta - \gamma) \quad (\text{A.100})$$

L'étape suivante consiste à exprimer  $\frac{\partial^2 \varepsilon_{anisotropie}}{\partial \theta^2} = 0$  :

$$2K_{eff} \cos(2\theta) + H_{app} \cos(\theta - \gamma) = 0$$

Ce qui nous amène à :

$$\cos(2\theta) = -\frac{H_{app}}{2K_{eff}} \cos(\theta - \gamma) \quad (\text{A.101})$$

La division de (1.100) par (1.101) permet d'éliminer  $\theta$  :

$$\tan(2\theta) = 2\tan(\theta - \gamma)$$

$$\frac{2\tan(\theta)}{1 - \tan^2(\theta)} = 2 \frac{\tan(\theta) - \tan(\gamma)}{1 + \tan(\theta)\tan(\gamma)}$$

$$\tan(\theta) + \tan^2(\theta)\tan(\gamma) = \tan(\theta) - \tan(\gamma) - \tan^3(\theta) + \tan^2(\theta)\tan(\gamma)$$

$$\tan(\theta) = \tan^{1/3}(\gamma) \quad (\text{A.102})$$

Et finalement en utilisant (1.18) pour calculer  $(1.100)^2 + (1.101)^2$ , l'expression du champ appliqué nécessaire pour franchir la barrière de potentielle est

$$H_K = \frac{2K_{eff}}{\mu_0 M_S} \frac{1}{(\sin^{2/3}(\gamma) + \cos^{2/3}(\gamma))^{3/2}}$$

Pour un angle d'application du champ externe compris entre 45° et 90° le résultat obtenu est :

$$H_K = \frac{2K_{eff}}{\mu_0 M_S} (\sin(\gamma) \cos(\gamma))$$

## Annexe 2. Cartographie d'induction par d'holographie électronique off-axis

L'intensité mesurée est le module carré du recouvrement de l'onde référence (en bleu) et l'onde déphasée (en gris). Ce recouvrement est réalisé par un bi-prisme électrostatique de Möllenstedt et crée un motif d'interférence décrit par :

$$I_{Holo} = |\psi_{ref} + \psi_{shift}|^2 = A_{ref}^2(x; y) + A_{shift}^2(x; y) + 2A_{ref}A_{shift}(x; y) \cos(2\pi R_0 x + \varphi_S(x; y))$$

Avec  $\psi_{ref}$  la fonction d'onde du faisceau de référence,  $\psi_{shift}$  la fonction d'onde du faisceau qui traverse l'échantillon,  $A_{shift}$  l'amplitude du faisceau qui traverse l'échantillon,  $\varphi_S$  le déphasage accumulé par le faisceau à la traversée de l'échantillon,  $R_0$  la périodicité du motif d'interférence détecté (dépend de la tension d'accélération et de la polarisation du bi-prisme).

Cette équation montre qu'en plus du contraste TEM conventionnel se superpose un motif de franges d'interférences sinusoïdales.

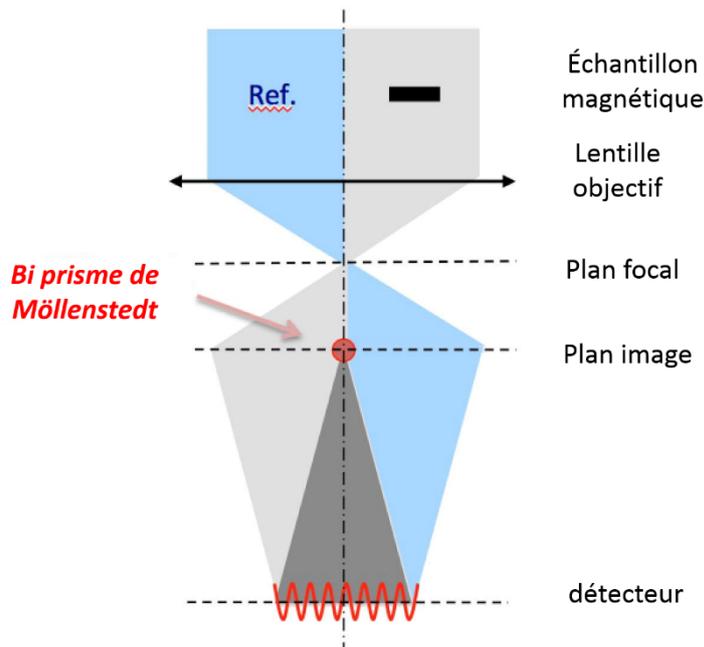


Figure A.116 : schématisation du principe de l'holographie électronique off-axis utilisé.

Le déphasage, déduit de l'effet Aharonov-Bohm est donné par [185]:

$$\varphi_S(x; y) = C_E \int V(x, y, z). dz - \frac{e}{\hbar} \iint B_{\perp}(x, y, z) dr dz \tag{A.103}$$

$V(x, y, z)$  étant le potentiel électrostatique de l'échantillon,  $B_{\perp}(x, y, z)$  la composante de l'induction magnétique de l'échantillon perpendiculaire à la direction de propagation du faisceau, ici la direction Oz,  $C_E$  une grandeur dépendante de l'énergie du faisceau, et  $e$  et  $\hbar$  respectivement la charge de

l'électron et la constante de Planck réduite. Notons ici que la composante de l'induction parallèle à la direction de propagation du faisceau ne provoque pas de déphasage,  $B_z$  n'est donc pas mesurable par holographie électronique. Par ailleurs, l'induction obtenue est  $B_{\perp}(x, y)$  intégrée sur le trajet électronique, selon  $z$ .

La contribution électrostatique au déphasage (1<sup>er</sup> terme de 1.103) est généralement beaucoup plus forte que la contribution magnétostatique (2<sup>ème</sup> terme). Afin de soustraire sa contribution, il est possible d'enregistrer deux images d'un même hologramme en tournant l'échantillon de 180° entre les deux acquisitions. Le second hologramme est recentré de façon à se superposer parfaitement au premier puis l'image est filtrée en lui appliquant une symétrie miroir. Rappelons que le champ magnétique est invariant par la symétrie d'inversion de l'espace contrairement au champ électrique. De ce fait, après ces deux opérations de symétrie, le champ magnétique s'est inversé tandis que le champ électrique demeure invariant. Il ne reste donc plus qu'à soustraire les deux signaux pour s'émanciper des contributions électrostatiques sur le déphasage du faisceau d'électron.

En supposant que l'induction et le champ électrostatique ont une contribution constante sur la phase du faisceau durant la traversée de l'échantillon on peut réécrire l'équation (1.103) :

$$\text{- pour le premier hologramme : } \varphi_S^1(x; y) = C_E V(x; y)t(x, y) - \frac{e}{\hbar} \int B_{\perp}(x, y)t(x; y) dr$$

$$\text{- pour le second hologramme : } \varphi_S^2(x; y) = C_E V(x; y)t(x, y) + \frac{e}{\hbar} \int B_{\perp}(x, y)t(x; y) dr$$

Lors du traitement, une demi-soustraction est effectuée :

$$\frac{\varphi_S^1(x; y) - \varphi_S^2(x; y)}{2} = \frac{\phi_S(r)}{2} - \frac{e}{\hbar} \int B_{\perp}(r)t(r) dr$$

L'image de phase obtenue est alors parfois dérivée de façon à obtenir une cartographie quantitative de l'induction dans le plan de l'échantillon :

$$\frac{d\phi_S(r)}{dr} = -\frac{e}{\hbar} B_{\perp}(r)t(r)$$

Le signal obtenu est donc une cartographie quantitative de l'induction à deux dimensions de l'induction magnétique. Notons toutefois que l'obtention de la cartographie d'induction induit un bruit important du fait de l'opération de dérivation. C'est pourquoi les images de phases sont parfois directement discutées.

### Annexe 3. Calcul du taux de compacité d'un réseau hexagonal 2D

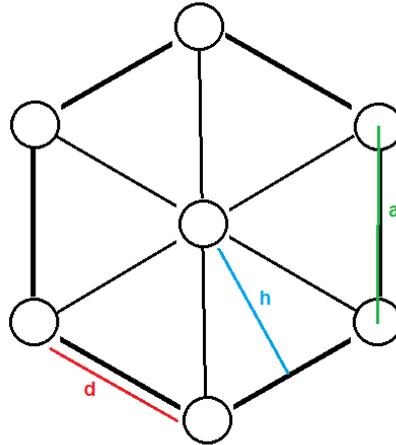


Figure A.117 : maille hexagonale de cylindres (vue de dessus).

$$P = \frac{V_{mag}}{V_{tot}}$$

Ce calcul peut être effectué dans une maille 2D du réseau schématisée ci-dessus :

$$S_{maille} = 6 * \frac{a \cdot h}{2}$$

$S_{maille}$  : la surface totale de la maille composée de six triangles

$$a = (d + 2R)$$

$$S_{maille} = \frac{(d + 2R)h}{2} h^2 = (d + 2R)^2 - \left(\frac{d}{2} + R\right)^2$$

$$h = \sqrt{\frac{3}{4}}(d + 2R)$$

$$S_{maille} = \frac{3\sqrt{3}}{2} (d + 2R)^2$$

Avec deux cylindres par mailles :

$$S_{mag} = 2\pi R^2$$

$$P = \frac{S_{mag}}{S_{maille}}$$

$$P = \frac{4\pi R^2}{2\sqrt{3} (2R + d)^2}$$

(A.104)

Pour  $D = 6\text{nm}$ , le taux de compacité maximal (lorsque la distance interfil  $d$  est nulle) est :

$$P_{max}(D = 6\text{nm}) = 0.907.$$

## Annexe 4. Calcul général du champ dipolaire rayonné selon l'axe d'un cylindre uniformément aimanté

### Calcul 1

Le potentiel magnétique d'un cylindre magnétique est défini comme suit :

$$-\vec{\nabla}\phi_m(\vec{r}) = \vec{H}_d(\vec{r}) \quad (\text{A.105})$$

Montrons que  $\phi_m(\vec{r})$ , étant un potentiel scalaire, doit être solution de l'équation de Poisson :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = \mu_0 \vec{\nabla} \cdot (\vec{H} + \vec{M}) \quad (\text{A.106})$$

En combinant (1.105) et (1.106) l'équation de Poisson est directement retrouvée :

$$\Delta\phi_m(\vec{r}) + \vec{\nabla} \cdot \vec{M} = 0 \quad (\text{A.107})$$

La solution intégrale de l'équation de Poisson est :

$$\phi_m(\vec{r}) = \frac{1}{4\pi} \oiint \frac{\vec{M}}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} d\vec{S} - \frac{1}{4\pi} \int \frac{\vec{\nabla} \cdot \vec{M}}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} dV \quad (\text{A.108})$$

Où le premier terme est la contribution des charges de surface et le second des charges volumiques.

Dans le cas d'une aimantation uniforme la contribution de volume devient nulle :

$$\phi_m(\vec{r}) = \frac{1}{4\pi} \oiint \frac{\vec{M}}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} d\vec{S}$$

En coordonnées polaires :

$$|\vec{r}_i - \vec{r}_j| = \sqrt{\rho^2 + \left(z \pm \frac{L}{2}\right)^2}$$

$|\vec{r}_i - \vec{r}_j|$  est représenté sur la Figure 1.23 comme  $\vec{r}_{ij}$  la distance entre la source et le récepteur.

$$\phi_m(\vec{r}) = \frac{1}{4\pi} \iint \frac{\vec{M}}{\sqrt{\rho^2 + \left(z \pm \frac{L}{2}\right)^2}} d\vec{S}$$

$\vec{dS}$  est dirigé selon l'axe  $z$  et l'aimantation d'un moment magnétique est égale à  $M_S$ . Si on cherche le champ rayonné selon l'axe du cylindre alors :

$$\phi_m(z) = \frac{M_S}{4\pi} \int_0^{2\pi} \int_0^a \frac{\rho}{\sqrt{\rho^2 + \left(z + \frac{L}{2}\right)^2}} - \frac{\rho}{\sqrt{\rho^2 + \left(z - \frac{L}{2}\right)^2}} d\rho d\varphi \quad (\text{A.109})$$

$$\phi_m(z) = \frac{2\pi M_S}{4\pi} \left[ \sqrt{\rho^2 + \left(z + \frac{L}{2}\right)^2} \right]_0^a - \left[ \sqrt{\rho^2 + \left(z - \frac{L}{2}\right)^2} \right]_0^a d\rho$$

$$\phi_m(z) = \frac{M_S}{2} \left( \sqrt{a^2 + \left(z + \frac{L}{2}\right)^2} - \sqrt{a^2 + \left(z - \frac{L}{2}\right)^2} + \left|z + \frac{L}{2}\right| - \left|z - \frac{L}{2}\right| \right) \quad (\text{A.110})$$

$$\frac{\partial \phi_m(z)}{\partial z} = \frac{M_S}{2} \left( \frac{z + \frac{L}{2}}{\sqrt{a^2 + \left(z + \frac{L}{2}\right)^2}} - \frac{z - \frac{L}{2}}{\sqrt{a^2 + \left(z - \frac{L}{2}\right)^2}} - 2\Theta\left(\frac{L}{2} - |z|\right) \right)$$

Avec  $\Theta\left(\frac{L}{2} - |z|\right)$  la fonction de Heaviside :

$$\Theta\left(\frac{L}{2} - |z|\right) = \begin{cases} 1 & \text{si } \left(\frac{L}{2} - |z|\right) > 0 \\ 0 & \text{si } \left(\frac{L}{2} - |z|\right) < 0 \end{cases}$$

$\mu_0 H_{dip,z}(z) = \begin{cases} \frac{\mu_0 M_S}{2} \left( \frac{z + \frac{L}{2}}{\sqrt{a^2 + \left(z + \frac{L}{2}\right)^2}} - \frac{z - \frac{L}{2}}{\sqrt{a^2 + \left(z - \frac{L}{2}\right)^2}} \right) & \text{à l'extérieur du cylindre} \\ \frac{\mu_0 M_S}{2} \left( \frac{z + \frac{L}{2}}{\sqrt{a^2 + \left(z + \frac{L}{2}\right)^2}} - \frac{z - \frac{L}{2}}{\sqrt{a^2 + \left(z - \frac{L}{2}\right)^2}} - 2 \right) & \text{à l'intérieur du cylindre} \end{cases}$
---

## Calcul 2

$\varphi_E$  est le potentiel électrostatique d'un cylindre uniformément chargé avec une densité de charge :

$$\varphi_{E x_i}(\vec{r}) = \frac{1}{M_s} \frac{\partial \phi_m(\vec{r})}{\partial x_i}$$

En effet si on exprime le potentiel vecteur :

$$\vec{A} = \frac{\mu_0}{4\pi} \iiint \frac{\vec{M} \times \vec{r}}{|\vec{r}|^3} dV$$

$$\vec{A} = \mu_0 \varepsilon_0 \left( \frac{\mu_0}{4\pi \varepsilon_0} \iiint \frac{\vec{M} \times \vec{r}}{|\vec{r}|^3} dV \right)$$

Or on sait que le champ électrique d'un cylindre uniformément chargé avec une densité de charge égale à 1 est :

$$\vec{E}^* = \frac{\mu_0}{4\pi \varepsilon_0} \iiint \frac{\vec{r}}{|\vec{r}|^3} dV$$

On appelle  $\vec{E}^*$  le champ auxiliaire et :

$$\vec{E}^* = -\overrightarrow{\text{grad}} \varphi_E$$

De plus :

$$\vec{B} = \overrightarrow{\text{rot}}(\vec{A})$$

$$\vec{B} = \mu_0 \varepsilon_0 \overrightarrow{\text{rot}}(\vec{M} \times \vec{E}^*)$$

Que l'on peut réécrire comme suit :

$$\overrightarrow{\text{rot}}(\vec{M} \times \vec{E}^*) = \text{div}(\vec{E}^*)\vec{M} - \text{div}(\vec{M})\vec{E}^* + (\vec{E}^* \cdot \overrightarrow{\text{grad}})\vec{M} - (\vec{M} \cdot \overrightarrow{\text{grad}})\vec{E}^*$$

En sachant que  $\vec{M}$  est uniforme on a :

$$(\vec{E}^* \cdot \overrightarrow{\text{grad}})\vec{M} = 0 \quad \text{et} \quad \text{div}(\vec{M}) = 0$$

Donc :

$$\vec{B} = -\mu_0 \varepsilon_0 (\vec{M} \cdot \overrightarrow{\text{grad}}) \cdot \vec{E}^* \quad \text{à l'extérieur du cylindre}$$

$$\vec{B} = \mu_0 \vec{M} - \mu_0 \varepsilon_0 (\vec{M} \cdot \overrightarrow{\text{grad}}) \cdot \vec{E}^* \quad \text{à l'intérieur du cylindre}$$

$$\vec{B} = -\mu_0 \varepsilon_0 (\vec{M} \cdot \overrightarrow{\text{grad}}) \cdot \vec{E}^*$$

$$\vec{B} = -\mu_0 \vec{M} - \mu_0 \varepsilon_0 (\vec{M} \cdot \overrightarrow{\text{grad}}) \cdot \vec{E}^*$$

$$\vec{B} = -\mu_0 \vec{M} + \mu_0 \varepsilon_0 (\vec{M} \cdot \overrightarrow{\text{grad}}) \cdot \overrightarrow{\text{grad}} \varphi_E$$

Pour un cylindre avec un grand rapport d'aspect et uniformément aimanté selon z:

$$\vec{H}_{dip} = -N_{int,zz} \vec{M}$$

D'où :

$$N_{int,zz} = \frac{1}{M_s} \frac{\partial^2 \varphi_E}{\partial z^2}$$

Finalement :

$$H_{dip_z}(z) = \frac{B_z(z)}{\mu_0} - M(z)$$

## Annexe 5. Calcul du facteur de désaimantation d'un réseau hexagonal compact de nanofils

Le champ sera calculé dans le plan ( $xOy$ ) avec  $z=L/2$ , zone où le champ dipolaire total est maximal et où a lieu la nucléation lorsqu'elle est localisée.

$$N_{int,zz} \left( z = \frac{L}{2} \right) = \frac{a^2 L}{4} \sum_{\rho_{disque}}^{\infty} \left( \frac{1}{(\rho_{disque}^2 + L^2)^{\frac{3}{2}}} \right) \quad (\text{A.111})$$

Prenons un disque centré sur l'axe du nanofil  $i$  et de rayon  $\rho_{disque} = md$ , avec  $d$  : la distance inter-fil et  $m$  : un entier. Sur ce disque, le nombre de fils de rayon  $a$  est :

$$P = \frac{\text{surface du disque}}{\text{surface de la section d'un fil}}$$

Ainsi  $P$  est le taux de compacité du réseau. Autrement dit :

$$\frac{\pi \rho_{disque}^2}{\pi a^2} * P = \text{nombre de fil sur le disque de rayon } \rho_{disque}$$

Pour formuler un calcul itératif dans le but de le numériser, on définit le nombre de fils contenu dans une couronne délimitée par deux cercles concentriques dont les rayons diffèrent d'une distance interfil  $d$  :

$$\frac{\pi \left( \left( \rho_{disque} + \frac{d}{2} \right)^2 - \left( \rho_{disque} - \frac{d}{2} \right)^2 \right)}{\pi a^2} P = \frac{\pi (2 \rho_{disque} d)}{\pi a^2} P$$

$= \text{nombre de fils sur la couronne d'épaisseur } d$

$$P * \frac{2\pi m d^2}{\pi a^2} = \text{nombre de fils sur la couronne } m \text{ d'épaisseur } d$$

La contribution de chaque nanofil au champ dipolaire rayonné sur le nanofil au milieu est sommée. En reprenant l'équation A.111, on réécrit la somme sur tous les fils comme la somme sur toutes les couronnes :

$$N_{int,zz} \left( z = \frac{L}{2} \right) = \frac{a^2}{4} \sum_{m_j} 2m_j \pi P \frac{d^2}{\pi a^2} \left( \frac{L}{(\rho_{disque}^2 + L^2)^{\frac{3}{2}}} \right)$$

$$N_{int,zz} \left( z = \frac{L}{2} \right) = \frac{d^2}{2} \sum_{m_j=1}^{\infty} P m_j \frac{L}{\left( \rho_{disque}^2 + \frac{L^2}{4} \right)^{\frac{3}{2}}}$$

En utilisant :  $m_j = \frac{\rho_{disque}}{d}$

$$N_{int,zz} \left( z = \frac{L}{2} \right) = d^3 \sum_{m_j=1}^{\infty} P m_j \frac{L/2d}{\left( \rho_{disque}^2 + \frac{L^2}{4} \right)^{\frac{3}{2}}}$$

On pose :  $s = \frac{L}{2d}$

$$\frac{N_{int,zz} \left( z = \frac{L}{2} \right)}{P} = \sum_{m_j=1}^{\infty} \frac{m_j s}{\left( m_j^2 + s^2 \right)^{\frac{3}{2}}}$$

Cette expression est mise en place par Carignan *et al.* [56]. Pour évaluer numériquement cette somme, le réseau de nanofils doit être divisé en deux parties. La première partie est la région à l'intérieur du cercle de rayon  $\rho_{disque} = m_{max}d$ . La contribution au champ dipolaire de cette région sera évaluée grâce à la somme suivante :

$$\frac{N_{int,zz}^{(1)}(\vec{r}_1 = 0)}{P} = \sum_{m_j=1}^{m_{max}} \frac{m_j s}{\left( m_j^2 + s^2 \right)^{\frac{3}{2}}} \quad (\text{A.112})$$

En approximant le tout comme un continuum, la seconde contribution rayonnée par l'assemblée sera évaluée comme le champ dipolaire rayonné par l'assemblée retranchée de la région 1 [60]:

$$H_{int,zz}^{(2)} = H_{int,zz}^{tot} - H_{int,zz}^{(1)}$$

$$H_{int,zz}^{(2)}(z=0) = \frac{M_S a^2}{4} \iint_{00}^{\infty 2\pi} \frac{L}{\left( \rho^2 + \frac{L^2}{2} \right)^{\frac{3}{2}}} \rho d\rho d\varphi - \iint_{00}^{\rho_j 2\pi} \frac{L}{\left( \rho^2 + \frac{L^2}{2} \right)^{\frac{3}{2}}} \rho d\rho d\varphi$$

$$H_{int,zz}^{(2)}(z=0) = \frac{M_S a^2 \pi L}{2} \left( \frac{2}{L^2} + \frac{1}{\sqrt{\rho_j^2 + \frac{L^2}{4}}} - \frac{2}{L^2} \right)$$

$$H_{int,zz}^{(2)}(z=0) = \frac{M_S a^2 \pi}{2} \frac{L}{\sqrt{m_{max}^2 d^2 + \frac{L^2}{4}}}$$

Donc :

$$\frac{N_{int,zz}^{(2)}(\vec{r} = 0)}{P} = \frac{s}{\sqrt{m_{max}^2 + s^2}} \quad (\text{A.113})$$

En rappelant que  $s = \frac{L}{2d}$ . Ce qui nous amène à :

$$\frac{N_{int,zz}(\vec{r} = 0)}{P} = \sum_{m_j=1}^{m_{max}} \frac{m_j s}{(m_j^2 + s^2)^{\frac{3}{2}}} + \frac{s}{\sqrt{m_{max}^2 + s^2}} \quad (\text{A.114})$$



## Annexe 6. Simulations micromagnétiques OOMMF

OOMMF (*Object Oriented Micromagnetic Framework*) est un code open source édité et développé au NIST (*National Institute of Standard and Technology*) par M.J. Donahue et D.G. Porter [42]. Ce code, écrit en C++ et Tcl/Tk, est destiné à la simulation de systèmes magnétiques utilisant une méthode de différence finie pour déterminer les grandeurs en sortie de la simulation. L'ensemble de l'espace simulé est divisé en cellules parallélépipédiques de dimensions définies par l'utilisateur. Des moments magnétiques sont associés à certaines cellules de façon à définir un solide magnétique. Chaque cellule ne comporte qu'un seul moment magnétique. Les grandeurs physiques utilisées par OOMMF sont fixées par l'utilisateur : constante d'anisotropie magnétocristalline, constante d'échange, aimantation à saturation, configuration initiale de l'aimantation, amortissement de la précession des moments magnétiques (*damping*  $\alpha$ ), direction et intensité balayée par le champ appliqué en un nombre de pas choisi par l'utilisateur. La résolution de l'équation de la dynamique de l'aimantation permet de restituer : le champ vectoriel de l'aimantation, le champ de dipolaire, la densité d'énergie due aux interactions d'échange, à l'anisotropie uniaxiale et au champ appliqué (densité d'énergie Zeeman), toutes ces grandeurs étant disponibles en fonction du temps.

Deux méthodes différentes sont proposées par OOMMF pour calculer les grandeurs du système magnétique (aimantation, champ de démagnétisation, énergie magnétique...) :

- la méthode du gradient conjugué sans préconditionnement: cette méthode recherche les minimas de la fonction  $f(x, y, z)$  en résolvant un système linéaire [186]. Cette méthode est bien plus rapide que la résolution d'équations différentielles, cependant ce n'est pas une méthode dynamique.
- La résolution de l'équation du mouvement de l'aimantation établie par Landau et Lifshitz et reformulée par Gilbert (équation LLG) :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -|\gamma|\vec{M} \times \vec{H}_{eff} + \frac{\alpha}{M_S} \left( \vec{M} \times \frac{d\vec{M}}{dt} \right)$$

$\gamma$  est le rapport gyromagnétique de Gilbert

$$\gamma = (1 + \alpha^2)\bar{\gamma}$$

Avec  $\bar{\gamma}$  rapport gyromagnétique de Landau-Lifshitz, et  $\alpha$  l'amortissement du mouvement gyromagnétique autour du champ effectif  $\vec{H}_{eff}$ .

La résolution de l'équation différentielle à chaque intervalle de temps est effectuée par un algorithme Runge Kutta (ordre 4).

Les simulations dans la direction de l'axe de facile aimantation  $Oz$  sont faites avec un angle  $\gamma$  non rigoureusement nul mais légèrement incliné à  $\gamma=0.01^\circ$ , ce qui est courant dans les simulations micromagnétiques pour éviter les artéfacts dus à des structures magnétiques simulées artificiellement parfaitement symétriques [49].



## Annexe 7. Procédure d'acquisition et de traitement d'un jeu de FORC

### - Acquisition

Une courbe de renversement du premier ordre est une branche d'un cycle d'hystérésis mineur encadrée par les valeurs  $H_{sat}$  et  $H_r$  (Figure A.118). Le champ de saturation peut être aussi bien positif que négatif, bien que la grande majorité des expérimentateurs utilisent la saturation positive. Ce champ jouant le rôle d'effacement de la mémoire des processus irréversibles, il doit se trouver après la fermeture du cycle majeur.

Une acquisition FORC est effectuée en espaçant régulièrement les champs de renversement  $H_r$  d'une valeur nommée  $\Delta H_r$  de façon obtenir environ cent FORC. Un diagramme FORC est une grille composée de carrés de surface  $\Delta H_r \times \Delta H$ , avec  $\Delta H$  l'espace entre deux points en champ externe, ce qui impose un ratio  $\frac{\Delta H_r}{\Delta H} \approx 1$ . Un ré-échantillonnage des courbes FORC est souvent effectué numériquement de façon à représenter le diagramme FORC dans un repère  $(H, H_r)$  orthonormé.

Pour réduire le temps d'acquisition il n'est pas nécessaire de relever les points de la courbe  $H_{sat} \rightarrow H_r$ , et le balayage en champ externe peut ainsi être accéléré dans cet intervalle. Une fois arrivé à un point de renversement  $H_r$ , il convient d'effectuer une courte pause de quelques secondes (entre 2s et 5s parfois plus si la viscosité magnétique est importante) de façon à stabiliser l'aimantation de l'échantillon avant d'entamer l'acquisition de la FORC et éviter les effets dynamiques autour du champ  $H_r$ .

Les courbes peuvent être acquises dans n'importe quel ordre.

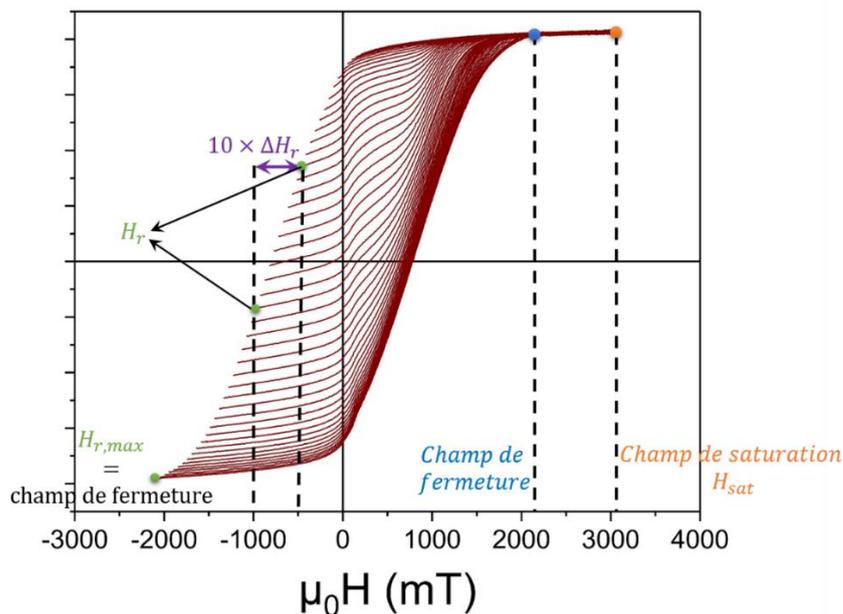


Figure A.118 : acquisition FORC effectuée à 5K sur le réseau de nanofils décrit dans la partie II du chapitre IV, avec  $\Delta H_r = 20 \text{ mT}$  et  $\Delta H = 10 \text{ mT}$ .

## **- Traitement**

Le traitement pour obtenir un diagramme FORC à partir d'un jeu de courbes de renversement du premier ordre est réalisé avec un code Matlab [84]. Ce code permet de calculer l'expression :

$$\rho_{FORC}(H, H_r) = -\frac{1}{2M_s} \frac{\partial^2 M(H, H_r)}{\partial H_r \partial H} \quad (H \geq H_r)$$

Ce calcul est effectué en tous points du plan  $(H; H_r)$ . Les étapes successives sont :

- 1) la lecture des données,
- 2) le filtrage de façon à écarter les points de mesures qui n'ont pas de signification physique,
- 3) le classement des FORC par rapport à l'amplitude de leur champ de renversement  $H_r$  (*i.e.* premier point  $H$  de chaque FORC),
- 4) le lissage des courbes qui consiste à relier les points d'une FORC par un spline d'ordre 2, le nombre de points à relier est défini par l'utilisateur,
- 5) le calcul de la différence de pente entre deux FORC lissées successives en  $H_r$  (*i.e.* le calcul de la dérivée seconde),
- 6) la mise en mémoire du résultat dans la case correspondante du tableau de valeurs finales qui une fois tracé en « contour plot » donne un diagramme FORC.