

Titre: Modélisation des processus d'aimantation des réseaux de nanofils ferromagnétiques amorphes
Title: ferromagnétiques amorphes

Auteur: Liviu Clime
Author:

Date: 2005

Type: Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

Référence: Clime, L. (2005). Modélisation des processus d'aimantation des réseaux de nanofils ferromagnétiques amorphes [Thèse de doctorat, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie. <https://publications.polymtl.ca/7550/>
Citation:

Document en libre accès dans PolyPublie Open Access document in PolyPublie

URL de PolyPublie: <https://publications.polymtl.ca/7550/>
PolyPublie URL:

Directeurs de recherche: Arthur Yelon, & Petru Ciureanu
Advisors:

Programme: Non spécifié
Program:

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

**MODÉLISATION DES PROCESSUS
D'AIMANTATION DES RÉSEAUX DE
NANOFILS FERROMAGNÉTIQUES
AMORPHES**

LIVIU CLIME

DÉPARTEMENT DE GÉNIE PHYSIQUE
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

THÈSE PRÉSENTÉE EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLÔME DE *PHILOSOPHIAE DOCTOR*
(GÉNIE PHYSIQUE)
NOVEMBRE 2005



Library and
Archives Canada

Published Heritage
Branch

395 Wellington Street
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Bibliothèque et
Archives Canada

Direction du
Patrimoine de l'édition

395, rue Wellington
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Your file *Votre référence*
ISBN: 978-0-494-16987-2

Our file *Notre référence*
ISBN: 978-0-494-16987-2

NOTICE:

The author has granted a non-exclusive license allowing Library and Archives Canada to reproduce, publish, archive, preserve, conserve, communicate to the public by telecommunication or on the Internet, loan, distribute and sell theses worldwide, for commercial or non-commercial purposes, in microform, paper, electronic and/or any other formats.

The author retains copyright ownership and moral rights in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

In compliance with the Canadian Privacy Act some supporting forms may have been removed from this thesis.

While these forms may be included in the document page count, their removal does not represent any loss of content from the thesis.

AVIS:

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque et Archives Canada de reproduire, publier, archiver, sauvegarder, conserver, transmettre au public par télécommunication ou par l'Internet, prêter, distribuer et vendre des thèses partout dans le monde, à des fins commerciales ou autres, sur support microforme, papier, électronique et/ou autres formats.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur et des droits moraux qui protège cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

Conformément à la loi canadienne sur la protection de la vie privée, quelques formulaires secondaires ont été enlevés de cette thèse.

Bien que ces formulaires aient inclus dans la pagination, il n'y aura aucun contenu manquant.

**
Canada

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Cette thèse intitulée :

MODÉLISATION DES PROCESSUS D'AIMANTATION DES RÉSEAUX DE
NANOFILS FERROMAGNÉTIQUES AMORPHES

présentée par : CLIME Liviu

en vue de l'obtention du diplôme de : Philosophiae Doctor

a été dûment acceptée par le jury d'examen constitué de :

M. MÉNARD David, Ph.D., président

M. YELON Arthur, Ph.D., membre et directeur de recherche

M. CIUREANU Petru, Ph.D., membre et codirecteur de recherche

M. COCHRANE Robert, Ph.D., membre

M. COTTAM G. Michael, D.Phil., membre

Aux miens...

Remerciements

Je tiens d'abord à remercier mes directeurs de recherche, les professeurs Arthur Yelon et Petru Ciureanu, pour leur support durant la période de mon doctorat. La façon dont ils ont dirigé mes travaux, leur permanente disponibilité, les discussions fructueuses et les conseils concernant mes recherches m'ont beaucoup aidé tout au long de mon doctorat.

Je dois mentionner la contribution des professeurs Robert Cochrane de l'Université de Montréal et Alexandru Stancu de l'Université « Al. I. Cuza » de Iasi en Roumanie. De même, je dois souligner la collaboration de mes collègues, Fanny Béron et les docteurs Mariana Ciureanu et Adrian Ovari.

Je remercie aussi ma famille et mes amis.

Résumé

Les ensembles de nanofils ferromagnétiques amorphes sont beaucoup étudiés grâce à leur potentiel technologique ; les milieux d'enregistrement de l'information à très haute densité, les dispositifs logiques et les capteurs magnétiques représenteraient seulement quelques applications envisagées pour ce nouveau type de matériaux. Outre ces applications technologiques et l'importance industrielle de l'étude de tels matériaux, les nouvelles propriétés physiques des systèmes à l'échelle nanométrique ouvrent de nouveaux concepts et suggèrent des lois physiques qui ne se retrouvent pas à l'échelle macro ou même micro.

Dans cette thèse on analyse de point de vue théorique le champ d'interaction, le champ coercitif et les processus d'aimantation des grands ensembles de nanofils ferromagnétiques. On démontre que le champ d'interaction dans ce genre de systèmes peut être calculé par une méthode hybride (numérique et analytique) : la contribution des premiers voisins est évaluée en utilisant une discrétisation par éléments finis (*contribution discrète*) tandis que les nanofils plus éloignés sont considérés comme une distribution continue de l'aimantation (*contribution continue*). Pour les nanofils très courts (dizaines de nanomètres) le champ d'interaction est directement proportionnel à la longueur des nanofils (*le régime dipolaire*) tandis que pour les nanofils plus longues (micromètres et dizaines de micromètres) le champ

augmente d'une façon linéaire mais avec une pente beaucoup moindre (*le régime monopolaire*). Le champ d'interaction est directement lié à la surface du réseau (à cause de la contribution continue) et pour une surface très petite on pourrait même avoir une diminution du champ d'interaction avec la longueur des nanofils.

À l'aide des simulations micromagnétiques numériques on trouve que les processus d'aimantation sur la direction de l'axe de symétrie d'un nanofil ferromagnétique sont différents de ceux prédis par le modèle des rotations cohérentes Stoner-Wohlfarth (SW) : les petites longueurs présentent des processus plutôt réversibles tandis que les nanofils plus longues auraient un comportement presque irréversible mais le champ de nucléation prédict par le modèle SW est trop grand. Par contre, malgré les rotations fortement incohérentes de l'aimantation dans les processus de renversement des nanofils plus gros, le champ d'anisotropie sur la direction perpendiculaire aux axes de symétrie des nanofils reste constant pour tout le domaine de longueurs du régime monopolaire. En plus, car ce champ est bien reproduit par le modèle SW, il peut être utilisé comme une liaison entre le modèle physique SW et les résultats obtenus avec les modèles micromagnétiques. Avec cette liaison, le champ d'anisotropie effective d'un nanofil individuel peut être estimé en utilisant seulement les mesures magnétométriques dans le plan du réseau. L'avantage par rapport aux mesures de résonance ferromagnétique est que le champ d'interaction est pris en considération d'une façon implicite et qu'on travaille avec des informations assez vagues concernant la géométrie des réseaux.

Le champ coercitif des réseaux ferromagnétiques constitue une caractéristique *locale* du système et sa variation par rapport au champ coercitif d'un nanofil individuel est directement liée à deux facteurs : *champ d'interaction* et *mécanisme de renversement* de l'aimantation. Le champ d'interaction diminue le champ coercitif des réseaux seulement dans le cas d'inversion par rotations cohérentes ou « curling », c'est-à-dire pour les nanofils très minces (quelques « longueurs d'échange » en diamètre), pour lesquels la formation de pôles magnétiques sur leur surface lors du renversement est inévitable. Pour les nanofils avec un diamètre plus grand, l'influence du champ d'interaction devient minimale et la coercivité du réseau est égale avec le champ coercitif du nanofil individuel (malgré le fait que le champ d'interaction est beaucoup plus fort!). Cet effet puise dans la tendance de la matière aimantée d'éviter la formation des pôles magnétiques : les fils plus minces résolvent ce problème d'une façon collective (*vortex collectif*) tandis que les fils plus gros (par leur structure de domaines) sont capables d'éviter eux-mêmes la formation de tels pôles sur leur surface. On pourrait dire qu'en augmentant le diamètre des nanofils, le caractère local du champ coercitif est restreint graduellement au niveau du nanofil individuel et ensuite, les deux coercivités deviennent égales.

Le régime dipolaire des fils plus gros (dans lesquels la formation d'une structure de type « vortex » devient plus probable) présente une saturation dans le champ coercitif et cette saturation est due au processus d'inversion de l'aimantation dans la région axiale du nanofil (dans le cœur du vortex). On a élaboré un *modèle*

analytique de type vortex rigide pour les nanodisques ferromagnétiques amorphes, modèle avec lequel on démontre que la saturation du champ coercitif de ces systèmes puise dans les processus axiaux de renversement du cœur d'un vortex magnétique.

Les courbes de renversement de premier ordre (FORC) sont des mesures appropriées pour obtenir des informations concernant les propriétés empiriques des nanofils ferromagnétiques dans un réseau. Pour les réseaux de nanofils à faible coercivité, un algorithme de type Sheppard pour la dérivée seconde (mixte) des courbes FORC fournit une très bonne séparation entre les deux parties (réversible et irréversible) du diagramme FORC. Le champ d'interaction à la saturation est bien décrit par la variance de la partie irréversible du diagramme sur la direction des interactions.

Abstract

Ferromagnetic nanowire arrays are of great technological interest and have become very promising systems in designing high-density and perpendicular recording media, logic gates and magnetic sensors. Moreover, these systems introduce new theoretical challenges because of their small dimensions and low dimensionality. In this work, we analyze the interaction field, the coercive field and the magnetization loops of extended nanowire arrays both from a theoretical and an experimental point of view.

We demonstrate here that the interaction field in extended nanowire arrays can be evaluated by a hybrid algorithm (numerical and analytical) : the magnetic field from the first order neighbors is evaluated by a finite element method (*discrete contribution*) whereas the farther nanowires are considered to be a continuous distribution of magnetization (*continuous contribution*). Very short nanowires (tens of nanometers) behave like magnetic dipoles and the magnetic field they generate increases in proportion with their length (*dipolar regime*) whereas longer nanowires behave like double-sided distributions of magnetic monopoles whose magnetic field increases linearly with their length but with a much smaller slope (*monopolar regime*). The interaction field is strongly dependent upon the surface and the shape of the array (because of the continuous contribution) and for very small samples one

even observes a decrease of the interaction field with the length of the nanowires.

We simulated the magnetization processes in individual ferromagnetic nanowires using both Stoner-Wohlfarth (for coherent rotations) and fully numerical micromagnetic models. We found that despite the strongly incoherent rotations, the nanowire reversal mechanism in the in-plane direction can properly be described by the Stoner-Wohlfarth (SW) model. This observation allows us to link the SW model with numerical micromagnetic models in order to give some physical significance to the results obtained by numerical simulations. We found that the effective anisotropy field of an individual ferromagnetic nanowire can be evaluated from the in-plane magnetic measurement of the array and have developed a phenomenological model in order to simplify this calculation. Using this model we can easily evaluate the effective anisotropy field of individual nanowires from magnetic measurements of the array and adjust the fabrication process in order to obtain a desired anisotropy. The main advantage of this approach (when compared with ferromagnetic resonance experiments) consists of the fact that the interaction field is taken into account in an implicit manner. Moreover, the model can deal with relatively few and even low precision data concerning the array geometry and it does not need information about the saturation magnetization at all.

We demonstrate by numerical micromagnetic simulations that the coercivity of ferromagnetic nanowire arrays is a *local* characteristic of the system and its variation, when compared with the coercivity of an individual nanowire, is decided

by two factors : the *interaction field* and the *reversal mechanism* in individual nanowires. The first diminishes the coercive field only when coherent rotations or « curling » processes are involved in the reversal mechanism. So, the variation of the coercive field is a characteristic of thin ferromagnetic nanowires (diameters of few « exchange lengths ») and originates in the pole distributions generated onto theirs sides during the magnetization reversal. In this case, the pole avoidance principle is applied to a *collection* (tens to hundreds) of ferromagnetic nanowires and determines the appearance of *collective vortex* structures. For nanowires with larger diameters, pole avoidance can be achieved in *individual* nanowires because of their multi-domain structure and the coercive field of both array and individual nanowire are almost identical. Besides, the dipolar regime of large ferromagnetic nanowires presents a saturation in coercitivity. We elaborate an *analytical rigid vortex model* in order to demonstrate that this saturation originates in the axial magnetization processes of the inner core vortex.

First order reversal curves (FORC) are proposed here as an experimental method for determining various empirical properties of individual nanowires and theirs arrays. Using a Sheppard-type interpolation of the experimental FORC data, we obtain a very good precision for the mixed second derivative of these curves and consequently, a very good separation between the reversible and the irreversible parts of the FORC diagram. The interaction field variance of the irreversible part is a very good approximation of the interaction field in uniformly magnetized na-

nowire arrays.

Table des matières

| | |
|--|-------|
| Dédicace | iv |
| Remerciements | v |
| Résumé | vi |
| Abstract | x |
| Table des matières | xiv |
| Liste des tableaux | xvii |
| Liste des figures | xviii |
| Liste des sigles et abréviations | xxii |
| Liste des symboles | xxiii |
| Introduction | 1 |
| 1 Méthodes de modélisation micromagnétique | 7 |
| 1.1 Modèles micromagnétiques analytiques | 9 |
| 1.1.1 Le modèle Stoner-Wohlfarth | 10 |
| 1.1.2 Le modèle analytique de type vortex rigide | 12 |

| | | |
|----------|--|-----------|
| 1.2 | Modèles micromagnétiques numériques | 16 |
| 2 | Études des nanofils et des réseaux de nanofils | 19 |
| 2.1 | L'étude des nanofils individuels | 20 |
| 2.2 | L'étude des réseaux de nanofils | 21 |
| 2.3 | L'effet du réseau sur les propriétés empiriques des nanofils individuels | 23 |
| 3 | Modélisation des champs et des processus d'aimantation | 26 |
| 3.1 | Champ d'interaction | 27 |
| 3.1.1 | Champ magnétique dans la matière aimantée | 28 |
| 3.1.2 | Champ magnétique dans les réseaux saturés de nanofils ferromagnétiques (article [3]) | 33 |
| 3.2 | Champ d'anisotropie effective (article [4]) | 43 |
| 3.3 | Nucléation et champ coercitif | 53 |
| 3.3.1 | Champ coercitif des nanofils individuels et des réseaux de nanofils | 54 |
| 3.3.1.1 | Champ coercitif des nanofils individuels | 55 |
| 3.3.1.2 | Champ coercitif des réseaux de nanofils | 58 |
| 3.3.1.3 | Interprétation des résultats | 60 |
| 3.3.2 | Modèle analytique pour les processus axiaux des vortex magnétiques | 65 |
| 3.3.2.1 | L'énergie Zeeman | 65 |
| 3.3.2.2 | L'énergie d'échange | 66 |
| 3.3.2.3 | L'énergie du champ démagnétisant | 68 |
| 3.3.2.4 | L'énergie totale | 69 |
| 3.3.3 | Champ coercitif résiduel dans les nanodisques ferromagnétiques amorphes | 70 |
| 3.4 | Courbes de renversement de premier ordre | 73 |

| | | |
|-----------------|--|------------|
| 3.4.1 | Algorithme numérique de calcul d'un diagramme FORC (article [5]) | 75 |
| 3.4.2 | Diagrammes FORC des réseaux de nanofils | 80 |
| 4 | Discussions et conclusions | 84 |
| | Références | 90 |
| Annexe 1 | Interactions magnétostatiques dans les réseaux de nanofils ferromagnétiques (article à paraître dans le <i>Journal of Magnetism and Magnetic Materials</i>) | 94 |
| Annexe 2 | Caractérisation des nanofils ferromagnétiques en utilisant les mesures magnétométriques du réseau (article à paraître dans le <i>Journal of Magnetism and Magnetic Materials</i>) | 106 |
| Annexe 3 | Algorithme de calcul basé sur la méthode de Shepard pour les diagrammes FORC (article paru dans le <i>Journal of Optoelectronics and Advanced Materials</i>) | 112 |
| Annexe 4 | Liste des publications de l'auteur (2003-présent) | 118 |

Liste des tableaux

| | | |
|---|---|---|
| 1 | Tableau comparatif des termes d'anisotropie magnétocristalline (k_u) et géométrique (k_g) pour trois des plus importants matériaux ferromagnétiques (cylindres infinis) | 3 |
|---|---|---|

Liste des figures

| | |
|---|----|
| 1.1 a) Structure magnétique de type vortex obtenue avec les équations (1.4) et (1.5) pour $a = 0$ et $c = 0.5$; b) La dépendance $m_z(r)$ pour la composante axiale de l'aimantation. À l'extérieur du cœur du vortex ($r \geq R_v$) $m_z(r) =$ 0. Pour $a \neq 0$ la structure vortex sera déplacée sur l'axe Or avec x_v tel que donné par l'équation (1.8). | 14 |
| 3.1 L'ensemble Ω (délimité par la ligne continue) de particules ferromagné- tiques ω_k (les petites taches en couleur foncé) et les divisions Ω_k (délimi- tées par les lignes pointillées). L'espace entre les particules ferromagné- tiques est considéré comme non ferromagnétique. | 29 |
| 3.2 Réseau carré de nanofils ferromagnétiques. | 34 |
| 3.3 Les régions Ω_1 et Ω_2 dans un réseau étendu de nanofils ferromagnétiques. | 36 |
| 3.4 Champ total obtenu avec l'équation (3.14) pour un nombre N de nanofils dans la région Ω_1 de plus en plus grand. $l = 10 \mu m$, $R = 25 nm$, $d =$ $150 nm$, $M_s = 1.5 \times 10^6 A/m$ et une surface totale du réseau de $1 cm^2$ | 37 |
| 3.5 Tracé de contours du champ magnétique (en A/m) dans le plan Π d'un nanofil uniformément aimanté sur la direction axiale Oz (a) et transversale Oy (b). | 39 |

| | |
|--|----|
| 3.6 a) Valeurs absolues du champ magnétique total pour un réseau infini uniformément aimanté sur la direction axiale (OOP). L'aimantation à la saturation $M_s = 1.7 \times 10^6 A/m$ et le rayon des nanofils $r = 25 nm$. La distance entre les nanofils varie de 200 à 300 nm avec un pas de 20 nm. D - région dipolaire, T - région de transition et M - région monopolaire. b) Élargissement de la région dipolaire et comparaison avec l'approximation de dipôle (en ligne pointillée). | 41 |
| 3.7 Comparaison entre la théorie et l'expérience en ce qui concerne le champ de saturation de deux réseaux de nanofils ferromagnétiques : a) Co, mesures expérimentales de Strijkers et al. [36] et b) CoFeB, mesures expérimentales de Ciureanu et al. [37]. | 42 |
| 3.8 Champ d'interaction sur la direction OOP d'un réseau de nanofils à surface infinie : comparaison entre les résultats numériques obtenus dans la référence [3] et l'expression analytique (3.16). Dans la légende de cette figure M_s représente l'aimantation à la saturation, D est le diamètre des nanofils, d la distance moyenne entre les nanofils et l_d la longueur dipolaire. | 46 |
| 3.9 Courbes d'aimantation IP (modélisation micromagnétique) de 5 nanofils en Ni pour trois valeurs de la longueur et le même diamètre (sur la première diagonale) et trois valeurs du diamètre et la même longueur (sur la deuxième diagonale). | 47 |
| 3.10 Courbes d'aimantation majeure (CAM) d'un nanofil amorphe en Ni ($l = 1 \mu m$ pour la longueur et $D = 50 nm$ pour son diamètre). Comparaison entre les modèles micromagnétiques (ligne continue+points) et le modèle SW (ligne continue) pour deux directions du champ magnétique externe : IP - perpendiculaire sur l'axe de symétrie du nanofil et OOP - parallèle à cet axe. | 49 |

| | |
|---|----|
| 3.11 Champ coercitif des nanofils individuels en Ni sur la direction axiale en fonction de la longueur. Modélisation micromagnétique et comparaison avec le modèle Stoner-Wohlfarth (SW) pour deux valeurs du diamètre : 30 nm (cercles) et 100 nm (triangles). | 56 |
| 3.12 Réseau carré de 16 nanofils de type $n_1d - n_2d$. Le diamètre des nanofils est n_1d tandis que l'espacement est $(n_1 + n_2) \cdot d$. Les réseaux $n_1d - n_2d$ et $n_2d - n_1d$ contiennent des nanofils de diamètres différents (n_1d et n_2d) mais l'espacement entre les nanofils est le même : $(n_1 + n_2) \cdot d = (n_2 + n_1) \cdot d$ | 58 |
| 3.13 Le champ coercitif des réseaux à nanofils minces en fonction de la longueur. | 60 |
| 3.14 Comparaison entre les champs coercitifs d'un nanofil individuel et d'un réseau de nanofils gros (100 nm en diamètre). Outre la diminution du champ coercitif au fur et à mesure que les longueurs des nanofils deviennent de plus en plus petites, on observe une saturation (palier) à 15 mT dans la région dipolaire (des petites longueurs). | 61 |
| 3.15 Comparaison entre le champ coercitif d'un réseau de nanofils gros et le champ coercitif d'un réseau de nanofils minces avec le même espacement. | 63 |
| 3.16 L'énergie totale d'un vortex magnétique en fonction du paramètre c pour un champ externe qui correspond à 80 mT : l'état d'équilibre correspond au minimum énergétique ($c = 0.372$). | 70 |
| 3.17 Énergie d'équilibre en fonction de la valeur absolue du champ magnétique externe pour une aimantation axiale parallèle au champ appliqué ($\uparrow\uparrow$) et antiparallèle à ce champ ($\uparrow\downarrow$). On a considéré dans ces calculs un cylindre en Ni dont le rayon est $R = 50\text{ nm}$ et la longueur $L = 20\text{ nm}$ | 72 |
| 3.18 Courbes d'aimantation de premier ordre (FORC) | 76 |
| 3.19 L'ensemble des courbes de renversement de premier ordre représenté sous la forme d'une fonction bidimensionnelle définie sur le plan (H, H_r) et le polynôme d'interpolation $f^k(H_r, H)$ pour le noeud k | 77 |

| | |
|---|----|
| 3.20 Diagramme FORC typique sur la direction OOP pour un réseau de nanofils ferromagnétiques en Ni. | 79 |
| 3.21 Section de la partie irréversible d'un diagramme FORC sur la direction H_i^* (voir la figure 3.20) des champs d'interaction. | 81 |

Liste des sigles et abréviations

- CAM - Courbe d’Aimantation Majeure¹
- CDM - Courbe de Démagnétisation Majeure²
- ED - Éléments Discrets ;
- EF - Éléments Finis ;
- FORC - First Order Reversal Curves (ang.) (courbes d’aimantation du premier ordre) ;
- IP - in-plane (ang.) utilisé pour désigner la direction perpendiculaire sur les axes de symétrie des nanofils ;
- MAVR - Modèle Analytique du Vortex Rigide
- OOMMF - Object Oriented MicroMagnetic Framework (ang.)
- OOP - out-of-plane (ang.), utilisé pour désigner la direction parallèle aux axes de symétrie des nanofils ;
- SW - Stoner-Wohlfart ;

¹Loading major hysteresis loop (ang.)

²Unloading major hysteresis loop (ang.)

Liste des symboles

| | |
|-------------------------|--|
| a | - paramètre adimensionnel lié au déplacement d'un vortex magnétique |
| A | - constante d'échange d'un matériau ferromagnétique |
| α, β, γ | - cosinus directeurs d'une direction dans l'espace cartésien |
| c | - paramètre adimensionnel lié au rayon du coeur d'un vortex magnétique |
| \mathbb{C} | - l'ensemble des nombres complexes |
| d | - espacement des nanofils dans un réseau |
| D | - diamètre d'un nanofil ferromagnétique |
| $d\vec{S}$ | - élément infinitésimal de surface |
| e_{anis}, E_{anis} | - densité volumique et énergie d'anisotropie magnétocristalline |
| e_{demag}, E_{demag} | - densité volumique et énergie du champ démagnétisant |
| e_{ech}, E_{ech} | - densité volumique et énergie d'échange |
| e_{EX}, E_{EX} | - densité volumique et énergie d'échange pour un vortex magnétique |
| e_M, E_M | - densité volumique et énergie Zeeman (du champ externe) |
| e_{MS}, E_{MS} | - densité volumique et énergie du champ démagnétisant d'un vortex magnétique |
| e_{tot}, E_{tot} | - densité volumique et énergie totale |

| | |
|------------------------|--|
| e_Z, E_Z | - densité volumique et énergie Zeeman (du champ externe) pour un vortex magnétique |
| $\varphi(\cdot)$ | - potentiel magnétique scalaire |
| $\phi(\cdot, \cdot)$ | - fonction gaussienne non normalisée |
| g | - facteur de forme d'un cylindre (rayon sur longueur) |
| $\gamma(\cdot, \cdot)$ | - fonction de Green |
| $\gamma(\cdot)$ | - fonction caractéristique des réseaux étendus de nanofils ferromagnétiques |
| \vec{H} | - champ magnétique |
| H_c | - champ coercitif sur la courbe d'aimantation majeure |
| $H_{c0}(\cdot)$ | - champ coercitif d'un nanofil individuel sur la courbe d'aimantation majeure |
| H_{c0} | - valeur particulière du champ critique sur une diagramme FORC |
| \vec{H}_{eff} | - champ local effectif de type Brown |
| \vec{H}_{ext} | - champ magnétique externe |
| $H_{i,sat}$ | - champ d'interaction à la saturation |
| h_k | - champ d'anisotropie effective d'un nanofil ferromagnétique |
| \mathcal{H} | - champ magnétique généré par un sous-ensemble de particules ferromagnétiques |
| k_g | - constante d'anisotropie géométrique équivalente |
| k_u | - constante d'anisotropie magnétocristalline |
| K_1 | - le premier coefficient de l'énergie d'anisotropie magnétocristalline |
| l | - longueur d'un nanofil ferromagnétique |
| m_j | - moment magnétique du noeud j d'un maillage |

| | |
|---------------|---|
| m_{xy} | - composante scalaire de l'aimantation circonférentielle d'un vortex magnétique |
| m_z | - composante scalaire axiale de l'aimantation d'un vortex magnétique |
| \vec{M} | - vecteur aimantation |
| M_s | - aimantation de saturation d'un matériau ferromagnétique |
| \mathcal{M} | - moment magnétique d'un sous-ensemble de particules ferromagnétiques |
| μ_0 | - perméabilité magnétique de l'espace vide |
| \vec{n} | - vecteur unitaire normal à une surface |
| \mathcal{N} | - ensemble des indices des noeuds d'un maillage |
| ∇ | - opérateur <i>nabla</i> |
| Ω | - ensemble de particules ferromagnétiques |
| Ω_k | - sous-ensemble de particules ferromagnétiques |
| ω_k | - élément d'un ensemble de particules ferromagnétiques |
| \vec{r} | - vecteur de position |
| S_i | - fonction de distribution sur la direction des interactions |
| σ_i | - variance sur la direction des interaction |

Introduction

Les réseaux de nanofils ferromagnétiques représentent des systèmes bidimensionnels de cylindres ferromagnétiques avec un diamètre de quelques dizaines de nanomètres. La longueur de ces cylindres peut varier entre quelques dizaines de nanomètres et quelques dizaines de micromètres et, dans un réseau de bonne qualité, les nanofils sont presque identiques et parallèles entre eux. Pour définir une telle structure il faut connaître :

- le matériau ferromagnétique utilisé y compris sa structure cristalline ;
- les dimensions géométriques des nanofils (longueur et rayon) et du réseau au complet ;
- les distances entre les nanofils et la structure du réseau (carré, hexagonal, irrégulier, etc.).

Les données expérimentales analysées dans ce travail consistent en courbes d'aimantation *statiques* de ces réseaux, c'est-à-dire que pour chaque valeur du champ

externe le moment magnétique du réseau est mesuré après un intervalle de temps assez grand pour que le système puisse être considéré dans son état d'équilibre magnétostatique. Les principales courbes d'aimantation mesurées sont les *courbes d'aimantation majeure* (CAM) [1] et les *courbes de renversement de premier ordre* (First Order Reversal Curves - FORC) [2]. Dans cette thèse on s'est limité à deux directions sur lesquelles on a mesuré ce genre de courbes : la direction parallèle aux axes des nanofils (out-of-plane ou OOP) et la direction perpendiculaire à ces axes (in-plane ou IP). Toute autre valeur considérée comme expérimentale dans cette thèse est reliée d'une façon directe ou indirecte à ces courbes d'aimantation. Les *propriétés empiriques* [1] que nous avons modélisées dans ce travail sont le *champ de saturation* et le *champ coercitif* des réseaux de nanofils et des nanofils individuels. L'accord entre théorie et expérience en ce qui concerne les propriétés empiriques des réseaux est vérifié à l'aide de leurs courbes d'aimantation majeure. Quant aux nanofils individuels, les mesures directes sont plus difficiles ; c'est la raison pour laquelle on propose une mesure des propriétés empiriques de ces systèmes en utilisant les diagrammes FORC des réseaux au complet et on propose un algorithme numérique performant pour calculer ces diagrammes.

La modélisation des réseaux de nanofils ferromagnétiques comporte quelques caractéristiques distinctives par rapport à la modélisation des massifs. Par exemple, pour certains réseaux de nanofils, le terme d'anisotropie magnétocristalline peut être négligé par rapport au terme d'anisotropie géométrique. Même si la structure

TAB. 1 – Tableau comparatif des termes d'anisotropie magnétocristalline (k_u) et géométrique (k_g) pour trois des plus importants matériaux ferromagnétiques (cylindres infinis)

| Matériaux | $k_g (\times 10^6 \text{ J/m}^3)$ | $k_u (\times 10^6 \text{ J/m}^3)$ | $\frac{k_g}{k_u}$ |
|-----------|-----------------------------------|-----------------------------------|-------------------|
| Co | 1.23 | 0.52 | 2.36 |
| Ni | 0.15 | 0.0057 | 26.31 |
| Fe | 1.81 | 0.048 | 37.70 |

cristalline est loin d'être amorphe, on pourrait quand même obtenir un comportement micromagnétique amorphe d'un certain matériau en lui réduisant la dimensionnalité et agrandir de cette manière la contribution géométrique (voir le tableau comparatif 1). On pourrait dire que le terme qui a gagné beaucoup d'importance au fur et à mesure qu'on a diminué le diamètre des nanofils est le terme d'anisotropie géométrique. Si le Ni et le Fe constituent des excellents exemples dans ce sens, le Co fait une exception : son anisotropie magnétocristalline est trop importante par rapport à l'anisotropie géométrique équivalente, et une sérieuse analyse de la structure cristalline doit être prise en considération.

La relation entre les propriétés physiques d'un certain ensemble de particules et ses paramètres extensifs constitue un facteur très important pour la modélisation des processus de ces ensembles. Quant aux réseaux de nanofils ferromagnétiques, certains paramètres présentent une saturation rapide avec l'augmentation du nombre de particules (le champ coercitif par exemple) tandis que des autres sont fortement dépendants de la grandeur réelle de l'échantillon (le champ d'interaction

à la saturation). C'est la raison pour laquelle on a étudié le premier type de paramètres à l'aide des simulations micromagnétiques, tandis que pour la deuxième catégorie on a créé des algorithmes hybrides (numériques et analytiques), algorithmes capables de prendre en considération les dimensions réelles du système et le grand nombre de particules y compris.

Dans les deux premiers chapitres de cette thèse on fait une revue critique de la littérature pertinente et en même temps, une courte introduction à la modélisation des réseaux de nanofils ferromagnétiques. Les modèles micromagnétiques sont présentés en tenant compte de leur émergence historique et aussi de leur importance dans l'évolution des idées scientifiques. On essaie de présenter le contexte scientifique de l'époque afin de mieux mettre en évidence l'importance de ce travail de doctorat, les problèmes qu'il a résolus et les contributions apportées à la modélisation des nanostructures ferromagnétiques.

Dans la première section du troisième chapitre on présente une méthode de calcul du champ d'interaction pour un réseau à surface très grande (infinie) et on fait ensuite une particularisation de cette méthode pour le champ d'interaction d'un réseau uniformément aimanté. On discute la dépendance du champ d'interaction en fonction de la longueur des nanofils, des distances réciproques entre eux et du type de réseau et on montre l'importance théorique de ce calcul. Ce travail a été publié dans le *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* sous forme d'article régulier ([3], voir l'annexe 1).

Le travail fait sur le calcul du champ d'interaction est continué dans la deuxième section de ce chapitre (section 3.2) avec un modèle phénoménologique et une méthode d'identification des anisotropies d'un matériau ferromagnétique en utilisant les courbes d'hystérésis dans le plan (IP) du réseau. L'idée de cette stratégie puise dans le champ d'anisotropie effective du modèle Stoner-Wohlfarth (SW) et dans les simulations micromagnétiques numériques des processus d'aimantation IP pour les nanofils individuels. Les réseaux en Ni ont été utilisés pour valider cette nouvelle méthode et quelques mesures expérimentales pour des membranes remplies avec d'autres matériaux ferromagnétiques sont aussi présentées. Le travail complet est présenté dans l'annexe 2 comme article de journal dans la forme dont il est paru dans le *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* ([4]).

Dans la section 3.3 on fait une analyse micromagnétique de la réduction du champ coercitif du réseau par rapport au nanofil individuel. À l'aide des modèles micromagnétiques numériques on montre que cette réduction est conditionnée par le mécanisme de renversement et on donne une explication qualitative de ce phénomène. On élabore aussi un modèle analytique de type vortex rigide pour les processus axiaux des nanofils très courts. En utilisant ce modèle, on montre que le champ coercitif résiduel de ces nanofils puise dans les processus de renversement dans le cœur du vortex magnétique.

L'accord entre la théorie et l'expérience en ce qui concerne les champs d'interaction à la saturation est vérifié en utilisant les courbes d'aimantation des réseaux.

En plus, on propose une identification des propriétés empiriques d'un nanofil individuel et des réseaux de nanofils sur le diagramme FORC du réseau au complet et on présente notre approche en ce qui concerne le calcul numérique de ces diagrammes. Ce nouvel algorithme de calcul et une comparaison avec un autre, largement utilisé dans la littérature (Pike [2]) sont discutés dans la section 3.4 et présenté intégralement dans l'annexe 3 dans la forme dont il est paru dans le *Journal of Optoelectronics and Advanced Materials* ([5]).

Le dernier chapitre contient les conclusions, les contributions originales et des discussions concernant les extensions des travaux présents et futures en ce qui concerne la modélisation des réseaux de nanofils ferromagnétiques.

Chapitre 1

Méthodes de modélisation micromagnétique

Une théorie des processus d'aimantation statiques des systèmes ferromagnétiques a pour but de fournir l'état d'aimantation de ces systèmes, en fonction du champ magnétique appliqué. Pour les systèmes très petits (en général nanoparticules ferromagnétiques) il se peut que l'aimantation soit toujours uniforme et que les processus d'aimantation consisterait en *rotations cohérentes* de l'aimantation. Pour ce genre de systèmes, l'état d'aimantation est toujours donné par les trois composantes scalaires M_x , M_y , M_z du vecteur aimantation \vec{M} et le problème que le modèle doit résoudre serait de trouver les composantes scalaires de ce vecteur pour chaque valeur du champ magnétique appliqué.

Pour des systèmes plus grands, le vecteur aimantation n'est plus uniforme et l'état d'aimantation d'un tel système est défini à l'aide d'une fonction vectorielle

$\vec{M}(\vec{r})$ où \vec{r} représente le vecteur de position d'un certain point du système. Les processus d'aimantation ne peuvent plus être considérés comme des rotations uniformes car l'évolution de l'aimantation d'un point à l'autre peut être très différente. Dans ce cas, le problème à résoudre est plus complexe et consiste à trouver la fonction vectorielle $\vec{M}(\vec{r})$ en fonction du champ magnétique appliqué.

Dans les deux cas (rotations uniformes et rotations non-uniformes), l'aimantation dans l'état d'équilibre est trouvée en imposant la condition que dans cet état l'énergie totale du système soit minimale :

$$\delta E_{tot} \left[\vec{M} \right] = 0. \quad (1.1)$$

La façon dans laquelle on fait la minimisation de l'énergie totale est dépendante de la façon dans laquelle on représente la fonction $\vec{M}(\vec{r})$:

- Quand cette fonction est représentée sous une forme analytique, le minimum enérgétique peut être trouvé par un calcul analytique et on parle de *modèles micromagnétiques analytiques*.
- Parfois on n'a pas besoin d'une expression analytique pour la fonction $\vec{M}(\vec{r})$ et on travaille plutôt avec sa représentation discrète, c'est-à-dire avec les valeurs numériques des composantes scalaires M_x , M_y et M_z de l'aimantation à chaque point d'un maillage quelconque. La minimisation est faite dans ce cas par une approche numérique et on parle de *modèles micromagnétiques*

numériques.

La plupart des résultats de ce travail puisent dans la comparaison des modèles analytiques avec les modèles numériques : par modélisations numériques et analytiques d'un même système, on a établi les limites d'applicabilité de ces derniers et on les a utilisés ensuite pour établir une liaison entre les propriétés empiriques du système (champ de saturation, champ coercitif) et ses propriétés physiques (géométrie, champ d'anisotropie).

Nous présenterons par la suite une revue de ces deux approches.

1.1 Modèles micromagnétiques analytiques

Les modèles micromagnétiques analytiques que nous avons utilisés pour les processus d'aimantation des nanofils ferromagnétiques sont :

- le modèle Stoner-Wohlfarth (SW) et
- le modèle analytique de type vortex rigide (MAVR), pour les processus axiaux (champ appliqué sur la direction de l'axe de symétrie) des nanofils très courts.

On présente par la suite les principes de base et la structure générale de ces deux modèles.

1.1.1 Le modèle Stoner-Wohlfarth

Le modèle Stoner-Wohlfarth [6] s'applique aux processus de renversement de l'aimantation d'un corps ferromagnétique par *rotations cohérentes*. Puisque l'aimantation du système est uniforme, l'énergie d'échange reste toujours constante et ne présente aucun intérêt dans un problème de minimisation de l'énergie totale. Alors, on peut considérer que l'énergie totale est donnée seulement par

$$E_{tot} [\vec{M}] = E_M [\vec{M}] + E_{anis} [\vec{M}] \quad (1.2)$$

où E_M est l'énergie du champ magnétisant (externe) et E_{anis} est l'énergie d'anisotropie (y compris géométrique). Dans un système uniaxe l'énergie totale (1.2) peut être exprimée en fonction d'une seule variable - l'angle θ fait par l'aimantation avec la direction de l'axe d'anisotropie - et le vecteur aimantation \vec{M} est trouvé par la résolution du système d'équations

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial E_{tot}}{\partial \theta} = 0 \\ \frac{\partial^2 E_{tot}}{\partial \theta^2} > 0 \end{array} \right. . \quad (1.3)$$

La résolution de ce système peut être faite par la méthode de Slonczewski [7]. Quant aux échantillons avec anisotropie magnétocristalline, le modèle devient tout de suite applicable si on utilise pour le terme d'anisotropie magnétocristalline une approximation avec les termes d'ordre 2 seulement [1]. En considérant un terme

d'ordre 4 pour le terme de l'énergie magnétocristalline, Yelon a formulé un modèle de type Stoner-Wohlfarth pour les matériaux biaxe [8] et il a généralisé ensuite ce modèle pour les systèmes avec plusieurs axes de symétrie [9]. Stancu et Chiorescu ont analysé le phénomène de croisement¹ des branches pour les processus d'aimantation quasi-transversales [10] et ils ont montré que ce phénomène est causé par le terme d'ordre 2 de l'énergie magnétocristalline. L'apogée de la modélisation des rotations cohérentes est atteint en 2000, avec la généralisation du modèle SW en trois dimensions de Thiaville [11].

Des études expérimentales [12, 13] et théoriques (par modélisation micromagnétique numérique) [14] du champ coercitif des nanofils individuels ont montré des différences importantes (même en dessus de 50 %) par rapport au modèle Stoner-Wohlfarth en ce qui concerne le champ coercitif sur la direction axiale mais aucune étude systématique des courbes d'aimantation au complet ou des autres propriétés empiriques n'a été faite. Dans ce travail (section 3.2), nous avons considéré les nanofils ferromagnétiques comme des systèmes uniaxes et nous avons comparé les courbes d'aimantation (au complet) obtenues par modélisation micromagnétique numérique et par le modèle Stoner-Wohlfarth. En plus, nous avons établi une liaison entre les champs de saturation dans ces deux modèles.

¹cross-over (ang.)

1.1.2 Le modèle analytique de type vortex rigide

Les mesures de microscopie de force magnétique [15, 16] et micromagnétométrie Hall [16] ont montré que les nanoparticules ferromagnétiques cylindriques présentent souvent une structure magnétique de type *vortex*. Ce type de structure magnétique est caractérisé par la présence de trois régions :

- une région centrale, dans laquelle l'aimantation est sur la direction axiale (fig. 1.1),
- une région circonférentielle dans laquelle l'aimantation est tangente à la circonférence et
- une région de transition entre les deux, dans laquelle le vecteur aimantation change graduellement son orientation d'une direction vers l'autre.

Le modèle analytique du vortex rigide (MAVR) consiste dans un ensemble de fonctions qui décrivent l'orientation de l'aimantation dans chaque point de ces régions [17] :

$$m_{xy} = m_x + i \cdot m_y = \frac{2w}{1 + w\bar{w}} \quad (1.4)$$

pour la composante circonférentielle de l'aimantation et

$$m_z = \frac{1 - w\bar{w}}{1 + w\bar{w}} \quad (1.5)$$

pour la composante axiale. Dans ces deux équations $w : \mathbb{C} \rightarrow \mathbb{C}$ est une fonction complexe définie par

$$w(s) = \begin{cases} \frac{i}{c} \frac{s-a}{1-\bar{a}s} & |s-a| < c|1-\bar{a}s| \\ i \frac{(s-a)(1-a\bar{s})}{|s-a||1-\bar{a}s|} & |s-a| \geq c|1-\bar{a}s| \end{cases} \quad (1.6)$$

où $s \in \mathbb{C}$ est utilisé au lieu du vecteur de position $\vec{r}(X, Y)$:

$$s = \frac{X}{R} + i \frac{Y}{R}. \quad (1.7)$$

Dans l'équation (1.6), les variables a et c représentent deux nombres complexes reliés à la configuration du vortex magnétique par

$$x_v = \frac{a(1-c^2)}{1-a^2c^2} R \quad (1.8)$$

pour le déplacement IP du coeur du vortex par rapport à l'axe de symétrie du cylindre et

$$R_v = \frac{c(1-a^2)}{1-a^2c^2} R \quad (1.9)$$

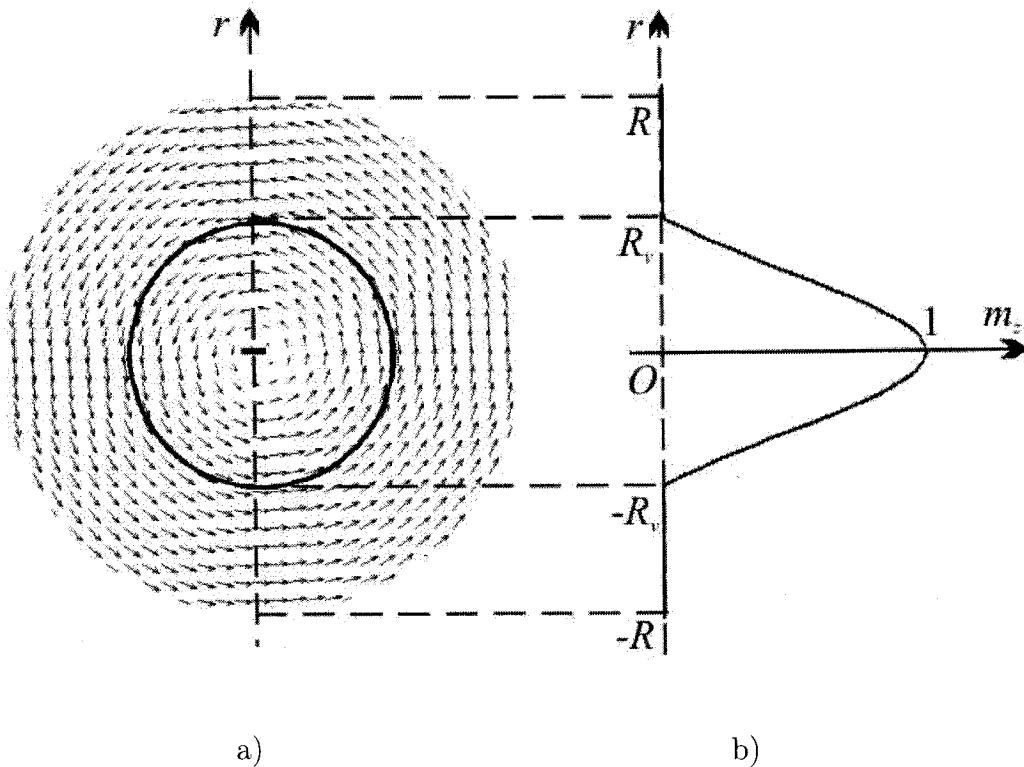


FIG. 1.1 – a) Structure magnétique de type vortex obtenue avec les équations (1.4) et (1.5) pour $a = 0$ et $c = 0.5$; b) La dépendance $m_z(r)$ pour la composante axiale de l'aimantation. À l'extérieur du cœur du vortex ($r \geq R_v$) $m_z(r) = 0$. Pour $a \neq 0$ la structure vortex sera déplacée sur l'axe Or avec x_v tel que donné par l'équation (1.8).

pour son rayon. Dans la figure 1.1 a) nous montrons une configuration micromagnétique de type vortex obtenue avec les équations ci-dessus pour $a = 0$ et $c = 0.5$; la composante axiale m_z de l'aimantation sur la direction radiale est représentée dans la figure 1.1 b).

Par rapport à l'équation (1.2), l'énergie totale d'un vortex magnétique doit contenir le terme d'échange, car l'aimantation n'est plus uniforme, alors

$$E_{tot} [\vec{M}] = E_M [\vec{M}] + E_{anis} [\vec{M}] + E_{ech} [\vec{M}]. \quad (1.10)$$

Car une structure de type vortex est uniquement définie par la paire (a, c) , le problème micromagnétique consiste à trouver les valeurs de ces deux paramètres telles que l'énergie (1.10) du vortex soit minimale.

Les comparaisons des processus d'aimantation de type vortex rigide avec les modèles micromagnétiques [18] et les analyses de stabilité par rapport aux petits déplacements [19, 20] ont démontré que le MAVR représente une bonne approximation pour la structure de vortex magnétique. En outre, il permet de modéliser les réseaux étendus de nanodisques ferromagnétiques avec un volume de calcul beaucoup moindre que dans les approches micromagnétiques numériques. Guslienko et al. [21, 22] ont déjà appliqué ce modèle pour les processus IP des nanodisques ferromagnétiques. Grebenschchikov et Usov [23] et Guslienko et al. [24] ont appliqué le modèle pour les réseaux bidimensionnelles de vortex magnétiques mais aucune étude n'a été faite pour les processus axiaux (OOP). Par rapport à ces travaux, nous avons développé un *modèle analytique de type vortex rigide* pour les processus d'aimantation axiaux (OOP) des nanodisques ferromagnétiques amorphes (section 3.3.2).

1.2 Modèles micromagnétiques numériques

Comme nous l'avons déjà dit dans la partie introductory de ce chapitre, dans un modèle micromagnétique numérique on travaille avec une représentation discrète du vecteur aimantation \vec{M} , c'est-à-dire avec les valeurs numériques de ses composantes scalaires M_x , M_y et M_z dans les noeuds géométriques d'un maillage quelconque.

L'énergie totale est donnée par la somme de l'énergie du champ magnétisant, l'énergie d'échange, l'énergie d'anisotropie magnétocristalline et l'énergie du champ démagnétisant :

$$E_{tot} = E_M + E_{ech} + E_{anis} + E_{demag} \quad (1.11)$$

Au lieu de résoudre directement le problème (1.1), dans les codes micromagnétiques numériques on préfère de calculer le champ effectif

$$\vec{H}_{eff} = -\frac{\delta E_{tot}}{\delta \vec{M}} \quad (1.12)$$

dans chaque noeud d'un maillage quelconque et de remplacer (1.1) avec le problème équivalent

$$\vec{M} \times \left(\vec{H} + \vec{H}_{demag} + \vec{H}_{ech} + \vec{H}_{anis} \right) = 0 \quad (1.13)$$

où $\vec{M} = M_s \cdot \vec{m}$ est le vecteur aimantation dans un noeud quelconque du maillage. En plus, \vec{H} est le champ externe, \vec{H}_{demag} est le champ démagnétisant (généré par l'échantillon lui-même),

$$\vec{H}_{ech} = \frac{2A}{\mu_0 M_s} \nabla^2 \vec{m} \quad (1.14)$$

est le champ d'échange et

$$\vec{H}_{anis} = \frac{2K_1}{\mu_0 M_s} \vec{k}_u \cdot (\vec{m} \cdot \vec{k}_u) \quad (1.15)$$

le champ d'anisotropie.

La taille du maillage est très importante car les éléments doivent être assez grands pour qu'ils comprennent un nombre assez grand d'atomes et en même temps assez petits, tel que l'aimantation à l'intérieur de chaque élément soit uniforme (usuellement, si la taille du maillage est plus petite que la longueur d'échange², ces deux conditions seraient simultanément respectées). Quand le maillage est régulier (éléments cubiques), les opérateurs différentiels dans l'expression du champ d'échange (1.14) sont évalués à l'aide des différences finies et on dit qu'on travaille avec des *éléments discrets (ED)* [25]. Une autre approche serait de mailler l'échantillon à l'aide des *éléments finis (EF)* et d'évaluer les opérateurs différentiels à l'aide des fonctions de base associées aux éléments finis [26–29].

Malgré l'essor des travaux sur l'implémentation numérique des algorithmes micromagnétiques, la grandeur des systèmes modélisés reste encore un défi car même les plus puissantes machines de calcul actuelles ne peuvent résoudre plus de quelques

²Usuellement de 5 à 10 nm pour les matériaux ferromagnétiques de base (Fe, Co et Ni)

dizaines de nanofils ferromagnétiques (dans un intervalle de temps raisonnable!).

Dans la section 3.1.1 on met les bases théoriques d'un algorithme micromagnétique hybride (analytique + numérique) pour les systèmes étendus de particules ferromagnétiques et ensuite (dans 3.1.2), on particularise cet algorithme pour une situation beaucoup plus simple, dans un calcul numérique du champ d'interaction d'un réseau à surface infinie uniformément aimanté.

Dans le chapitre suivant nous présentons une revue des approches théoriques et expérimentales en ce qui concerne les processus d'aimantation des réseaux de nanofils ferromagnétiques.

Chapitre 2

Études des nanofils et des réseaux de nanofils

Dans la plupart des travaux dans la littérature, l'étude des processus d'aimantation statique des réseaux de nanofils est orientée sur trois directions :

1. processus d'aimantation des nanofils individuels,
2. interactions magnétostatiques entre les nanofils et
3. relation entre les propriétés empiriques des nanofils individuels et du réseau au complet.

On va faire par la suite une revue de ces trois approches. On discute premièrement les approches et les résultats trouvés dans la littérature et on présente ensuite la nature de notre contribution sur ces sujets.

2.1 L'étude des nanofils individuels

À cause des dimensions réduites des nanofils ferromagnétiques, une étude expérimentale rigoureuse des processus d'aimantation des nanofils individuels est difficile à réaliser par mesures magnéтомétriques directes. C'est la raison pour laquelle les études expérimentales des nanofils individuels [12, 13] sont faites plutôt en utilisant le phénomène de magnétorésistance : un certain nanofil du réseau est contacté à ses bouts et on mesure la résistance électrique en champ magnétique externe. Le champ magnétique auquel on obtient un saut dans la résistance du nanofil est attribué au champ de renversement (champ coercitif). Malgré le fait que le nanofil reste toujours dans le contexte du réseau (et les mesures pourraient être affectées par le champ d'interaction entre les nanofils), Pignard et al. [13] et O'Barr et Schultz [30], en utilisant des réseaux très raréfiés, ont trouvé que le champ coercitif axial d'un nanofil, tel que trouvé par l'effet de magnétorésistance, est différent (toujours plus petit) par rapport au modèle de rotations cohérentes Stoner-Wohlfarth. Cette différence est expliquée par les rotations non uniformes de l'aimantation lors du renversement mais aucune comparaison des autres propriétés empiriques des nanofils n'a été faite.

Par modélisation micromagnétique numérique, Hertel [14, 31] a étudié le champ coercitif et, en plus, l'aimantation résiduelle des nanofils individuels. Les différences obtenues par rapport au modèle de rotations cohérentes sont attribuées aux mé-

canismes de renversement de type curling et aux structures magnétiques de type vortex. Si pour les mécanismes de renversement sur la direction axiale et leur influence sur le champ coercitif du nanofil on a accordé beaucoup d'importance dans la littérature, la façon dans laquelle ces mécanismes de renversement influencent le champ de saturation sur la direction transversale et la relation entre ce champ et la géométrie du nanofil sont moins étudiées. Nous avons étudié le champ de saturation par modélisation micromagnétique numérique et modélisation Stoner-Wohlfarth et nous avons montré par la suite (dans la section 3.2) que le champ de saturation sur la direction transversale constitue un paramètre beaucoup plus riche en informations concernant la structure physique du nanofil que le champ coercitif sur la direction axiale. En plus, cette grandeur nous permet d'identifier certains paramètres du matériau ferromagnétique en utilisant les mesures magnétométriques du réseau au complet.

2.2 L'étude des réseaux de nanofils

Les études expérimentales des réseaux de nanofils ferromagnétiques consistent dans des analyses structurales (composition, structure cristalline, géométrie, etc.) et mesures magnétométriques des courbes d'aimantation (y compris les courbes de renversement de premier ordre). Le but de ces études est d'expliquer les propriétés empiriques sur les courbes d'aimantation en fonction des propriétés physiques de

ces systèmes.

Si les effets de la structure cristalline sur les courbes d'aimantation d'un réseau de nanofils ferromagnétiques ont été beaucoup étudiés [32–35], la relation entre les propriétés empiriques et la géométrie du réseau constitue l'objet de seulement quelques études récentes. Par exemple Strijkers et al. [36] et Ciureanu et al. [37] font une analyse expérimentale de ces propriétés en fonction de la longueur des nanofils mais les paramètres extensifs des réseaux (la surface par exemple) ne sont pas pris en considération. Dans la section 3.1.2 nous allons démontrer que les dimensions géométriques du réseau (y compris sa surface) sont très importantes pour les processus d'aimantation. Nous présenterons la façon dans laquelle la géométrie influence le champ de saturation du réseau et nous expliquons les résultats expérimentaux de Strijkers et de Ciureanu concernant la dépendance des propriétés empiriques des réseaux avec la longueur des nanofils.

Si dans la plupart des travaux on utilise les courbes d'aimantation majeure pour le comportement magnétique des réseaux de nanofils ferromagnétiques, des études relativement récentes [38, 39] ont montré l'utilité des courbes de renversement de premier ordre (FORC) pour ces systèmes. Béron et al. [39] par exemple, ont étudié la relation entre les propriétés empiriques des réseaux de nanofils ferromagnétiques et la topologie des diagrammes obtenus à l'aide des courbes FORC et ils ont trouvé une très bonne concordance pour le champ d'interaction à la saturation. Dans la section 3.4 nous présentons un algorithme numérique de calcul d'un diagramme

FORC et nous utilisons ensuite cette méthode pour calculer le champ d'interaction dans un réseau en Ni.

2.3 L'effet du réseau sur les propriétés empiriques des nanofils individuels

Une théorie de l'influence du réseau sur les processus d'aimantation des nanofils individuels doit être capable d'expliquer les modifications des propriétés empiriques sur les courbes d'aimantation en fonction des propriétés physiques du réseau. La clef dans ce genre d'analyses est le champ d'interaction du réseau, c'est-à-dire le champ généré par tous les nanofils dans un certain point du réseau.

Le champ d'interaction dans un réseau de nanofils est souvent modélisé dans la littérature avec un modèle très simple, dans lequel chaque nanofil est considéré un dipôle magnétique [36, 40]. Si cette approche est appropriée pour les nanofils très courts [41] nous allons démontrer (dans la section 3.1.2) qu'elle est totalement erronée quant aux nanofils plus longues. Fodor et al. [42] essaient d'améliorer l'approche dipolaire dans le traitement des nanofils ferromagnétiques en multipliant le champ de dipôle avec un facteur empirique sous-unitaire qui dépend de la géométrie du réseau mais ils n'expliquent pas l'origine physique de ce facteur. Un calcul correct (analytique) de l'énergie d'interaction magnétostatique entre les cylindres ferromagnétiques uniformément aimantés est fait par Beleggia [43] mais son modèle

est appliqué pour seulement deux cylindres. Encinas-Oropesa et al. [44] ont établi une expression analytique empirique pour le champ d'interaction à la saturation en fonction du facteur de remplissage du réseau mais l'expression trouvée n'est pas capable d'expliquer la dépendance de ce champ avec la longueur des nanofils. Par un calcul hybride (micromagnétique et analytique) nous trouvons les valeurs du champ d'interaction des réseaux infinis uniformement aimantés pour une gamme très large de longueurs, nous établissons des expressions analytiques simples pour ce champ et nous vérifions notre calcul sur les réseaux de nanofils ferromagnétiques amorphes.

Sans étudier le champ d'interaction d'une façon explicite, l'influence du réseau sur les propriétés empiriques d'un nanofil pourrait être étudiée par modélisation micromagnétique numérique des nanofils individuels et du réseau au complet. Dans ce sens, Hertel [14, 31], a comparé les propriétés empiriques d'un seul nanofil avec celles d'un réseau à 16 nanofils identiques. Les différences obtenues sont expliquées d'une façon qualitative par le champ d'interaction magnétostatique entre les nanofils. Si pour l'aimantation résiduelle et le champ de saturation cette explication pourrait marcher, nous allons montrer (section 3.3.1) une situation particulière dans laquelle le champ coercitif n'est pas conditionné par les interactions magnétostatiques sur la direction du champ magnétisant.

Si les courbes d'aimantation du réseau au complet ne posent en général aucun problème de nature expérimentale, l'étude expérimentale des nanofils individuels

est plus difficile à cause du volume réduit de ces systèmes. Une approche relativement nouvelle dans ce sens est proposée par Béron et al. [39] qui proposent une étude de la relation réseau-nanofil individuel à l'aide des diagrammes FORC. Des travaux futurs sont envisagés pour vérifier cette approche à l'aide des modélisations micromagnétiques.

Chapitre 3

Modélisation des champs et des processus d'aimantation

Dans ce chapitre nous présentons nos résultats concernant la modélisation des champs et des processus d'aimantation des réseaux de nanofils ferromagnétiques. Le contenu de ce chapitre est tissé autour de deux propriétés empiriques des réseaux et des nanofils individuels : *le champ de saturation* et *le champ coercitif*. Nous sommes intéressés par l'influence du réseau sur les valeurs de ces paramètres pour les nanofils individuels et nous quantifions cette influence par des calculs de champs d'interaction à la saturation pour les réseaux étendus et par modélisation micromagnétique pour le champ coercitif des réseaux plus petits.

Premièrement on présente notre approche concernant la modélisation des processus d'aimantation des réseaux étendus (dans la section 3.1.1) et on applique

cette stratégie dans un calcul de champ d'interaction dans un réseau à surface infinie uniformément aimanté (section 3.1.2). Le champ d'interaction à la saturation est modélisé ensuite avec une expression analytique simple, expression qui nous permet d'identifier le champ d'anisotropie effective d'un nanofil individuel en utilisant les mesures magnétométriques du réseau au complet (section 3.2).

La relation entre le champ coercitif d'un réseau et d'un nanofil individuel est étudiée à l'aide des modèles micromagnétiques numériques dans la section 3.3.1 et les processus d'aimantation à des petites longueurs sont expliqués par un modèle analytique de type vortex rigide dans les sections 3.3.2 et 3.3.3.

Finalement, l'expression analytique proposée pour le champ d'interaction à la saturation dans la section 3.1.2 est vérifiée dans la section 3.4 par mesures de courbes de renversement de premier ordre (FORC) et un algorithme de calcul d'un diagramme FORC à partir de ces courbes est présenté dans la même section.

3.1 Champ d'interaction

Dans cette section on expose notre approche en ce qui concerne la modélisation du champ d'interaction dans les réseaux étendus de nanofils ferromagnétiques. On commence avec une présentation d'ensemble de cette approche, en se plaçant dans un cadre plus général d'un ensemble quelconque de particules ferromagnétiques (section 3.1.1) et ensuite on fait une particularisation de ce calcul pour

les réseaux bidimensionnels de nanofils ferromagnétiques uniformément aimantés (section 3.1.2). Le travail complet, les détails d’implémentation numériques et les résultats obtenus sont présentés dans la référence [3] (voir l’annexe 1).

3.1.1 Champ magnétique dans la matière aimantée

On considère une région Ω de l'espace dans laquelle il y a un nombre quelconque n de régions ferromagnétiques ω_k avec $k = \overline{1, n}$. L'espace $\Omega \setminus \cup \omega_k$ entre ces régions est non ferromagnétique et ne contribue pas au moment magnétique total de l'ensemble (voir la figure 3.1). Le champ magnétique à un certain point $P(\vec{r})$ de l'espace est évalué à l'aide du potentiel scalaire $\varphi(\vec{r})$

$$\vec{H} = -\nabla \varphi. \quad (3.1)$$

Le potentiel φ doit satisfaire l'équation de Poisson

$$\nabla^2 \varphi(\vec{r}) = \nabla \cdot \vec{M}(\vec{r}) \quad (3.2)$$

à tous les points de la matière aimantée ($\cup \omega_k$) et l'équation de Laplace

$$\nabla^2 \varphi(\vec{r}) = 0 \quad (3.3)$$

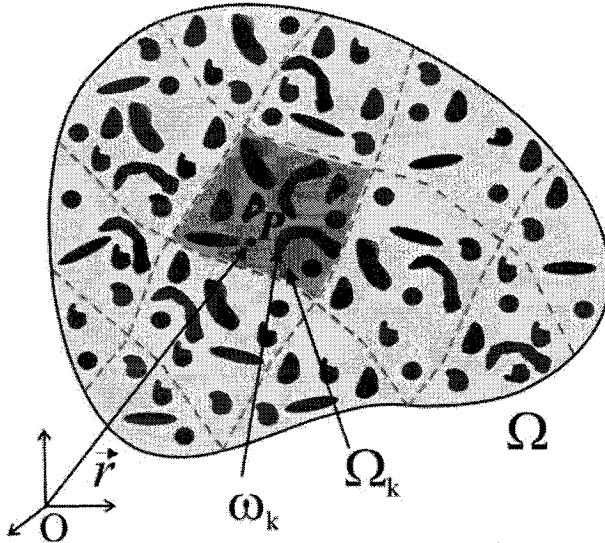


FIG. 3.1 – L'ensemble Ω (délimité par la ligne continue) de particules ferromagnétiques ω_k (les petites taches en couleur foncé) et les divisions Ω_k (délimitées par les lignes pointillées). L'espace entre les particules ferromagnétiques est considéré comme non ferromagnétique.

dans les régions non ferromagnétiques. Sur les frontières $\partial\omega_k$ qui séparent les régions ferromagnétiques des régions non ferromagnétiques il faut que le potentiel scalaire satisfasse aux conditions de passage

$$\varphi^{int} = \varphi^{ext} \quad (3.4)$$

et

$$(\nabla\varphi^{int} - \nabla\varphi^{ext}) \cdot \vec{n} = \vec{M} \cdot \vec{n}. \quad (3.5)$$

En outre, le potentiel doit aussi s'annuler à l'infini car $\varphi \propto r^{-1}$. Cette dernière condition rend le calcul numérique très difficile car il faut mailler non seulement à

l'intérieur de Ω , mais aussi à l'extérieur de cette région. Alors, une grande partie de l'effort de calcul serait déployée dans une région qui ne présente aucun intérêt pour le champ d'interaction entre les régions ferromagnétiques. Même si on utilise par la suite des approches qui présentent l'avantage de mailler seulement à l'intérieur de la matière aimanté, le nombre d'opérations demandées par un calcul de champ magnétique d'un échantillon réel reste assez important et des hypothèses simplificatrices seraient encore nécessaires.

Si on travaille avec une discréttisation quelconque de l'aimantation (éléments finis ou discrets) dont chaque domaine ω_k est représenté par un maillage \mathcal{N}_k , le champ magnétique au point $P(\vec{r}_i)$ à l'extérieur de la matière aimantée est donné par

$$\vec{H}(\vec{r}) = \sum_{j \in \mathcal{N}} m_j \cdot \vec{h}_{dip}(\vec{r}_j, \vec{r}, \alpha, \beta, \gamma) \quad (3.6)$$

où $\mathcal{N} = \cup \mathcal{N}_k$ représente la totalité des noeuds du maillage, m_j est le moment magnétique qui revient au noeud j et \vec{h}_{dip} le champ magnétique créé au point \vec{r} par un dipôle magnétique à moment unitaire dont les cosinus directeurs sont α , β et γ et qui est situé au point \vec{r}_j du maillage. Quand le point $P(\vec{r})$ est situé à l'intérieur d'une des régions ω_k , c'est-à-dire à l'intérieur de la matière aimantée, on peut séparer les contributions au champ magnétique total en deux parties : une partie créée par la région qui contient le point P (le champ démagnétisant de cette

région) et une partie due aux autres régions ferromagnétiques :

$$\vec{H}(\vec{r}) = \sum_{j \in \mathcal{N} \setminus \mathcal{N}_k} m_j \cdot \vec{h}_{dip}(\vec{r}_j, \vec{r}, \alpha, \beta, \gamma) + \vec{H}_{demag,k}(\vec{r}). \quad (3.7)$$

Le calcul du champ démagnétisant peut être partagé en deux problèmes couplés [26–29] : un problème Poisson avec des conditions Neumann aux frontières,

$$\begin{cases} \nabla^2 \phi_1(\vec{r}) = \nabla \cdot \vec{M}(\vec{r}), & \text{dans } \omega_k \\ \frac{\partial \phi_1(\vec{r})}{\partial \vec{n}} = \vec{n} \cdot \vec{M}(\vec{r}) & \text{sur } \partial \omega_k \end{cases} \quad (3.8)$$

et un problème Laplace avec des conditions Dirichlet à la frontière,

$$\begin{cases} \nabla^2 \phi_2(\vec{r}) = 0, & \text{dans } \omega_k \\ \phi_2(\vec{r}) = \int_{\partial \omega_k} \phi_1(\vec{r}') \cdot \nabla \gamma(\vec{r}, \vec{r}') \cdot d\vec{S}' + \left[\frac{\Omega(\vec{r})}{4\pi} - 1 \right] \cdot \phi_1(\vec{r}), & \text{sur } \partial \omega_k \end{cases} \quad (3.9)$$

$\Omega(\vec{r})$ dans (3.9) signifie l'angle solide sous lequel on voit ω_k dans le point \vec{r} et γ est *la fonction de Green*

$$\gamma(\vec{r}, \vec{r}') = \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|}. \quad (3.10)$$

Si $\partial \omega_k$ est assez lisse en \vec{r} on pourrait prendre avec une bonne approximation $\Omega(\vec{r}) \cong 2\pi$. Autrement, $\Omega(\vec{r})$ est obtenu par la somme des contributions de tous les tétraèdres qui contiennent le noeud \vec{r} .

Les deux problèmes présentés ci-dessus ont l'avantage de réduire le nombre d'opérations nécessaires de $N^2 \div N \ln N$ fois. Les solutions ϕ_1 du problème (3.8) sont utilisées comme conditions aux frontières de type Dirichlet dans le deuxième problème (3.9). Une fois ϕ_1 et ϕ_2 trouvés, le potentiel scalaire est donné par la somme de ces deux solutions à chaque point du maillage

$$\phi = \phi_1 + \phi_2 \quad (3.11)$$

et ensuite le champ démagnétisant devient

$$\vec{H}_{demag,k}(\vec{r}) = -\nabla \phi. \quad (3.12)$$

Quand on travaille avec le même maillage dans les problèmes (3.8) et (3.9), la matrice globale de rigidité¹ est identique dans le deux cas, ce qui simplifie encore le calcul.

L'idée de base de notre approche en ce qui concerne le calcul du champ d'interaction consiste à partager le premier terme de l'équation (3.7) en deux parties : une partie due aux voisins proches (*composante discrète*) et une partie due aux régions éloignées (*composante continue*). En effet, on suppose qu'il existe une division du domaine Ω en sous-domaines Ω_k tel que la dépendance du moment magnétique

¹La matrice obtenue après l'assemblage des matrices élémentaires (sur chaque élément fini)

total du champ appliqué dans chaque région soit pareille. Alors, il suffit de modéliser les processus d'aimantation dans un des domaines Ω_k (avec un algorithme micromagnétique par exemple) et de prendre en considération la contribution des autres domaines $\Omega \setminus \Omega_k$ par un terme de type

$$\mathcal{H} = \mathcal{C} \cdot \mathcal{M}_k \quad (3.13)$$

dans lequel \mathcal{C} est une constante dépendante de la géométrie du système et \mathcal{M}_k le moment magnétique total de la région Ω_k . Autrement dit, les régions $\Omega \setminus \Omega_k$ vont contribuer seulement à la susceptibilité totale du système et les courbes d'aimantation de l'ensemble au complet seront obtenues à l'aide d'une transformation géométrique linéaire qui découle de (3.13).

3.1.2 Champ magnétique dans les réseaux saturés de nanofils ferromagnétiques (article [3])

Nous avons décrit dans la section précédente une stratégie très générale qui pourrait s'appliquer à n'importe quel ensemble de particules ferromagnétiques. Par la suite on va discuter la façon dans laquelle cette stratégie est particularisée pour un ensemble 2D de nanofils ferromagnétiques uniformément aimantés. Le travail complet ainsi que les détails d'implémentation numérique sont présentés dans la

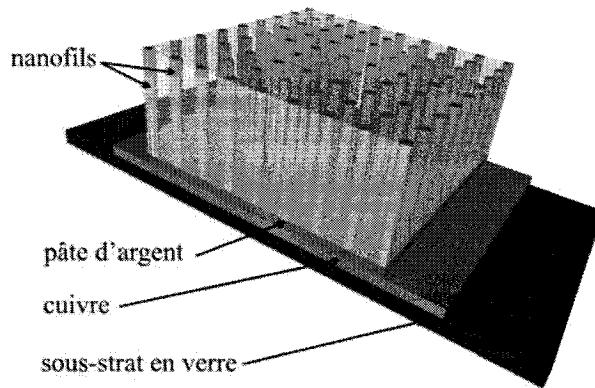


FIG. 3.2 – Réseau carré de nanofils ferromagnétiques.

référence [3], partie intégrante de cette thèse (voir l'annexe 1).

Par rapport à l'algorithme présenté dans la section précédente, la géométrie (assez particulière) d'un tel réseau (voir la figure 3.2) nous permet de prendre en considération quelques hypothèses simplificatrices. Premièrement, la sous-division Ω_k du réseau peut être réduite au niveau d'un seul nanofil car les états d'aimantation sont identiques pour tous les nanofils. En plus, car les nanofils sont considérés identiques et parallèles, on pourrait utiliser le même maillage pour tous les cylindres et obtenir ensuite les coordonnées des noeuds par une translation vers les noeuds globales du réseau (des translations suivies de rotations pourraient être imaginées pour les réseaux dans lesquels les cylindres ne sont pas parfaitement parallèles). En fonction de la distance jusqu'au point P , les nanofils pourraient être considérés comme

- distributions volumiques de dipôles magnétiques pour les plus proches voisins (les positions des dipôles sont obtenues à l'aide d'un maillage quelconque) ;
- distributions linéaires de dipôles magnétiques (ou paire de monopôles magnétiques) pour les nanofils plus éloignés ;
- distributions continues de l'aimantation.

Puisque le champ magnétique généré par un cylindre uniformément aimanté n'est pas trop différent par rapport au champ magnétique créé par une distribution linéaire de dipôles magnétiques [3], on utilise seulement les dernières deux approximations et on sépare le réseau en deux parties : une partie qui contient les nanofils proches du point P (la région Ω_1 , voir la figure 3.3) et une autre, Ω_2 , contenant les nanofils plus éloignés. Les nanofils situés dans la région Ω_1 sont considérés comme distributions linéaires de dipôles ou paires de monopôles magnétiques localisés aux bouts des nanofils. Dans le cas exceptionnel des réseaux très denses (espacement comparable avec le diamètre des nanofils) on pourrait utiliser pour les voisins de premier ordre un maillage 3D mais même dans ces situations extrêmes, l'apport de précision n'est pas trop important car la contribution des nanofils éloignés est beaucoup plus grande. La région $\Omega_2 = \Omega \setminus \Omega_1$ est considérée comme une distribution continue d'aimantation (couche mince). Le champ magnétique total est obtenu comme une somme de deux termes correspondants à ces deux approximations :

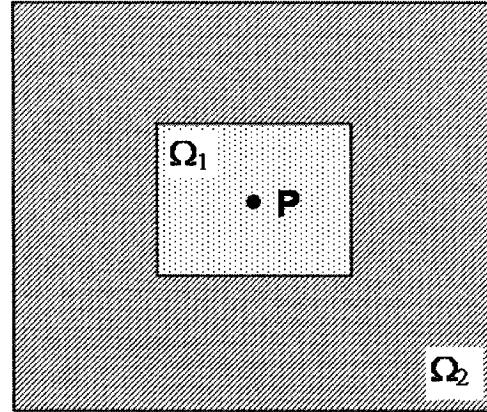


FIG. 3.3 – Les régions Ω_1 et Ω_2 dans un réseau étendu de nanofils ferromagnétiques.

$$H_P = H|_{\Omega_1} + H|_{\Omega_2} \quad (3.14)$$

où $H|_{\Omega_1}$ est généré par la région Ω_1 (*contribution discrète* ou *champ de monopôle*) tandis que $H|_{\Omega_2}$ correspond à la région considérée comme distribution continue d'aimantation (*contribution continue* ou *champ de dipôle*).

La grandeur de la région Ω_1 (le nombre N_1 de nanofils à mailler) est établie d'une façon itérative : on commence avec une certaine valeur $N_1^{(0)}$ et on évalue le champ magnétique total pour des valeurs de plus en plus grandes de ce nombre (la région Ω_1 devient de plus en plus grande tandis que Ω_2 , de plus en plus petite). L'algorithme s'arrête à une valeur critique N_{1c} lorsque la différence entre les champs magnétiques obtenus dans les dernières deux itérations est plus petite qu'une certaine précision établie *a priori*. Dans la figure 3.4 on peut voir que le fait de considérer 5×10^5 nanofils dans la région Ω_1 n'a aucune importance car le même résultat pourrait être obtenu avec seulement 1.5×10^5 nanofils, c'est-à-dire

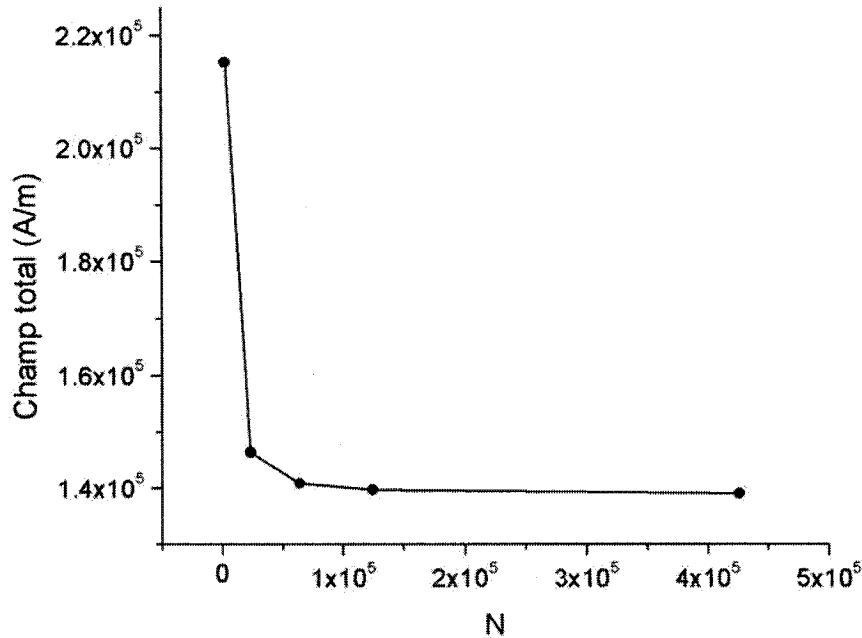


FIG. 3.4 – Champ total obtenu avec l'équation (3.14) pour un nombre N de nanofils dans la région Ω_1 de plus en plus grand. $l = 10\mu m$, $R = 25nm$, $d = 150nm$, $M_s = 1.5 \times 10^6 A/m$ et une surface totale du réseau de $1 cm^2$.

avec un volume de calcul beaucoup moindre.

Notre algorithme nous permet de calculer le champ magnétique généré par un réseau de nanofils dans n'importe quel point de l'espace. Nous avons choisi dans ce travail un ensemble de points situés sur l'axe de symétrie du nanofil situé au centre du réseau (le point P dans la figure 3.3), afin d'obtenir des informations concernant la distribution du champ magnétique sur la longueur de ce nanofil.

Nos premiers calculs ont été effectués sur des petits réseaux (quelque 1000 nanofils) uniformément aimantés sur la direction OOP. On a trouvé que pour ce genre de

réseaux, le champ magnétique est toujours plus fort vers les extrémités des nanofils et plus faible au centre mais la différence entre ces deux valeurs diminue au fur et à mesure que la longueur des nanofils diminue. Cet effet puise dans la topologie du champ magnétique généré par un cylindre magnétique uniformément aimanté sur la direction axiale (voir le tracé de contours du champ magnétique autour d'un tel cylindre dans la figure 3.5 a). La différence entre le champ magnétique dans la région médiane et le champ aux extrémités des nanofils devient plus petite au fur et à mesure que la surface du réseau augmente (nombre de nanofils de plus en plus grand), ce qui nous a permis de représenter le champ d'interaction sur un nanofil par la valeur moyenne des champs magnétiques sur son axe de symétrie. Cette valeur moyenne devient plus appropriée pour les réseaux uniformément aimantés sur la direction IP, car le champ magnétique dans ces configurations est presque uniforme (fig. 3.5 b).

Les calculs numériques effectués dans la référence [3] montrent que la topologie du champ magnétique telle que présentée dans la figure 3.5 change d'une façon importante seulement quand la longueur des nanofils devient très petite (beaucoup plus petite que la distance moyenne entre les nanofils) ; pour des valeurs plus grandes de la longueur, cette topologie reste presque inchangée. Pour les nanofils uniformément aimantés sur la direction axiale on peut conclure alors que :

- le champ magnétique est très faible dans le plan médian et très fort vers les

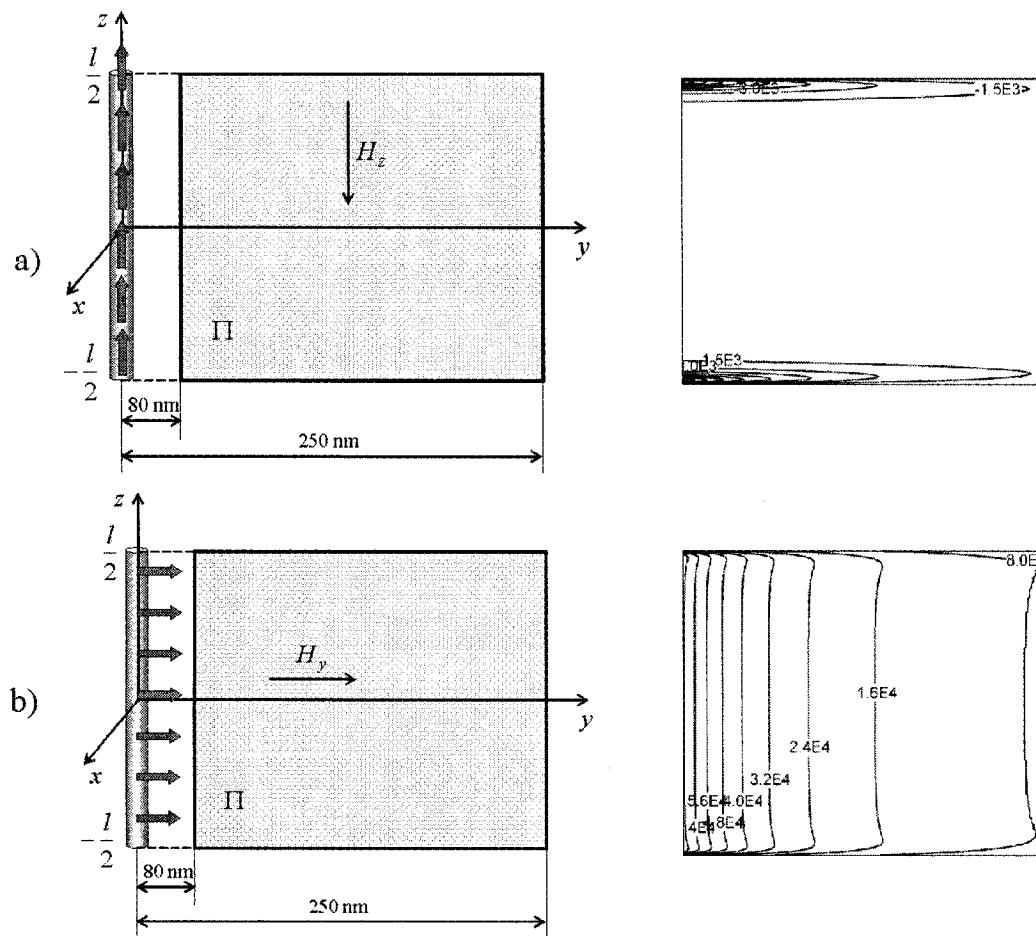


FIG. 3.5 – Tracé de contours du champ magnétique (en A/m) dans le plan Π d'un nanofil uniformément aimanté sur la direction axiale Oz (a) et transversale Oy (b).

extrémités des nanofils ;

- le champ magnétique est directement proportionnel à la longueur seulement pour les nanofils très courts (*régime dipolaire*).

Si la première observation est valable pour un réseau à petite surface (c'est-à-dire quand le nombre de nanofils N y compris est beaucoup plus petit que le

nombre critique N_{1c}), la deuxième est vraie pour tous les réseaux de nanofils.

Quant aux réseaux étendus ($N \gg N_{1c}$), on évalue premièrement le champ magnétique généré par la région Ω_1 (contribution discrète) par une approche numérique, en effectuant la somme des contributions de tous les nanofils dans cette région. La contribution continue (générée par la région Ω_2) est directement proportionnelle à la longueur de nanofils car le réseau est considéré comme une couche mince dont l'aimantation est proportionnelle au facteur de remplissage ζ du réseau. Donc le champ magnétique produit par cette région peut être obtenu d'une façon analytique, comme une somme de champs de dipôle :

$$H|_{\Omega_2} = \frac{M_s}{4\pi} l \zeta \int_{\Omega_2} \frac{dS}{r^3}. \quad (3.15)$$

Des expressions analytiques de ce terme pour un réseau à surface finie et infinie sont aussi présentées dans la référence [3]. L'avantage des expressions analytiques de type (3.15) pour la partie de dipôle du champ d'interaction serait qu'elles rendent possible le calcul du champ d'interaction d'un échantillon réel (contenant un très grand nombre de particules ferromagnétiques) et en même temps elles permettent d'évaluer l'influence de la surface du réseau sur le champ d'interaction total.

Le champ d'interaction total est obtenu comme une somme de ces deux contributions (équation 3.14). Une dépendance de ce champ d'interaction sur la longueur des nanofils pour 6 valeurs entre 200 et 300 nm de la distance moyenne entre na-

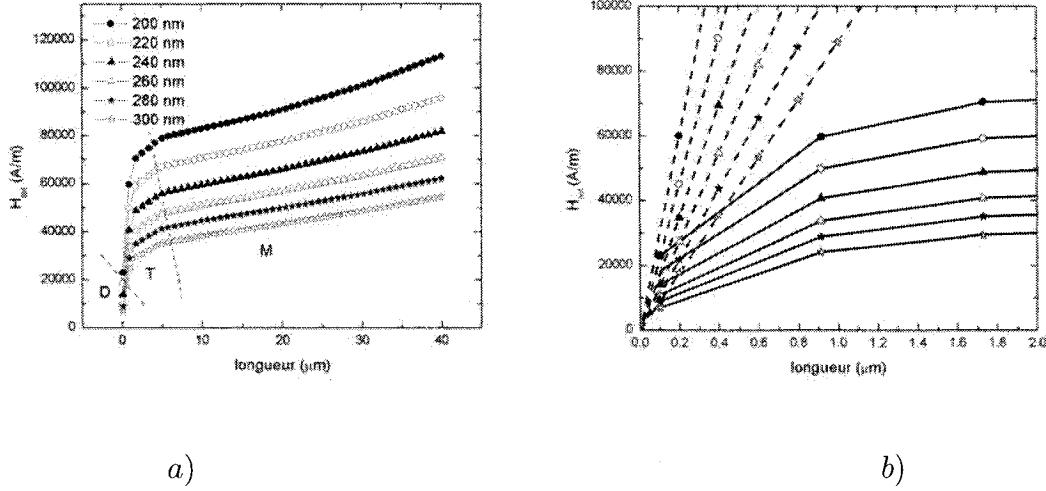


FIG. 3.6 – a) Valeurs absolues du champ magnétique total pour un réseau infini uniformément aimanté sur la direction axiale (OOP). L'aimantation à la saturation $M_s = 1.7 \times 10^6 \text{ A/m}$ et le rayon des nanofils $r = 25 \text{ nm}$. La distance entre les nanofils varie de 200 à 300 nm avec un pas de 20 nm. D - région dipolaire, T - région de transition et M - région monopolaire. b) Élargissement de la région dipolaire et comparaison avec l'approximation de dipôle (en ligne pointillée).

nofil est montrée dans la figure 3.6. Des valeurs numériques et des représentations graphiques du champ total pour des autres valeurs de la distance entre les nanofils peuvent être trouvées respectivement dans le tableau 1 et la figure 9 de la référence [3].

La dépendance du champ total en fonction de la longueur des nanofils présente trois régions distinctes :

- la *région dipolaire*, des petites longueurs (la région D dans figure 3.6), dans laquelle le champ total est directement proportionnel avec la longueur des nanofils,

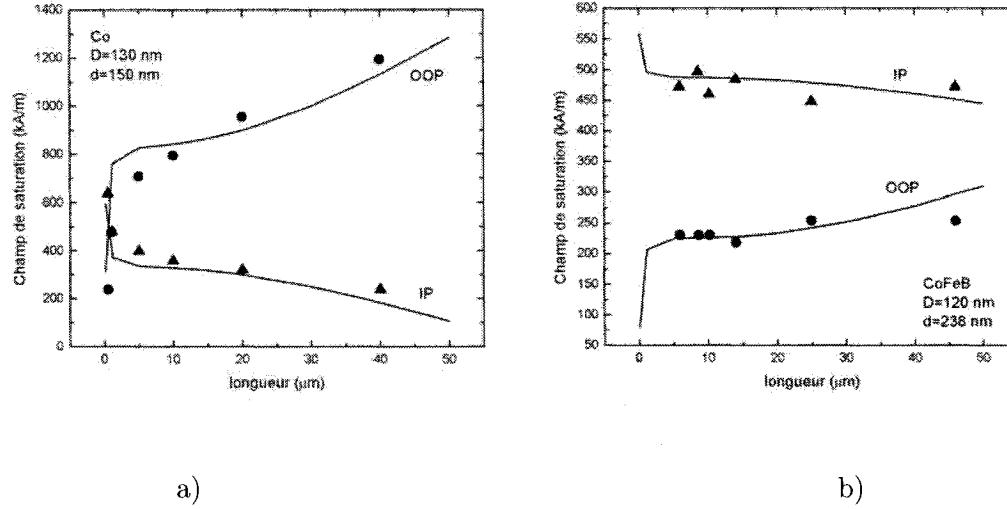


FIG. 3.7 – Comparaison entre la théorie et l’expérience en ce qui concerne le champ de saturation de deux réseaux de nanofils ferromagnétiques : a) Co, mesures expérimentales de Strijkers et al. [36] et b) CoFeB, mesures expérimentales de Ciureanu et al. [37].

- la *région monopolaire*, des grandes longueurs (la région M dans figure 3.6), dans laquelle le champ total augmente d’une façon linéaire avec la longueur mais avec une pente beaucoup moindre et
- un régime de transition entre les deux (la région T), dans laquelle la pente de la fonction $H_{int}(l)$ diminue de façon monotone vers la valeur correspondante au régime monopolaire.

En plus dans la référence [3] ont démontre que le champ d’interaction ne dépend pas de l’arrangement des nanofils (dans la figure 6 de cette référence on présente une comparaison entre un réseau carré et un réseau aléatoire).

En utilisant les résultats numériques de ce calcul, nous avons comparé les champs de saturation théoriques avec les valeurs des expériences de Strijkers [36] sur des réseaux amorphes en Co et de Ciureanu [37] sur CoFeB aussi amorphe). On a obtenu une bonne concordance dans les deux cas (les résultats de cette comparaison sont montrés dans la figure 3.7), ce qui confirme notre approche en ce qui concerne le calcul du champ d'interaction.

Les champs de saturation pour les deux réseaux analysés ci-dessus ont été obtenus à l'aide du champ d'interaction du réseau en supposant que les nanofils sont amorphes. C'est-à-dire qu'aucun terme d'anisotropie (autre que géométrique) n'a été pris en considération. Afin d'identifier les anisotropies induites dans les nanofils ferromagnétiques, on présente par la suite une modélisation phénoménologique du champ d'interaction à la saturation et une stratégie d'identification des anisotropies supplémentaires (magnétocristallines par exemple).

3.2 Champ d'anisotropie effective (article [4])

Dans cette section on propose un modèle phénoménologique pour le champ d'interaction dans les réseaux de nanofils ferromagnétiques uniformément aimantés et une nouvelle méthode expérimentale (basée sur les mesures magnétométriques du réseau au complet) pour déterminer le *champ d'anisotropie effective* d'un nanofil

individuel. Ces deux contributions constituent l'objet de l'article [4] (partie intégrante de cette thèse, voir l'annexe 2), article qui pourrait être considéré comme une deuxième partie de [3] (ce dernier présenté dans la section précédente).

Les calculs numériques effectués dans la référence [3] ont montré que le champ d'interaction H_{int} dans les réseaux étendus est directement proportionnel avec la longueur des nanofils quand les nanofils sont très courts (*régime dipolaire*) et que pour les nanofils plus longs, le champ d'interaction augmente d'une façon linéaire avec la longueur (*régime monopolaire*) mais avec une pente beaucoup moindre (fig. 3.6). Ces deux régimes sont séparés par une région de transition dans laquelle la pente de la fonction $H_{int}(l)$ présente une variation rapide dans un intervalle de valeurs de l assez étroit. Les valeurs numériques du champ d'interaction obtenus avec l'algorithme présenté dans la section précédente ont été ensuite interpolées avec des fonctions analytiques afin de trouver des expressions simples pour la dépendance $H_{int}(l, d)$ du champ d'interaction en fonction de la longueur l des nanofils et la distance moyenne d entre eux. On a trouvé que pour la direction OOP, ce champ est très bien approximé par la fonction

$$H_{int}(l, d) = M_s r^2 \left[a(d) \cdot l + b(d) \tanh\left(\frac{l}{l_d}\right) \right]. \quad (3.16)$$

M_s est l'aimantation de saturation du matériau ferromagnétique, r est le rayon des nanofils (considérés identiques) et l_d - *la longueur dipolaire*, est une constante

phénoménologique du réseau (usuellement plus petite qu'un micromètre). Pour les réseaux étendus, le champ d'interaction sur la direction IP est égal avec $H_{int}(l, d)/2$. Les fonctions $a(d)$, $b(d)$ et les coefficients numériques y intervenants sont estimés en imposant la condition de passage vers une couche mince

$$\lim_{l, d \rightarrow 0} H_{int} = M_s, \quad (3.17)$$

quand les facteurs de remplissage deviennent assez élevés. En même temps, H_{int} doit s'annuler pour $l \rightarrow 0$, condition assurée par la propriété $\tanh(0) = 0$ de la tangente hyperbolique. Dans la figure 3.8 nous présentons une comparaison entre les résultats numériques obtenus dans la référence [3] et l'expression analytique (3.16) pour un réseau en Ni dont l'espacement entre les nanofils est de 300 nm (dans la figure 1 de la référence [4] on montre une telle comparaison pour plusieurs espacements entre les nanofils). L'expression (3.16) ne peut pas être appliquée dans la région dipolaire (des longueurs très petites) car la pente de cette fonction à l'origine est beaucoup plus petite que $2.258 \times M_s r^2/d^3$ (donnée par le modèle dipolaire).

Même si les fonctions $a(d)$ et $b(d)$ ont été trouvées par simulations numériques sur des réseaux dont l'espacement varie entre 100 et 300 nm , on pourrait quand même extrapoler le modèle en dehors de cet intervalle car les fonctions $a(d)$ et $b(d)$ satisfont aux conditions extrêmes $d \rightarrow 0$ et $d \rightarrow \infty$.

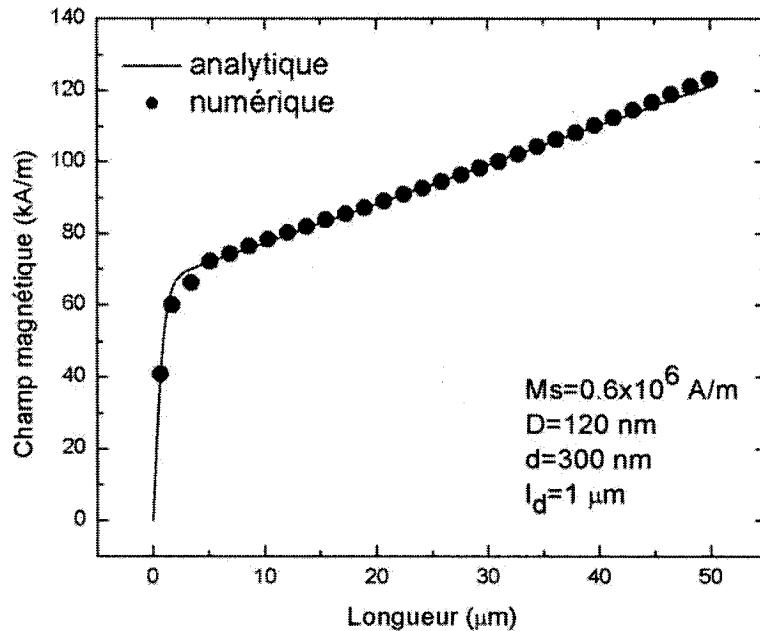


FIG. 3.8 – Champ d’interaction sur la direction OOP d’un réseau de nanofils à surface infinie : comparaison entre les résultats numériques obtenus dans la référence [3] et l’expression analytique (3.16). Dans la légende de cette figure M_s représente l’aimantation à la saturation, D est le diamètre des nanofils, d la distance moyenne entre les nanofils et l_d la longueur dipolaire.

L’expression analytique (3.16) a été ensuite utilisée pour élaborer une stratégie d’identification du *champ d’anisotropie effective* d’un nanofil individuel. Ce calcul puise en fait dans deux résultats théoriques obtenus par simulations micromagnétiques numériques et rotations cohérentes Stoner-Wohlfarth :

1. La variation du champ de saturation avec la géométrie des nanofils sur la direction IP est insignifiante dans la région monopolaire. Afin de soutenir cette affirmation, nous montrons dans la figure 3.9 les courbes d’aimantation

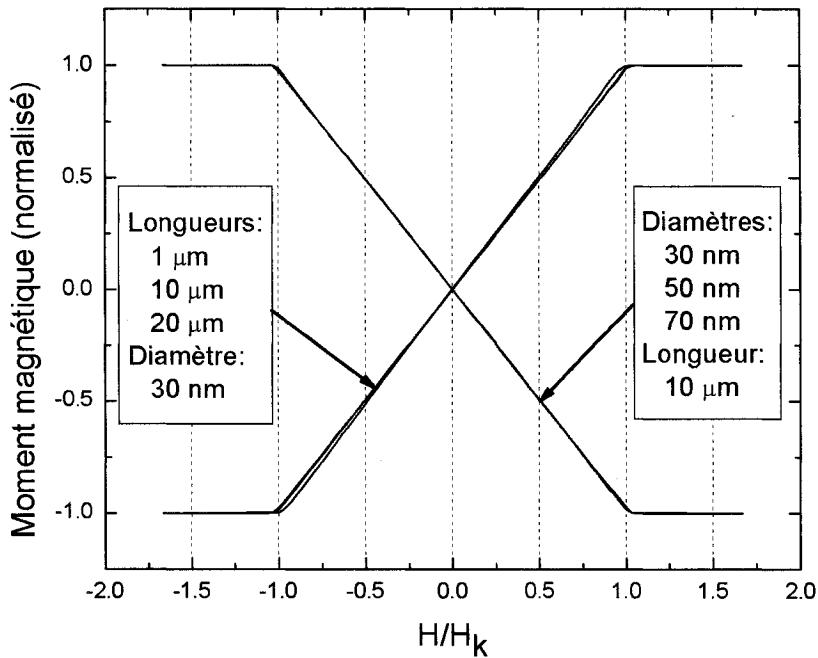


FIG. 3.9 – Courbes d'aimantation IP (modélisation micromagnétique) de 5 nanofils en Ni pour trois valeurs de la longueur et le même diamètre (sur la première diagonale) et trois valeurs du diamètre et la même longueur (sur la deuxième diagonale).

obtenues par modélisation micromagnétique pour 7 nanofils en Ni (amorphe) à des différentes géométries (trois valeurs de la longueur sur la première diagonale et trois valeurs du diamètre sur l'autre diagonale). Même si entre les courbes qui correspondent aux nanofils de différentes longueurs il y a quand même une petite différence, les champs de saturation sur la direction IP sont presque les mêmes pour tous les nanofils considérés.

2. Le modèle SW décrit très bien les processus d'aimantation IP des nanofils

ferromagnétiques malgré les rotations fortement incohérentes de l'aimantation dans les nanofils plus larges. Dans la figure 3.10 on présente les courbes d'aimantation obtenues par modélisation micromagnétique (ligne+points) et par le modèle SW (ligne continue) pour un nanofil en Ni (1 μm de longueur et 50 nm de diamètre). Si les points de saturation sur la direction OOP sont assez différentes ($S_{OOP} \neq S'_{OOP}$), les courbes d'aimantation sur la direction IP sont presque identiques dans ces deux modèles et les points de saturation sur cette direction coïncident (sur la figure 3.10, S_{IP} obtenu par modélisation micromagnétique coïncide avec S'_{IP} donné par le modèle SW). On peut considérer alors que le champ de saturation h_{sat}^{IP} sur la direction IP d'un nanofil est égal au champ d'anisotropie effective h_k^{SW}

$$h_{sat}^{IP} = h_k^{SW} = \frac{2K_{eff}}{\mu_0 M_s} \quad (3.18)$$

donné par le modèle SW (K_{eff} dans l'équation ci-dessus représente la constante d'anisotropie effective du nanofil).

Les deux résultats précédents montrent en effet que pour les nanofils ferromagnétiques le champ de saturation sur la direction IP (h_{sat}^{IP}) est presque invariable avec la géométrie du nanofil et en plus, il est égal avec le champ d'anisotropie effective du modèle SW. C'est la raison pour laquelle nous considérons que h_{sat}^{IP} est

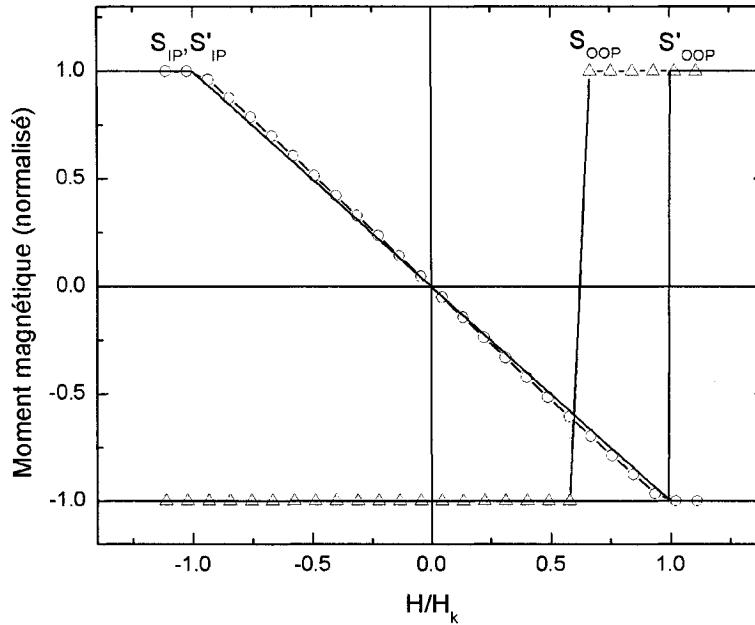


FIG. 3.10 – Courbes d’aimantation majeure (CAM) d’un nanofil amorphe en Ni ($l = 1 \mu\text{m}$ pour la longueur et $D = 50 \text{ nm}$ pour son diamètre). Comparaison entre les modèles micromagnétiques (ligne continue+points) et le modèle SW (ligne continue) pour deux directions du champ magnétique externe : IP - perpendiculaire sur l’axe de symétrie du nanofil et OOP - parallèle à cet axe.

influencé plutôt par les propriétés physiques du matériau ferromagnétique que par la géométrie des nanofils et nous employons par la suite ce paramètre dans une stratégie d’identification des anisotropies d’un nanofil ferromagnétique à partir des courbes d’aimantation IP du réseau au complet.

On suppose que la différence entre les champs de saturation sur les courbes IP d’aimantation majeures d’un réseau et d’un nanofil individuel, est égale au champ d’interaction sur cette direction. Alors, puisque dans l’état uniformément aimanté

sur la direction IP d'un réseau, le champ externe et le champ d'interaction ont une même orientation, nous pouvons calculer le champ de saturation d'un nanofil individuel h_{sat}^{IP} , et ensuite le champ d'anisotropie effective h_k avec une relation simple,

$$h_{sat}^{IP} = h_k = H_{sat}^{IP} + H_{int}^{IP}, \quad (3.19)$$

où H_{sat}^{IP} est le champ externe qui produit la saturation du réseau au complet et H_{int}^{IP} le champ d'interaction à la saturation. Car le champ d'interaction sur la direction IP est égal avec la moitié du champ d'interaction sur la direction OOP [3], on pourrait considérer que

$$H_{int}^{IP} = \frac{1}{2} H_{int}(d, l) \quad (3.20)$$

avec $H_{int}(d, l)$ tel que défini par l'équation (3.16). Car $H_{int}(d, l)$ est une fonction linéaire de l , $H_{sat}^{IP}(l)$ doit être aussi une dépendance linéaire car $h_k \simeq const.$ (voir la figure 3.9). On peut écrire maintenant que

$$H_{sat}^{IP} = -\frac{1}{2} M_s r^2 a(d) \cdot l + \left[h_k - \frac{1}{2} M_s r^2 b(d) \right] = -A \cdot l + B \quad (3.21)$$

où

$$A = \frac{1}{2} M_s r^2 a(d) \quad (3.22)$$

et

$$B = h_k - \frac{1}{2} M_s r^2 b(d). \quad (3.23)$$

Dans la référence [4], nous avons mesuré la dépendance $H_{sat}(l)$ à partir des courbes expérimentales sur la direction IP de plusieurs réseaux et nous avons trouvé une bonne concordance avec la loi (3.21) (la figure 3 dans cette référence), ce qui confirme en même temps l'hypothèse $h_k \simeq const.$

Si on élimine maintenant le terme $M_s r^2 / 2$ dans les équations (3.22) et (3.23), on obtient une expression très simple pur le champ d'anisotropie effective d'un nanofil,

$$h_k = B + A \cdot \gamma(d), \quad (3.24)$$

ce qui nous permet d'évaluer ce paramètre à l'aide des coefficients A et B trouvés sur la dépendance expérimentale $H_{sat}^{IP}(l)$. La fonction $\gamma(d)$ y intervenant (pour son expression analytique voir l'équation (10) et pour son graphique la figure 2 dans l'annexe 2) possède quelques propriétés intéressantes :

- elle ne dépend pas de l'arrangement des nanofils dans le réseau (carré, hexagonale ou aléatoire). On pourrait donc la considérer comme une *fonction caractéristique* de tous les réseaux infinis ;
- dans l'intervalle de valeurs des espacements les plus utilisées (100 nm à 300 nm) elle est presque constante et on pourrait même la remplacer avec une constante $\bar{\gamma} \cong 63 \mu m$. La variation assez lisse dans cet intervalle augmente la précision du champ d'anisotropie car on n'a pas besoin d'une très grande précision pour l'espacement entre les nanofils. Au contraire, entre $d = 0$ et

$d \cong 100 \text{ nm}$ la fonction γ varie très rapidement, de 0 jusqu'à sa valeur maximale, et pour les réseaux situés dans cet intervalle on aurait besoin de valeurs plus précises de l'espacement.

Le champ d'anisotropie effective (3.24) nous permet d'évaluer les anisotropies induites dans le processus de fabrication par la différence par rapport au champ d'anisotropie géométrique $M_s/2$:

- $h_k > M_s/2$ quand les axes d'anisotropie magnétocristalline sont dirigées sur les axes des nanofils,
- $h_k < M_s/2$ quand ces axes sont dans le plan du réseau (perpendiculaires sur les axes des nanofils) et
- $h_k = M_s/2$ pour les matériaux amorphes.

Évidemment, puisque le modèle fournit une estimation moyenne des anisotropies induites (pour le nanofil au complet), on obtiendrait la même valeur $M_s/2$ pour les matériaux nanocrystallines dont les axes d'anisotropie sont distribuées d'une façon complètement aléatoire sur les trois directions de l'espace.

En employant la stratégie ci-dessus nous avons mesuré les champs effectifs de trois réseaux de nanofils assez différents, en Ni, Co et CoFeB, tous les trois supposés d'être amorphes. Pour les trois réseaux nous avons obtenu des champs effectifs

très proches du champ d'anisotropie géométrique $M_s/2$, ce qui valide notre stratégie d'identification des anisotropies dans les nanofils ferromagnétiques (les valeurs numériques du champ effectif trouvées pour ces trois matériaux sont données dans le tableau 1 de la référence [4]).

3.3 Nucléation et champ coercitif

Si dans les deux sections précédentes on a étudié les processus physiques dans la proximité du point de saturation, on va se pencher par la suite sur les résultats obtenus pour l'état presque démagnétisé du réseau, c'est-à-dire dans la proximité du champ coercitif, quand le signe de l'aimantation globale change. Nous sommes intéressés plutôt par l'influence du champ d'interaction sur le champ coercitif du réseau, car cette question est très importante pour l'identification de la distribution dans les modèles de type Preisach [45–47] et en même temps pour établir les limites d'applicabilité de ce genre de modèles aux processus d'aimantation des réseaux de nanofils.

3.3.1 Champ coercitif des nanofils individuels et des réseaux de nanofils

Par modélisation micromagnétique numérique, nous avons étudié les processus d'aimantation dans les nanofils individuels et dans les réseaux de nanofils ferromagnétiques. On est intéressé par la modification du champ coercitif du réseau par rapport au champ coercitif du nanofil individuel et de trouver une explication physique pour cette modification.

Les simulations micromagnétiques sur les réseaux carrés en Ni [31] ont montré que le champ coercitif pour quelque 10 nanofils n'est pas trop différent par rapport au champ du réseau au complet. Alors, même si on dispose d'une machine de calcul très puissante, un nombre plus grand de nanofils augmentera beaucoup trop le volume de calcul par rapport à la précision obtenue pour le champ coercitif. C'est la raison pour laquelle nous avons fait des simulations micromagnétiques pour des réseaux carrés à 16 nanofils seulement, en supposant que les résultats obtenus pour ces petits réseaux peuvent être généralisés pour les réseaux plus grands : dans l'état démagnétisé ($M \simeq 0$) les interactions ont un caractère local car la contribution des nanofils éloignés s'annule et le réseau au complet peut être considéré comme un ensemble de petits réseaux indépendants. Alors, même si les valeurs numériques des champs coercitifs trouvés pour les petits réseaux considérés dans cette section pourraient être différentes par rapport aux réseaux plus grands, les comparaisons

entre les processus d'aimantation de ces réseaux devraient être correctes.

On a considéré des nanofils en Ni dont leur diamètre varie de quelques longueurs d'échange à quelques dizaines de longueurs d'échange. Pour chaque diamètre on a construit des réseaux avec des espacements différents et pour chaque espacement on a considéré des différentes longueurs (entre 50 nm et $10\text{ }\mu\text{m}$). Nous avons modélisé les courbes d'aimantation majeures (CAM) sur la direction des axes de symétrie des nanofils (direction OOP du réseau) et nous avons comparé le champ coercitif du réseau avec le champ coercitif du nanofil individuel.

La dimension des éléments du maillage est comparable avec la longueur d'échange du Ni (environ 5 nm). Même si l'anisotropie magnétocristalline du Ni est faible par rapport à l'anisotropie de forme, on a préféré de garder le terme magnétocristallin dans l'expression de l'énergie libre pour avoir une continuité au passage vers les nanofils très courts (nanodisques), pour lesquels l'anisotropie géométrique n'est plus dominante.

3.3.1.1 Champ coercitif des nanofils individuels

En utilisant l'implémentation OOMMF² [25] d'un modèle micromagnétique numérique à base d'éléments discrets, nous avons construit les courbes d'aimantation majeures sur la direction axiale de plusieurs nanofils ferromagnétiques en Ni. Nous avons obtenu ces courbes en calculant le moment magnétique total de l'échantillon

²Object Oriented MicroMagnetic Framework

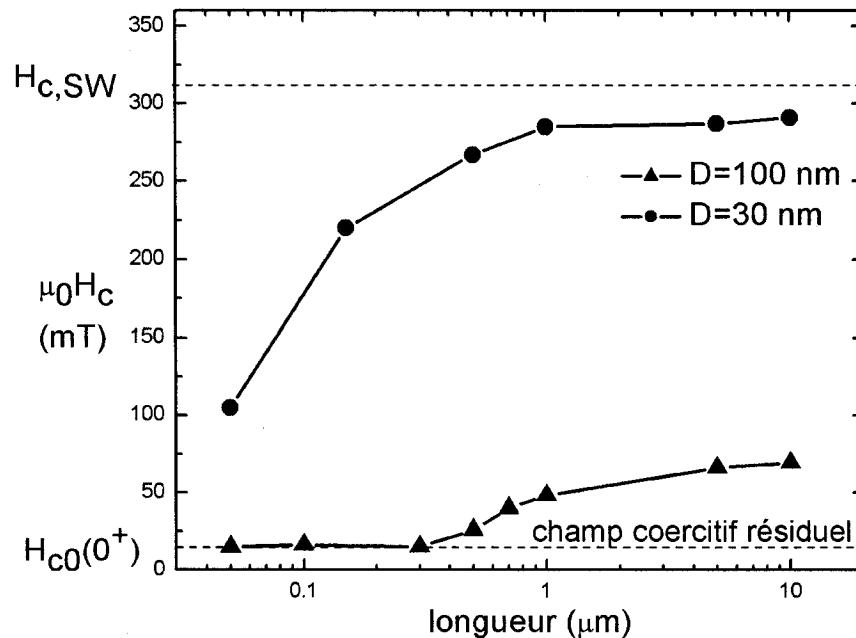


FIG. 3.11 – Champ coercitif des nanofils individuels en Ni sur la direction axiale en fonction de la longueur. Modélisation micromagnétique et comparaison avec le modèle Stoner-Wohlfarth (SW) pour deux valeurs du diamètre : 30 nm (cercles) et 100 nm (triangles).

dans l'état d'équilibre pour chaque valeur d'un champ externe axial qui varie entre -500 mT et $+500 \text{ mT}$ avec un pas de 2 mT . Dans la figure 3.11 on présente les champs coercitifs obtenus pour les cylindres ferromagnétiques en Ni dont les diamètres sont de 30 nm et 100 nm et dont les longueurs varient de 50 nm à $10 \mu\text{m}$. Les dépendances $H_{c0}(l)$ du champ coercitif de la longueur des nanofils sur cette figure présentent les caractéristiques suivantes :

1. Même pour les plus minces nanofils, on trouve que le champ coercitif sur la direction OOP est différent par rapport au champ coercitif donné par le modèle SW (voir la figure 3.11). Autrement dit, les processus de renversement sont fortement incohérents ;
2. H_{c0} devient de plus en plus petit au fur et à mesure que l diminue : si le champ coercitif des nanofils minces diminue monotonement avec la longueur (voir la courbe en cercle pleins dans la figure 3.11), les nanofils plus gros présentent une *coercivité résiduelle* $\mu_0 H_{c0}(0^+) \simeq 15\text{ mT}$ presque indépendante de la longueur (voir la courbe en triangles pleines dans la figure 3.11).
3. Vers des valeurs grandes de la longueur, la dépendance $H_{c0}(l)$ présente une saturation : le champ coercitif du nanofil n'augmente plus avec la longueur. Le début de cette saturation dépend du diamètre du nanofil et varie entre $1\text{ }\mu\text{m}$ pour $D = 30\text{ nm}$ et $5\text{ }\mu\text{m}$ pour $D = 100\text{ nm}$.

Dans la figure (3.11) on présente seulement deux courbes afin de faire une comparaison entre le comportement des nanofils minces et gros. Pour les autres valeurs du diamètre dans l'intervalle ($30\text{ nm}, 100\text{ nm}$), les courbes $H_c(l)$ sont situées entre ces deux courbes extrêmes mais avec un palier de champ coercitif résiduel de plus en plus court au fur et à mesure que le diamètre diminue.

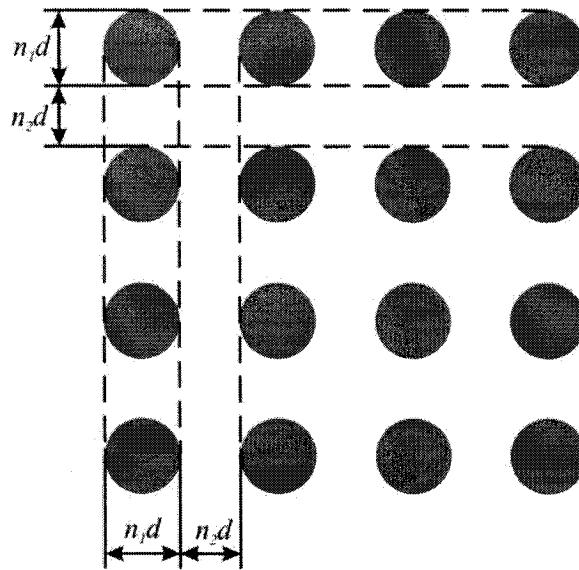


FIG. 3.12 – Réseau carré de 16 nanofils de type $n_1d - n_2d$. Le diamètre des nanofils est n_1d tandis que l'espacement est $(n_1 + n_2) \cdot d$. Les réseaux $n_1d - n_2d$ et $n_2d - n_1d$ contiennent des nanofils de diamètres différents (n_1d et n_2d) mais l'espacement entre les nanofils est le même : $(n_1 + n_2) \cdot d = (n_2 + n_1) \cdot d$.

Par la suite on va présenter les résultats obtenus avec des modélisations micromagnétiques sur les réseaux carrés de nanofils et on va comparer les champs coercitifs de ces réseaux avec les champs coercitifs des nanofils individuels obtenus dans cette section.

3.3.1.2 Champ coercitif des réseaux de nanofils

Nous avons considéré dans cette section des réseaux carrés de 16 nanofils identiques dont le diamètre et la grandeur de l'espace libre entre le nanofils sont multiples d'une même valeur d : par exemple n_1d pour le diamètre des nanofils et n_2d

pour l'espace libre entre eux (voir la figure 3.12). On va dénommer un tel réseau par $n_1d - n_2d$ où la première valeur (n_1d) donne le diamètre des nanofils et la deuxième (n_2d) l'espace libre entre les nanofils. Il est évident que les réseaux qui ont une même somme de ces deux termes (les réseaux $n_1d - n_2d$ et $n_2d - n_1d$) sont caractérisés par une même distance moyenne entre les nanofils.

On a modélisé les courbes d'aimantation majeures sur la direction des axes des nanofils (OOP) et on a mesuré les champs coercitifs sur ces courbes (de la même manière que nous avons procédé pour les nanofils individuels) en considérant des réseaux avec plusieurs valeurs des paramètres n_1 , n_2 et d . Les résultats obtenus sont présentés dans les figures 3.13 et 3.14 pour nanofils de respectivement 30 nm et 100 nm en diamètre.

En général, la dépendance du champ coercitif du réseau $H_c(l)$ de la longueur des nanofils est très semblable à la dépendance $H_{c0}(l)$ pour le nanofil individuel. On a quand même une différence $H_c(l) < H_{c0}(l)$ pour les nanofils plus minces, différence qui devient de plus en plus grande au fur et à mesure que la distance entre les nanofils diminue (fig. 3.13). Par contre, les champs coercitifs du réseau et du nanofil individuel sont *identiques* pour les nanofils plus gros $H_c(l) = H_{c0}(l)$ (fig. 3.14). Évidemment, les champs coercitifs résiduels sont identiques aussi et pour les nanodisques à 100 nm en diamètre on trouve une valeur d'environ 15 mT pour ces champs (voir la fig. 3.14).

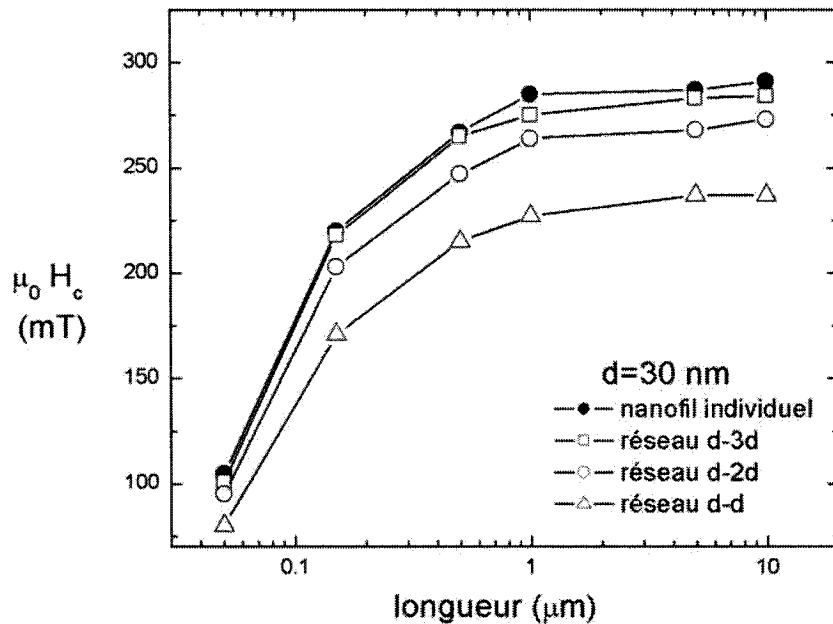


FIG. 3.13 – Le champ coercitif des réseaux à nanofils minces en fonction de la longueur.

Dans les sections suivantes on va se pencher sur l'interprétation physique des résultats que nous avons trouvés par ces modélisations micromagnétiques numériques.

3.3.1.3 Interprétation des résultats

Les résultats obtenus par modélisation micromagnétique et présentés dans les deux sous-sections précédentes mettent en évidence deux aspects importants concernant les processus de renversement dans les réseaux de nanofils ferromagnétiques :

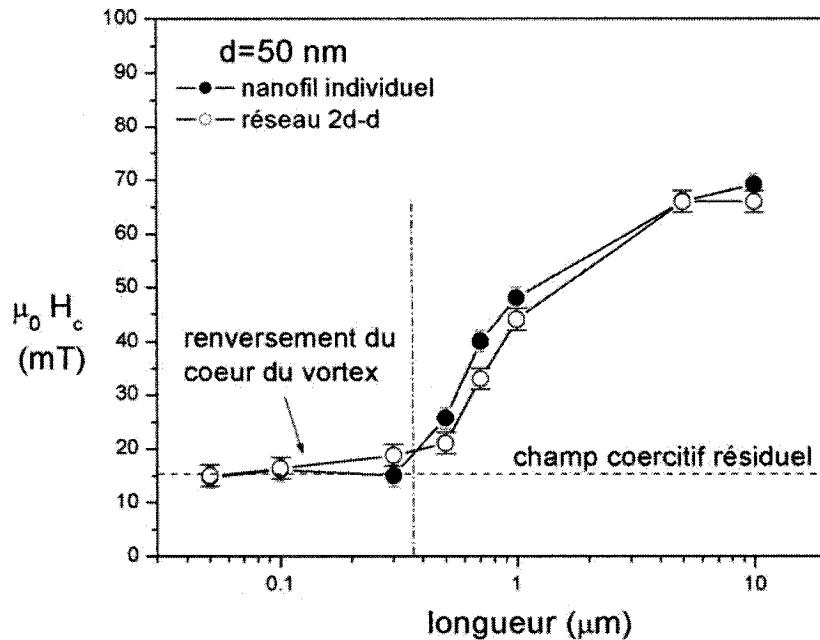


FIG. 3.14 – Comparaison entre les champs coercitifs d'un nanofil individuel et d'un réseau de nanofils gros (100 nm en diamètre). Outre la diminution du champ coercitif au fur et à mesure que les longueurs des nanofils deviennent de plus en plus petites, on observe une saturation (palier) à 15 mT dans la région dipolaire (des petites longueurs).

1. La diminution du champ coercitif du réseau par rapport au champ coercitif du nanofil singulier est une caractéristique des nanofils minces. Pour les nanofils plus gros, les deux champs coercitifs sont égaux ;
2. Pour les nanofils gros, le champ coercitif à des petites longueurs présente un palier (champ coercitif résiduel).

On va donner par la suite une explication pour la première observation ; la deuxième, concernant le champ coercitif résiduel, est plus subtile et nécessite quelques calculs supplémentaires. C'est la raison pour laquelle, la discussion concernant le champ coercitif résiduel sera faite après la présentation d'un modèle analytique de vortex rigide (section 3.3.2) pour les processus axiaux de nanofils courts.

On commence l'interprétation de la diminution du champ coercitif d'un réseau de nanofils par l'observation que le champ d'interaction (statique) sur la direction de l'aimantation ne joue aucun rôle dans le mécanisme de renversement de l'aimantation : dans la figure 3.15 on présente les champs coercitifs de deux réseaux avec le même espacement mais avec des nanofils de diamètres différents (30 nm et 60 nm). La réduction de la coercivité est plus importante pour les nanofils plus minces malgré le fait que le champ d'interaction axial est plus fort pour les nanofils plus gros !

Les configurations micromagnétiques et les processus d'aimantation des nanofils minces ($D = 30\text{ nm}$) et gros ($D = 100\text{ nm}$) sont très différents :

- Dans l'état résiduel, les nanofils minces peuvent être considérés comme des structures monodomaine avec une très bonne approximation. Le renversement commence aux bouts et se propage par « curling » sur la direction axiale des nanofils [31] et ces processus sont accompagnés par l'apparition de pôles magnétiques sur la surface latérale des nanofils ;

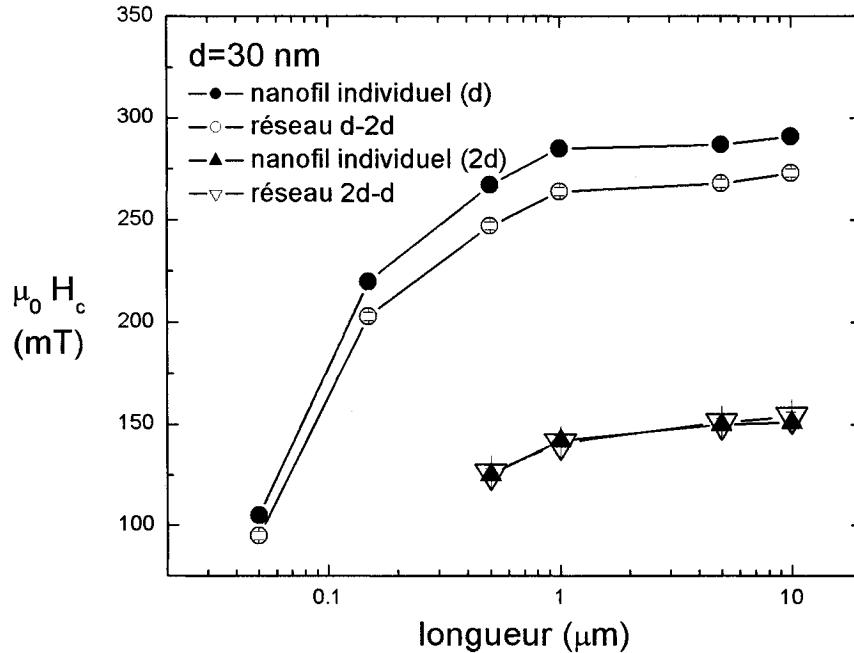


FIG. 3.15 – Comparaison entre le champ coercitif d'un réseau de nanofils gros et le champ coercitif d'un réseau de nanofils minces avec le même espacement.

- Les nanofils gros présentent deux vortex magnétiques aux bouts et une région dont l'aimantation est orientée sur la direction axiale à l'intérieur. Le renversement consiste dans la propagation des parois de type vortex d'un bout vers l'autre [31]. Les structures de type vortex ne créent pas de distributions de pôles magnétiques sur la surface latérale des nanofils et le champ démagnétisant est donné seulement par les pôles générés par le cœur du vortex sur les bases des nanofils.

On avance ici l'idée selon laquelle la réduction du champ coercitif dans les réseaux de nanofils ferromagnétiques est conditionnée par l'apparition de pôles magnétiques sur les surfaces non perpendiculaires à la direction de l'aimantation. Dans les nanofils minces, les pôles situés sur leurs surfaces latérales conduisent vers une configuration magnétique qui clôture les lignes de champ magnétique créées par ces pôles sur plusieurs nanofils, en générant des *vortex collectifs*. Ces structures magnétiques apparaissent seulement pendant le processus de renversement et conduisent vers une diminution du seuil énergétique de la nucléation. Évidemment, la réduction du champ coercitif sera plus importante quand l'espacement entre les nanofils est plus petit et le champ magnétique généré par les pôles latéraux plus fort.

Dans les nanofils plus gros, il n'y a plus de structures de type *vortex collectif* car ces nanofils, grâce à leur structure de domaines, sont capables eux-mêmes d'éviter la formation des pôles magnétiques. Les processus d'aimantation de ces réseaux consistent dans une superposition des processus d'aimantation individuels mais à une susceptibilité magnétique totale plus faible à cause des interactions magnétostatiques réciproques.

Pour expliquer le champ coercitif résiduel des nanofils gros, on présente premièrement un modèle analytique de type *vortex rigide* (MAVR) pour les processus OOP des nanodisques ferromagnétiques amorphes.

3.3.2 Modèle analytique pour les processus axiaux des vortex magnétiques

Nous avons présenté dans la section 1.1.2 du premier chapitre les équations analytiques qui décrivent l'état d'aimantation d'un vortex magnétique dans un cylindre ferromagnétique amorphe. Par la suite, on va d'abord obtenir les expressions analytiques des termes énergétiques pour les processus axiaux de ces systèmes, identifier le champ coercitif résiduel par une modélisation micromagnétique analytique et ensuite comparer les valeurs de ce champ avec les valeurs obtenues dans la section 3.3.1.1 par modélisation micromagnétique numérique des nanofils individuels. Tous ces termes énergétiques sont normalisé à $\mu_0 M_s^2 V$ où μ_0 représente la perméabilité magnétique de l'espace vide, M_s est l'aimantation à la saturation et $V = \pi R^2 L$ - le volume du cylindre.

3.3.2.1 L'énergie Zeeman

Quand le cylindre ferromagnétique se trouve dans un champ externe axial uniforme H , l'énergie magnétostatique du cylindre normalisée à $\mu_0 M_s^2 V$ est définie par

$$e_Z^{oop} = -h_z \langle m_z \rangle \quad (3.25)$$

où $h = H/M_s$ et $\langle m_z \rangle$ est l'aimantation moyenne sur la direction axiale (Oz), aimantation normalisée à M_s . Puisque l'aimantation sur la direction axiale est donnée seulement par le cœur du vortex, on pourrait déduire de (1.5) que

$$m_z(r) = \frac{c^2 R^2 - r^2}{c^2 R^2 + r^2}. \quad (3.26)$$

On peut déduire maintenant le moment magnétique total du cylindre comme

$$\mathcal{M}_z = M_s \cdot 2\pi L [F(\min\{R, cR\}) - F(0)] \quad (3.27)$$

et ensuite la valeur moyenne de l'aimantation axiale

$$\langle m_z \rangle = \frac{\mathcal{M}_z}{\pi R^2 L M_s} = \frac{2}{R^2} [F(\min\{R, cR\}) - F(0)] \quad (3.28)$$

où on a utilisé la notation

$$F(x) = \int \frac{p - x^2}{p + x^2} x dx = -\frac{x^2}{2} + p \ln(p + x^2) + C. \quad (3.29)$$

3.3.2.2 L'énergie d'échange

En effectuant les dérivées sur les cosinus directeurs des composantes de l'aimantation donnés par (1.4) et (1.5) on trouve que l'énergie d'échange pour un vortex magnétique symétrique ($a = 0$) est

$$E_{EX} = 2\pi LA \begin{cases} B(R_v) - \ln c & c \leq 1 \\ B(R) & c > 1 \end{cases} \quad (3.30)$$

où

$$B(x) = \int_0^x \left[rD(r) + \frac{S^2(r)}{r} + \frac{S^2(r)D^2(r)r}{1-S^2(r)} \right] dr, \quad (3.31)$$

$$S(r) = \frac{2R_v r}{R_v^2 + r^2} \quad (3.32)$$

et

$$D(r) = \frac{dS}{dr} = \frac{2R_v (R_v^2 - r^2)}{(R_v^2 + r^2)^2}. \quad (3.33)$$

La situation $c \leq 1$ dans l'équation (3.30) est équivalente à $R_v \leq R$, c'est-à-dire la frontière du coeur du vortex est située à l'intérieur du cylindre. Quand $c > 1$ (ou $R_v > R$) le rayon du coeur du vortex devient plus grand que le rayon du cylindre et la contribution de la région circonférentielle dans le terme de l'énergie d'échange ne doit plus être prise en considération.

Il est élémentaire maintenant de diviser (3.30) par $\mu_0 M_s^2 V$ afin d'obtenir l'expression normalisée e_{EX} de l'énergie d'échange.

3.3.2.3 L'énergie du champ démagnétisant

Dans le cas le plus général, l'énergie du champ démagnétisant d'un vortex magnétique est donnée par la somme entre l'énergie créée par les pôles situés sur les bases du cylindre e_{MS}^{faces} et sur sa surface latérale e_{MS}^{lat} :

$$e_{MS} = e_{MS}^{faces} + e_{MS}^{lat}. \quad (3.34)$$

Pour les processus axiaux, il n'y a plus de distributions de pôles magnétiques sur la surface latérale du cylindre et $e_{MS}^{lat} = 0$. Alors, conformément à la référence [21],

$$e_{MS}(a, c) = e_{MS}^{face} = \frac{R_V^3}{LR^2} \left[G(0) - G\left(\frac{L}{R}\right) \right] \quad (3.35)$$

où

$$G(x) = \int_0^1 \int_0^1 \int_0^{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{\sigma(\rho_1, \varphi_1)\sigma(\rho_2, \varphi_2) \cdot \rho_1 \cdot \rho_2 \cdot d\rho_1 d\rho_2 d\varphi_1 d\varphi_2}{4\pi^2 \sqrt{x^2 + \rho_1^2 + \rho_2^2 - 2\rho_1\rho_2 \cos(\varphi_1 - \varphi_2)}}, \quad (3.36)$$

$$\sigma(\rho, \varphi) = \cos \delta \frac{1 - \rho^2}{1 + \rho^2 - 2\rho \sin \delta \cos \varphi}, \quad (3.37)$$

et

$$\delta = 2 \arctan(ac). \quad (3.38)$$

L'énergie du champ démagnétisant d'un vortex symétrique peut être obtenue maintenant en imposant la condition $a = 0$ dans toutes les équations précédentes.

3.3.2.4 L'énergie totale

Avec tous les termes de l'énergie libre qu'on a définis ci-dessus, l'énergie totale devient

$$e_{tot}(c) = e_{MS}(0, c) + e_{EX}(c) + e_Z(c). \quad (3.39)$$

Dans la figure 3.16 on présente la dépendance de l'énergie totale (3.39) du paramètre c pour un champ axial $\mu_0 H = 80 \text{ mT}$. La configuration d'équilibre pour chaque valeur du champ externe correspond au minimum de cette dépendance (pour la situation présentée dans la fig. 3.16, le minimum est obtenu quand $c = 0.372$).

Trouver la configuration d'équilibre d'un vortex magnétique soumis à un champ axial consiste maintenant à minimiser l'expression (3.39) par rapport au paramètre c , c'est-à-dire résoudre l'équation

$$\delta e_{tot}(c) = 0. \quad (3.40)$$

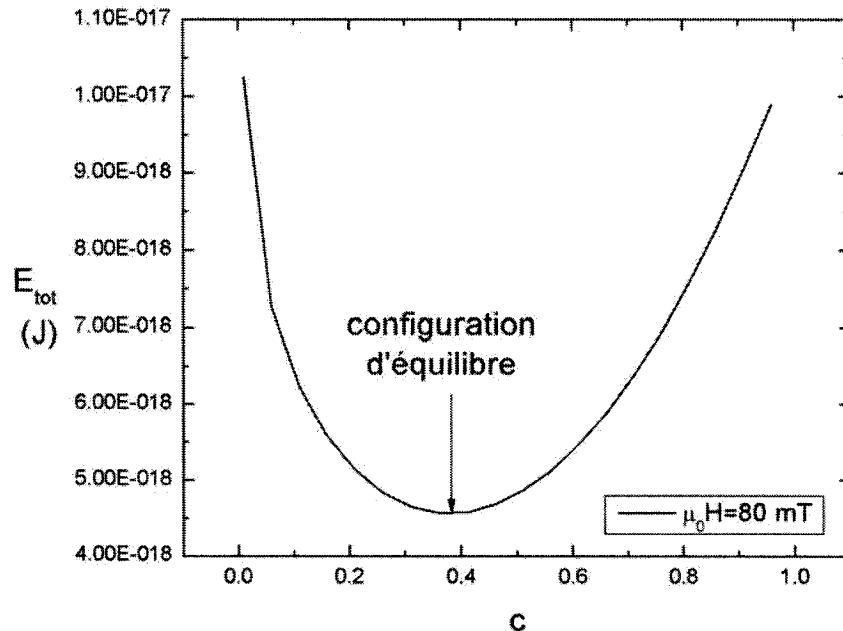


FIG. 3.16 – L'énergie totale d'un vortex magnétique en fonction du paramètre c pour un champ externe qui correspond à 80 mT : l'état d'équilibre correspond au minimum énergétique ($c = 0.372$).

La façon dont nous avons calculé le champ coercitif résiduel d'un nanodisque ferromagnétique en Ni en résolvant l'équation (3.40) est présentée dans la section suivante.

3.3.3 Champ coercitif résiduel dans les nanodisques ferromagnétiques amorphes

Dans cette section on présente les résultats obtenus avec notre modèle analytique de type vortex rigide pour le champ coercitif résiduel d'un nanodisque fer-

romagnétique. Nous voulons comparer la valeur du champ coercitif résiduel fourni par ce modèle avec la valeur obtenue par modélisation micromagnétique numérique dans la section 3.3.1.1 et démontrer par la suite que ce champ coercitif résiduel puise dans les processus de renversement du cœur du vortex.

La caractéristique principale d'un système qui présente un phénomène d'hystéresis par rapport au champ magnétique appliqué c'est que l'énergie totale du système présente deux minima dans un certain intervalle $[-H_c, H_c]$ et seulement un minimum à l'extérieur de cet intervalle. Nous avons utilisé ce paramètre (H_c) comme une approximation pour le champ coercitif résiduel sans prendre en considération la barrière énergétique entre les deux minima. Il est évident qu'une analyse plus sérieuse de ce paramètre doit prendre en considération cette barrière et les fluctuations thermiques qui produisent les transitions entre les deux états d'équilibre.

Afin de trouver les minima de (3.39), nous avons employé un algorithme de minimisation 1D [48] et on a calculé les énergies d'équilibre pour plusieurs valeurs du champ magnétique (de -120 mT à $+120\text{ mT}$). Dans la figure 3.17 on montre la dépendance de ces énergies en fonction de la valeur absolue du champ magnétique (c'est-à-dire qu'on a fait un miroitement du graphique par rapport à l'axe des énergies pour mieux mettre en évidence le paramètre critique H_c). Pour chaque valeur $\mu_0 H \lesssim 12\text{ mT}$ du champ magnétique externe, il y a toujours deux configurations d'équilibre caractérisées par la même valeur de l'énergie totale (*hystéresis*) :

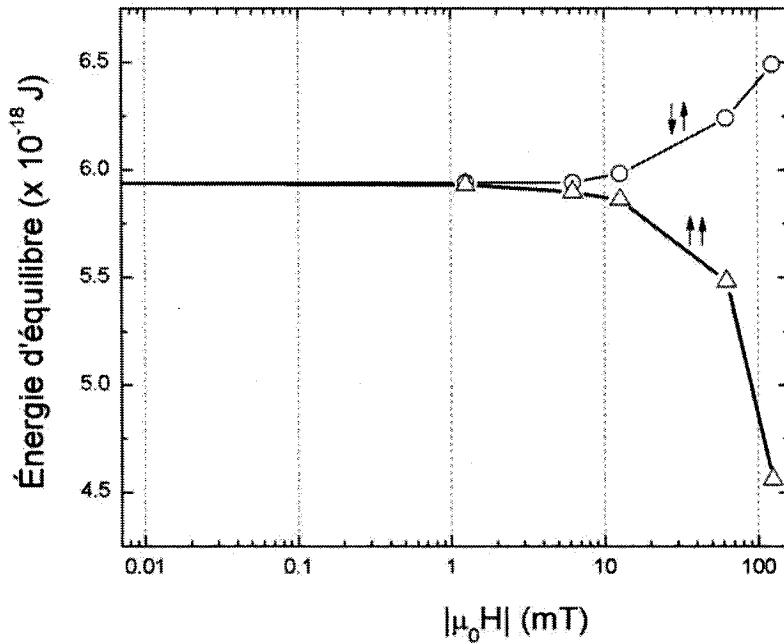


FIG. 3.17 – Énergie d'équilibre en fonction de la valeur absolue du champ magnétique externe pour une aimantation axiale parallèle au champ appliqué ($\uparrow\uparrow$) et antiparallèle à ce champ ($\uparrow\downarrow$). On a considéré dans ces calculs un cylindre en Ni dont le rayon est $R = 50\text{ nm}$ et la longueur $L = 20\text{ nm}$.

le système choisit l'un de ces deux états en fonction de son *histoire* seulement. Pour des valeurs plus grandes que 12 mT , l'énergie de la configuration $\uparrow\uparrow$ est toujours plus petite que l'énergie de l'autre ($\uparrow\downarrow$) et le système choisira toujours la première (aimantation axiale parallèle au champ externe).

Si on utilise la valeur $\mu_0 H_c = 12\text{ mT}$ de ce champ critique comme une approximation du champ coercitif résiduel du vortex, on pourrait dire qu'il s'agit d'une très bonne concordance avec les simulations micromagnétiques (fig. 3.14). La différence

(de $3 mT$)³ entre les valeurs fournies par ces deux modèles pourrait avoir plusieurs origines :

- la simulation micromagnétique a été faite pour Ni nanocristallin tandis que dans la modélisation MAVR on a utilisé le Ni amorphe (on a complètement ignoré le terme d'anisotropie magnétocristalline) ;
- Le modèle analytique qu'on a utilisé ne prend pas en considération la composante radiale de l'aimantation dans la région de transition entre le cœur du vortex et sa circonférence [18] ;

Toutefois, on peut conclure que le champ coercitif résiduel dans les réseaux de nanofils ferromagnétiques puise dans les processus de renversement de l'aimantation dans le cœur du vortex.

3.4 Courbes de renversement de premier ordre

Parmi les méthodes de caractérisation des ensembles de particules ferromagnétiques, la méthode des diagrammes obtenus à l'aide des courbes de renversement de premier ordre (FORC⁴) [2] a gagné beaucoup d'importance dans le dernier temps.

³Cette différence pourrait être encore plus petite, car le champ coercitif dans les simulations micromagnétiques est obtenu avec une précision de $2 mT$.

⁴First Order Reversal Curves (ang.)

Une des raisons pour cet essor serait qu'outre son utilité dans la caractérisation des matériaux, le diagramme pourrait être utilisé comme fonction de distribution dans les modèles statistiques de type Preisach [45]. La caractérisation des matériaux ferromagnétiques est faite dans une approche très simple : premièrement on étudie les diagrammes FORC de certains systèmes physiques (bien connus ou modélisés) et on attribue ensuite les caractéristiques de ces systèmes à tout système physique réel qui aurait le même diagramme, sans se demander trop si la relation entre les deux est bijective⁵.

Dans le cas des réseaux de nanofils ferromagnétiques, nous utilisons ces diagrammes dans le but de faire une liaison entre les propriétés empiriques d'un nanofil individuel (champ coercitif) ou du réseau au complet (champ d'interaction à la saturation) et la topologie de ces diagrammes.

Dans cette section on présente une méthode numérique de calcul d'un diagramme FORC à partir des courbes expérimentales de renversement de premier ordre et on fait une liaison entre le champ d'interaction à la saturation (calculé dans la section 3.1.2) et le diagramme FORC d'un réseau de nanofils.

⁵Une démonstration claire que deux systèmes physiques très différents l'un par rapport à l'autre pourraient présenter des diagrammes FORC identiques n'a pas été encore faite.

3.4.1 Algorithme numérique de calcul d'un diagramme FORC (article [5])

Dans cette section on fait une description des courbes de renversement du premier ordre (FORC) et on décrit l'algorithme de calcul employé dans la référence [5] afin d'obtenir le diagramme FORC correspondant à ces courbes. Cette référence est présentée dans l'annexe 3 et représente le troisième article de cette thèse.

Toute mesure magnétométrique d'un ensemble de courbes de renversement de premier ordre commence avec une forte saturation de l'échantillon (le champ H_+ dans la figure 3.18). On nomme la direction du champ H_+ comme direction positive du champ externe. Dans l'intervalle $(-H_+, H_+)$ on choisit un nombre quelconque n de *points de renversement* $H_r^{(i)}$, où $i = \overline{1, n}$ et l'indice 1 correspond à la valeur la plus grande de cet ensemble. Le champ magnétique est diminué jusqu'au premier point de renversement $H_r^{(1)}$ et ensuite augmenté dans la direction positive jusqu'à H_+ avec un certain pas ΔH . On continue par la suite de même avec tous les autres points de renversement $H_r^{(i)}$ en mesurant le moment magnétique total de l'échantillon pour chaque valeur du champ appliquée. La dernière courbe de renversement correspond au processus d'aimantation majeure de $-H_+$ à $+H_+$. On obtient de cette manière une valeur M du moment magnétique total de l'échantillon pour chaque paire de valeurs (H, H_r) , ce qu'on pourrait représenter comme une fonction bidimensionnelle (une surface) définie sur l'espace (H, H_r) et dont les valeurs repré-

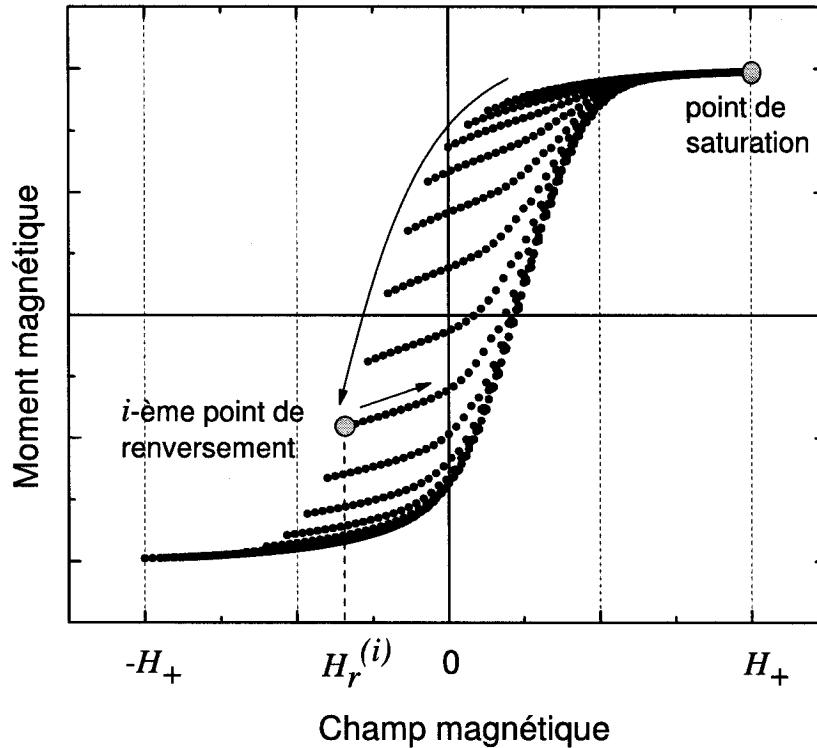


FIG. 3.18 – Courbes d’aimantation de premier ordre (FORC)

sentent les moments magnétiques mesurés (voir la figure 3.19). La dérivée seconde (mixte) de cette fonction

$$\rho = -\frac{\partial^2 M}{\partial H \partial H_r} \quad (3.41)$$

est nommée *diagramme FORC* et est présentée souvent sous la forme d’un tracé de contours (voir la figure 3.20.a ou la figure 2 de l’article [5]).

La dérivée seconde des courbes FORC pose des sérieux problèmes quand les courbes expérimentales sont affectées par les erreurs de mesure. En plus, la nécessité d’avoir une telle uniformité dans la répartition des noeuds dans le plan Preisach impose l’utilisation de maillages irréguliers pour le champ magnétique (les points

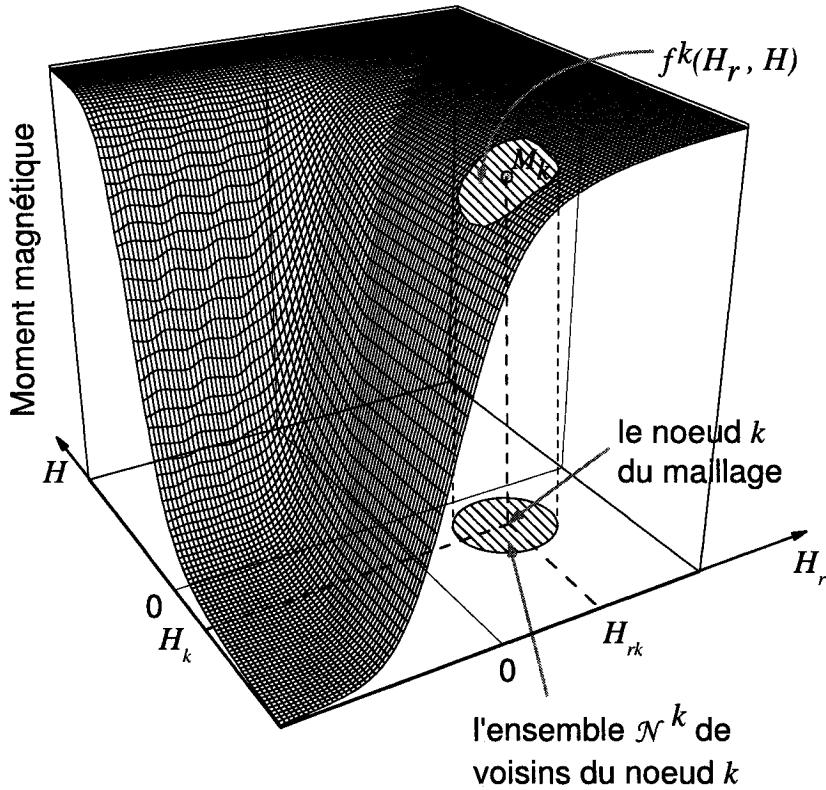


FIG. 3.19 – L’ensemble des courbes de renversement de premier ordre représenté sous la forme d’une fonction bidimensionnelle définie sur le plan (H, H_r) et le polynôme d’interpolation $f^k(H_r, H)$ pour le noeud k .

de renversement ne sont pas toujours équidistants et le pas ΔH peut être non uniforme [38]). Nous allons présenter par la suite un algorithme capable de prendre en considération les erreurs (inhérentes) de mesure et de travailler sur des maillages irréguliers à la fois.

Dans chaque noeud du maillage on définit une fonction nodale comme une combinaison linéaire de 10 termes polynomiaux $\varphi_j \in \{1, H, H_r, H^2, HH_r, H_r^2, H^3, H^2H_r, HH_r^2, H_r^3\}$:

$$f^k(H_r, H) = \sum_{j=1}^{10} c_j^k \cdot \varphi_j(H_r, H). \quad (3.42)$$

Ensuite on calcule les coefficients de cette combinaison par une condition d'interpolation dans le sens des plus petits carrés. Si on dénote avec \mathcal{N}^k l'ensemble des plus proches N_c voisins du node k (voir la figure 3.19), on peut formuler cette condition par le système d'équations

$$\frac{\partial}{\partial c_j^k} \sum_{i \in \mathcal{N}^k \cup \{k\}} w_k(H_{ri}, H_i) \cdot \left[M_i - \sum_{j=1}^{10} c_j^k \cdot \varphi_j(H_{ri}, H_i) \right]^2 = 0. \quad (3.43)$$

H_{ri} et H_i dans cette équation représentent les coordonnées des noeuds considérés comme voisins du noeud k , M_i est la valeur du moment magnétique dans le noeud i et w_k est une fonction utilisée pour pondérer la contribution des noeuds dans le système d'équations (3.43). Une fois ces coefficients connus, la valeur de la dérivée seconde à afficher sur le diagramme FORC dans ce noeud peut être obtenue avec une expression analytique simple en fonction de trois de ces coefficients et les coordonnées du noeud :

$$\rho_k = -c_6^k - 2c_9^k H_{rk} - 2c_{10}^k H_k. \quad (3.44)$$

Le diagramme FORC au complet est obtenu en procédant de même pour tous les noeuds du maillage et en visualisant les valeurs obtenus par un tracé de contours

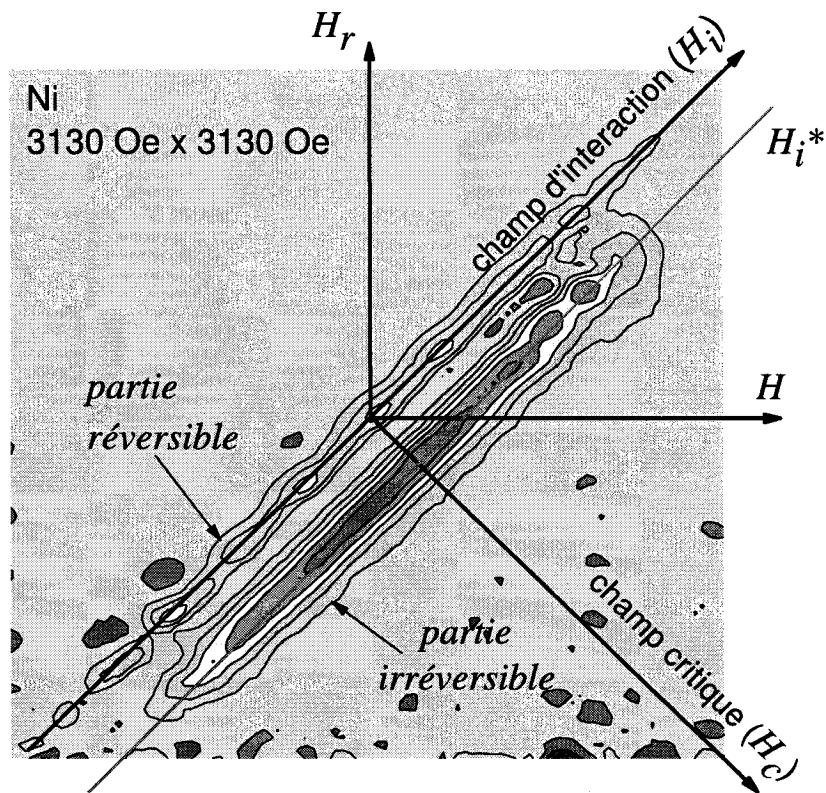


FIG. 3.20 – Diagramme FORC typique sur la direction OOP pour un réseau de nanofils ferromagnétiques en Ni.

dans le plan (H , H_r). Parfois, on utilise un autre système de coordonnées (H_c , H_i) (voir la figure 3.20), dont ses axes sont orientés sur les directions des deux diagonales du plan (H , H_r) et nommés respectivement *l'axe des champs critiques* et *l'axe des champs d'interaction*.

Les éléments principaux d'un diagramme FORC sont :

- *la partie réversible*, située sur l'axe des champs d'interactions (voir la figure 3.20) et
- *la partie irréversible*, située dans le demi-plan $H_c > 0$.

Dans les systèmes caractérisés par un très faible champ coercitif, les deux parties peuvent être superposées, ce qui rend l'identification des propriétés empiriques sur ces diagrammes très difficile. L'algorithme que nous venons de présenter nous a permis d'obtenir une très bonne séparation entre les deux parties des diagrammes FORC (pour une comparaison avec un autre algorithme on peut voir la figure 2 dans la référence [5]). Cette amélioration puise dans les caractéristiques suivantes :

- Le nombre de voisins d'un certain noeud peut être choisi en fonction du champ coercitif du système (la « distance » entre la partie réversible et la partie irréversible) ;
- Avec une fonction w_k on peut pondérer l'importance des voisins inclus dans l'estimation du diagramme. Si on veut accorder une importance égale à tous les voisins on prend simplement $w_k = 1$.

3.4.2 Diagrammes FORC des réseaux de nanofils

Les diagrammes FORC obtenus sur les réseaux de nanofils ferromagnétiques ont montré quelques aspects particuliers par rapport aux autres systèmes de particules ferromagnétiques. La partie irréversible de ces diagrammes (voir la figure 3.20) possède une variance très petite sur la direction des champs critiques et très grande sur la direction des interactions [38, 39]. Ce comportement puise dans le fait que

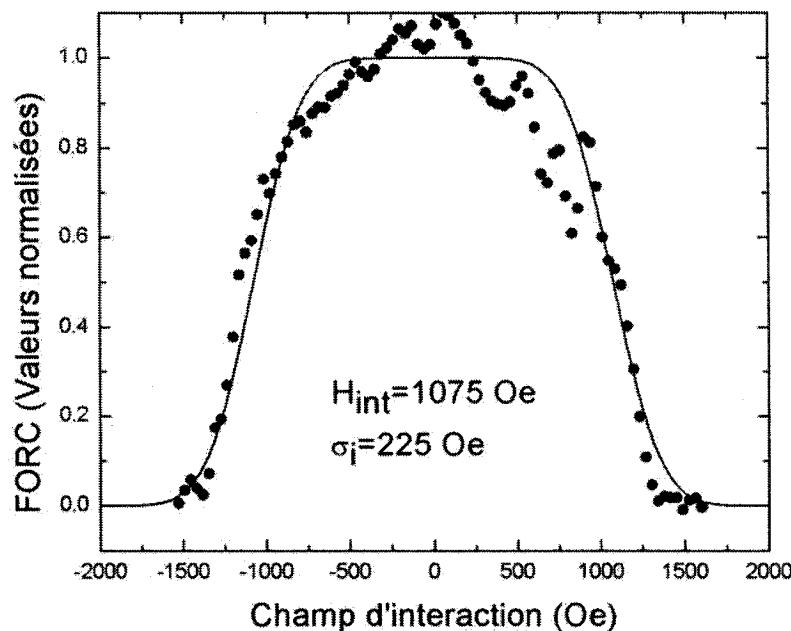


FIG. 3.21 – Section de la partie irréversible d'un diagramme FORC sur la direction H_i^* (voir la figure 3.20) des champs d'interaction.

les particules qui composent le système (les nanofils) sont presque identiques et parallèles entre eux et en plus, le champ d'interaction entre ces particules est très fort.

Par la suite, on va démontrer que le champ d'interaction évalué avec l'expression (3.16) dans la section 3.2 est identique avec la demi-largeur de la partie irréversible du diagramme FORC. On considère que la section de cette partie du diagramme sur la direction H_i^* (fig. 3.20) peut être décrite dans une première approximation

par la fonction analytique

$$S_i(H_i) = \int_{-\infty}^{H_i} [\phi(-H_{i,sat}, \zeta) - \phi(H_{i,sat}, \zeta)] d\zeta \quad (3.45)$$

où

$$\phi(H_0, H) = \exp \left[-\frac{(H - H_0)^2}{2\sigma_i^2} \right]. \quad (3.46)$$

On fait ensuite une interpolation des valeurs expérimentales du diagramme FORC sur la direction H_i^* avec la fonction (3.45) en utilisant $H_{i,sat}$ et σ_i comme paramètres de fit (voir la figure 3.21) et on trouve $\sigma_i = 225 \text{ Oe}$ et $H_{i,sat} = 1075 \text{ Oe}$. D'autre part, en employant l'équation (3.16) pour ce réseau ($M_s = 0.6 \times 10^6 \text{ A/m}$ pour l'aimantation de saturation, $r = 40 \text{ nm}$ pour le rayon des nanofils, $d = 200 \text{ nm}$ pour l'espacement moyen entre les nanofils et $l \simeq 17 \mu\text{m}$ pour leur longueur [49]) on obtient un champ d'interaction dans l'intervalle $[989 \text{ Oe}, 1148 \text{ Oe}]$ pour une longueur des nanofils $l \in [15 \text{ nm}, 25 \text{ nm}]$ ce qui constitue une bonne concordance avec le paramètre $H_{i,sat}$ trouvé sur le diagramme FORC.

Des études expérimentales plus exhaustives [39] ont montré une très bonne concordance entre la dépendance du champ d'interaction de la longueur des nanofils sur le diagramme FORC et la loi analytique (3.16). Des travaux futurs seront orientés sur la relation entre les éléments constitutifs d'un diagramme FORC et les autres propriétés empiriques des nanofils individuels et ses réseaux. Parmi ces propriétés, on envisage principalement la mesure du champ coercitif d'un nanofil

individuel, car une telle mesure nous permettrait de vérifier nos hypothèses concernant les mécanismes physiques responsables pour la réduction du champ coercitif des réseaux par rapport au champ coercitif des nanofils individuels (la discussion de la section 3.3.1.3).

Chapitre 4

Discussions et conclusions

Nous avons modélisé les propriétés empiriques et les processus d'aimantation statiques des réseaux de nanofils ferromagnétiques amorphes. On a accordé une grande attention à la dépendance de ces propriétés de la longueur des nanofils d'une part et à leur modification dans le contexte du réseau par rapport aux nanofils individuels d'autre part. Les principales propriétés empiriques envisagées ont été le champ coercitif et le champ de saturation. Outre l'étude de ces propriétés avec la géométrie (des nanofils individuels et des réseaux au complet), on a donné une grande importance à leur relation avec le champ d'interaction . La plupart des résultats présentés dans cette thèse puise dans l'étude systématique de la variation de ces deux grandeurs avec la longueur des nanofils et dans la comparaison entre les modèles micromagnétiques analytiques et numériques. La comparaison entre autres types de modèles et l'étude des autres propriétés empiriques (aimantation

résiduelle, susceptibilité magnétique, propriétés dynamiques, etc.) pourrait s'avérer très intéressantes pour des travaux futurs.

Nous avons expliqué le champ de saturation des réseaux de nanofils ferromagnétiques étendus. Par un calcul hybride (analytique et numérique) du champ d'interaction dans les réseaux saturés, on a expliqué la relation entre les champs de saturation d'un nanofil individuel et d'un réseau au complet. Nous avons aussi établi une expression analytique pour le champ d'interaction à la saturation et élaboré ensuite une méthode expérimentale d'identification des anisotropies induites dans les nanofils ferromagnétiques. Nos calculs de champ d'interaction ont été confirmés par mesures magnétométriques de courbes d'aimantation majeure et courbes de renversement de premier ordre sur des réseaux de nanofils en Ni, Co et CoFeB. Notre façon d'aborder le problème du champ d'interaction dans les réseaux de nanofils ouvre la possibilité de généraliser cette stratégie dans un code micromagnétique numérique pour les grands ensembles de particules ferromagnétiques.

Le champ coercitif et la relation nanofil-réseau en ce qui concerne ce paramètre ont été étudiés sur des petits réseaux (16 nanofils) par modélisation micromagnétique numérique. Nous avons trouvé une différence de comportement par rapport au champ de saturation et expliqué cette différence d'une façon qualitative. En utilisant un modèle de type vortex rigide, le champ coercitif résiduel dans les nanofils très courts a été expliqué par modélisation micromagnétique analytique. Nous envisageons une généralisation de ce modèle pour les processus axiaux des nano-

fils plus longs et une étude micromagnétique numérique de la réduction du champ coercitif des réseaux plus grands.

Nous avons proposé un algorithme de calcul d'un diagramme à partir des courbes de renversement de premier ordre (FORC) et établi une relation directe entre la topologie d'un tel diagramme et le champ d'interaction dans un réseau uniformément aimanté. Des travaux futurs seront orientés sur l'identification d'autres paramètres empiriques des réseaux et des nanofils individuels à partir de ces diagrammes.

Les contributions originales en ce qui concerne la modélisation des réseaux de nanofils ferromagnétiques et ses processus d'aimantation consistent dans :

1. un calcul hybride (numérique + analytique) du champ d'interaction dans les réseaux étendus uniformément aimantés ;
2. une expression analytique simple pour le champ d'interaction dans les réseaux de nanofils uniformément aimantés ;
3. une méthode expérimentale d'identification des anisotropies dans les nanofils ferromagnétiques en utilisant les mesures magnétométriques sur la direction IP du réseau au complet ;
4. une interprétation physique du phénomène de réduction du champ coercitif d'un nanofil dans le contexte du réseau ;
5. une interprétation physique du champ coercitif résiduel dans les nanofils très

- courts (nanodisques ferromagnétiques) ;
6. un modèle analytique de type vortex rigide pour les processus OOP des nanofils très courts ;
 7. un algorithme numérique pour le calcul des diagrammes FORC à partir des courbes magnétométriques de renversement de premier ordre ;
 8. une méthode de mesure du champ d'interaction à la saturation dans un réseau de nanofils ferromagnétiques en utilisant le diagramme FORC sur la direction OOP de ce réseau.

Même si on a obtenu une bonne concordance entre la théorie et l'expérience en ce qui concerne le champ d'interaction à la saturation, quelques améliorations de la stratégie de calcul pourraient être encore faites. Par exemple, puisque la contribution de monopôle dans ce calcul provient d'une région carré du réseau (la région Ω_1 dans la figure 3.3), les équations analytiques pour le terme de dipôle sont assez compliquées (on se réfère ici principalement à l'équation 3 de la référence [3]) ; une simplification de ces expressions pourrait être obtenues en considérant une région Ω_1 circulaire et de travailler avec un système de coordonnées polaires au lieu des coordonnées cartésiennes.

La grandeur du réseau pris en considération dans les simulations micromagnétiques de la section 3.3 reste encore à discuter. Nous limitons les résultats trouvés

dans cette section aux réseaux très petits (quelque 10 nanofils) mais une extension de ce genre de calculs pour des réseaux plus grands pourrait s'avérer très intéressante. L'analyse de la réduction du champ coercitif des nanofils dans le contexte du réseau doit être faite après une étude plus approfondie du nombre de nanofils pour lequel on obtient une saturation dans le champ coercitif du réseau.

Le champ coercitif résiduel des nanofils très courts a été observé pour les nanofils assez gros (diamètres plus grands que 50 nm). Pour les nanofils plus minces on a obtenu une variation monotone du champ coercitif avec la longueur mais nous avons fait cette analyse seulement jusqu'à 50 nm nanomètre de longueur, étant limités par la taille du maillage considéré dans les simulations micromagnétiques (5 nm). Une réduction de cette taille et une reprise de ces calculs pour les nanofils minces pourraient nous éclaircir sur le comportement de ces nanofils pour $l \rightarrow 0$.

Le modèle analytique de type vortex rigide employé pour expliquer le champ coercitif résiduel des nanofils très courts pourrait être généralisé pour les nanofils plus longues en considérant l'état micromagnétique de ces nanofils comme une superposition de vortex magnétiques. L'étude du champ magnétique généré par ce genre de structures pourrait ensuite expliquer les processus OOP des réseaux de tels nanofils.

Les calculs des diagrammes FORC dans la référence [5] et dans la section 3.4.2 de ce travail ont été effectués avec une fonction de pondération $w_k = 1$, c'est-à-dire qu'on a accordé une importance égale à tous les noeuds du maillage. Toutefois,

car la distribution des noeuds voisins sur le bord du maillage est différente par rapport aux noeuds intérieurs, des fonctions de pondération plus appropriées pour les noeuds situés dans le voisinage de la frontière s'imposeraient dans les travaux futurs.

Références

- [1] Voir, par exemple, le chapitre 5 : W. F. Brown, *Principes de ferromagnétisme*, Dunod, Paris 1970
- [2] C. R. Pike, A. P. Roberts, K. L. Verosub, J. Appl. Phys. **85**, 6660 (1999)
- [3] L. Clime, P. Ciureanu, A. Yelon, J. Magn. Magn. Mater. **297/1**, 60 (2006) (article présenté dans l'annexe 1)
- [4] L. Clime, F. Béron, P. Ciureanu, M. Ciureanu, R. W. Cochrane, A. Yelon, J. Magn. Magn. Mater. **299/2**, 487 (2006) (article présenté dans l'annexe 2)
- [5] L. Clime, A. Stancu, P. Ciureanu, A. Yelon, Journal of Optoelectronics and Advanced Materials **6**, 1005 (2004) (article présenté dans l'annexe 3)
- [6] E. C. Stoner, E. P. Wohlfarth, Philos. Trans. Roy. Soc. London, **A240**, 599 (1948). Réimprimé dans IEEE Trans. Magn. **27**, 3475 (1991)
- [7] J. C. Slonczewski, IBM Rept. RM 003.111.224(1956)
- [8] A. Yelon, O. Voegeli, E. W. Pugh, J. Appl. Phys. **36**, 101 (1965)
- [9] A. Yelon, J. Appl. Phys. **38**, 325 (1967)
- [10] A. Stancu, I. Chiorescu, IEEE Trans. Magn. **33**, 2573 (1997)
- [11] A. Thiaville, Phys. Rev. B **61**, 12221 (2000)
- [12] J.-E. Wegrowe, S. E. Gilbert, D. Kelly, B. Doudin, J.-Ph. Ansermet, IEEE Trans. Magn. **34**, 903 (1998)

- [13] S. Pignard, G. Goglio, A. Radulescu, L. Piraux, S. Dubois, A. Declémy, J. L. Duvail, *J. Appl. Phys.* **87**, 824 (2000)
- [14] R. Hertel, *J. Appl. Phys.* **90**, 5752 (2001)
- [15] M. Natali, I. L. Prejbeanu, A. Lebib, L. D. Buda, K. Ounadeja, Y. Chen, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 157203 (2002)
- [16] R. Puwley, M. Rahn, J. Biberger, D. Weiss, *IEEE Trans. Magn.* **37**, 2076 (2001)
- [17] N. A. Usov, S. E. Peschany, *J. Magn. Magn. Matter.* **118**, L290 (1993)
- [18] W. Scholz, K. Yu. Guslienko, V. Novosad, D. Suess, T. Schrefl, R. W. Chantrell, J. Fidler, *J. Magn. Magn. Mater.* **266**, 155 (2003)
- [19] H. Hoffmann, F. Steinbauer, *J. Appl. Phys.* **92**, 5463 (2002)
- [20] K. Yu. Mel'gov, K. Yu. Guslienko, *J. Magn. Magn. Mater.* **242**, 1015 (2002)
- [21] K. Yu. Guslienko, K. L. Mel'gov, *Phys. Rev. B*, **63**, 100403(R) (2001)
- [22] K. Yu. Guslienko, V. Novosad, Y. Otani, H. Shima, K. Fukamichi, *Appl. Phys. Lett.*, **78**, 3848 (2001)
- [23] Yu. B. Grebenchikov, N. A. Usov, *J. Appl. Phys.* **93**, 4810 (2003)
- [24] K. Yu. Guslienko, V. Novosad, Y. Otani, H. Shima, K. Fukamichi, *Phys. Rev. B* **65**, 024414 (2001)
- [25] <http://math.nist.org/oommf> (consultée le 16 juin 2005)
- [26] D. R. Fredkin, T. R. Koehler, *J. Appl. Phys.* **63**, 3179 (1988)
- [27] D. R. Fredkin, T. R. Koehler, *J. Appl. Phys.* **26**, 415 (1990)
- [28] D. R. Fredkin, T. R. Koehler, *J. Appl. Phys.*, **67**, 5544 (1990)
- [29] T. R. Koehler, D. R. Fredkin, *IEEE Trans. Magn.* **28**, 1239 (1992)
- [30] R. O'Barr, S. Schultz, *IEEE Trans. Magn.* **31**, 3793 (1995)
- [31] R. Hertel, *J. Magn. Magn. Mater.* **249** 251 (2002)

- [32] L. Ferré, K. Ounadjela, J. M. George, L. Piraux, S. Dubois, Phys. Rev. B **56**, 14066 (1997)
- [33] P. M. Paulus, F. Luis, M. Kröll, G. Shmid, L. J. de Jongh, J. Magn. Magn. Mater. **224**, 180 (2001)
- [34] S. Ge, X. Ma, C. Li, W. Li, J. Magn. Magn. Mater. **226**, 1867 (2001)
- [35] M. Kröll, W. J. Blau, D. Grandjean, R. E. Benfield, F. Luis, P. M. Paulus, L. J. de Jongh, J. Magn. Magn. Mater. **249**, 241 (2002)
- [36] G. J. Strijkers, J. H. J. Dalderop, M. A. A. Broeksteeg, H. J. M. Swagten, J. Appl. Phys. **86**, 5141 (1999)
- [37] M. Ciureanu, F. Beron, L. Clime, P. Ciureanu, A. Yelon, T. A. Ovari, R. W. Cochrane, F. Normandin, T. Veres, Electrochim. Acta **50**, 4487 (2005)
- [38] L. Spînu, A. Stancu, C. Radu, F. Li, J. B. Wiley, IEEE Trans. Magn. **40**, 2116 (2004)
- [39] F. Béron et al., à paraître
- [40] J. Rivas, A. Kazadi Mukenga Bantu, G. Zaragoza, M. C. Blanco, M. A. Lopez-Quintela, J. Magn. Magn. Mater. **249**, 220 (2002)
- [41] M. Grimsditch, Y. Jaccard, I. K. Schuller, Phys. Rev. B **58**, 11539 (1998)
- [42] P. S. Fodor, G. M. Tsoi, L. E. Wenger, J. Appl. Phys. **93**, 7438 (2003)
- [43] M. Beleggia, S. Tandon, Y. Zhu, M. De Graef, J. Magn. Magn. Mater. **278**, 270 (2004)
- [44] A. Encinas-Oropesa, M. Demand, L. Piraux, I. Huyen, U. Ebels, Phys. Rev. B **63**, 104415 (2001)
- [45] E. Della Torre, F. Vajda, IEEE Trans. Magn. **30**, 4987 (1994)
- [46] I. D. Mayergoyz, *Mathematical Models of Hysteresis*, Springer, Berlin, 1991
- [47] E. Della Torre, *Magnetic Hysteresis*, IEEE Press, Piscataway, Ny, 2000

[48] www.network-theory.co.uk/docs/gslref/gsl-ref_434.html (consulté le 5 juillet 2005)

[49] F. Béron, communication privée

Annexe 1

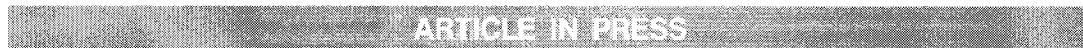
Interactions magnétostatiques dans les réseaux de nanofils ferromagnétiques

Journal of Magnetism and Magnetic Materials **297/1**, 60 (2006)

Liviu Clime, Petru Ciureanu et Arthur Yelon

Résumé

Nous démontrons l'importance des interactions dans les réseaux denses de nanofils ferromagnétiques. En utilisant un modèle micromagnétique simple, nous avons calculé le champ d'interaction dans les directions IP (perpendiculaire aux axes des nanofils) et OOP (parallèle avec ces axes) avec un algorithme hybride (numérique et analytique). La pente de la dépendance du champ d'interaction en fonction de la longueur des nanofils change d'une façon très importante à la transition du régime dipolaire (pour des longueurs très petites) vers le régime monopolaire (des nanofils très longs). Nous montrons les résultats de nos calculs pour les champs d'interaction et pour les champs de saturation des réseaux de nanofils étendus. On a comparé ces résultats théoriques avec les résultats expérimentaux et obtenu une très bonne concordance. On a conclu que le comportement des réseaux de nanofils ferromagnétiques près de la saturation est dominé par les effets magnétostatiques et que ces réseaux sont équivalents à deux distributions planaires de monopoles magnétiques.



ELSEVIER

Available online at www.sciencedirect.com
SCIENCE @ DIRECT®

Journal of Magnetism and Magnetic Materials ■ (■■■) ■■■

www.elsevier.com/locate/jmmm

Magnetostatic interactions in dense nanowire arrays

Liviu Clime*, Petru Ciureanu, Arthur Yelon

École Polytechnique Montréal, Département de génie physique and Regroupement québécois sur les matériaux de pointe (RQMP), CP 6079, succursale Centre-ville, Montréal, Qué., Canada H3C 3A7

Received 19 August 2004; received in revised form 9 February 2005

Abstract

We demonstrate the importance of magnetostatic interactions in dense arrays of ferromagnetic nanowires. Beginning from a simple micromagnetic model, we have calculated the interaction field for saturated magnetization in the plane of the array (perpendicular to the axes of the wires) and normal to the plane, using a hybrid (numerical and analytical) strategy. The slope of interaction field versus wire length changes dramatically at the transition between a dipolar regime (at very small lengths) and a monopolar regime (for longer nanowires). We present the interaction fields and the applied fields at saturation for large nanowire arrays. These results are compared with experiment for electrodeposited arrays, and very good agreement is obtained. This shows that the high field behavior of such arrays is dominated by magnetostatic effects and that a nanowire array behaves like a double-sided distribution of magnetic monopoles.

© 2005 Elsevier B.V. All rights reserved.

PACS: 75.50.Tt; 75.50.Kj; 75.40.Mg

Keywords: Interaction field; Ferromagnetic nanowire arrays; Magnetized cylinder; Micromagnetics

1. Introduction

Arrays of ferromagnetic nanowires have been widely studied in order to understand their physical properties and to assess their usefulness in technical applications. These arrays may be readily fabricated by electrodeposition of Co, Ni, Fe and their alloys into the pores of various types

of templates [1–6]. It has been observed that the applied fields necessary to saturate these arrays, both in the plane of the membrane and normal to the plane, are quite large. An attempt has been made [7,8] to model the observed behavior as arising from interactions between wires acting as point dipoles. While such a model is appropriate for nanodot arrays [9] and for very low aspect ratio cylinders [10], this is clearly not the case for wires which are many orders of magnitude longer than their diameters and than inter-wire spacings. We describe here a simple method for determining

*Corresponding author. Tel.: 514 340 4711x5889;
fax: 514 3404396.

E-mail address: liviu.clime@polymtl.ca (L. Clime).

ARTICLE IN PRESS

the magnetostatic field acting on a wire in an array. We first calculate the field produced by a wire saturated either along its axis (out-of-plane for the array) or normal to its axis (in-plane). We then obtain the field acting on a typical wire, by dividing the array into two regions. The region closest to the wire is treated by summing the effects of the other wires in the region by numerical methods. Beyond this region, the array is treated as a continuum, and its effect is calculated analytically. The results are then compared with experiment. The calculated and measured saturation fields are shown to agree well, showing that magnetostatic effects dominate the behavior of the arrays at saturation and above.

2. Magnetic field produced by a uniformly magnetized nanowire

First, we obtain the magnetic field produced by a uniformly axially magnetized nanowire whose radius is much less than its length. From symmetry, it is sufficient to calculate the field in a plane, yOz , in which the Oz axis corresponds to the wire axis, and $z = 0$ is at the median of the wire. The y -axis is normal to the wire, with $y = 0$ at the surface of the wire. Assuming that all wires are of the same length, we are interested in the fields for $-l/2 < z < l/2$, where l is the wire length, and $y > R$, where R is the wire radius. We find that for $y > 3R$, the fields can be obtained accurately by treating the wire as a linear chain of several thousand point dipoles. In the region $R < y < 3R$, that is for distances which may correspond to nearest neighbors, it is necessary to divide the wire into a grid of cubic and prismatic cells, each of which contains a point dipole. In order to perform numerical calculations, we need to specify $R^2 M_s$, where M_s is the saturation magnetization. In the following figures, we have taken R to be 25 nm, and M_s to be that of Co.

Fig. 1 shows the field, H_z , at $z = 0$ as a function of y , for positive axial magnetization, for four wire lengths, treated as linear distributions of 10 500 magnetic dipoles. In the dipole approximation the dipole corresponds to $M_s V$, where V is the wire volume. In fact, Fig. 1 shows that the field at $z = 0$

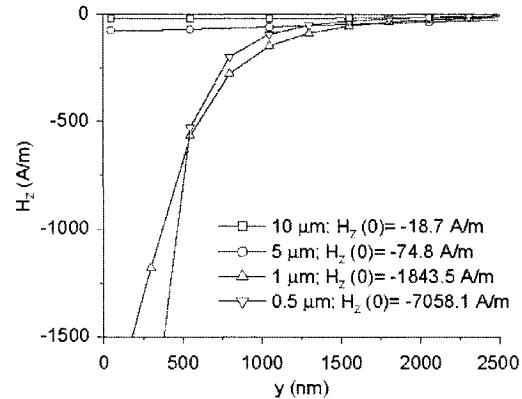


Fig. 1. The magnetic field from a positively axially magnetized nanowire along its median for different values of the wire length. The radius of the wire is 25 nm and the saturation magnetization 1.7×10^6 A/m. The origin of the y coordinate corresponds to the wire surface.

is very small, except for the shortest wires. The variation of this field with length is opposite to that predicted by the magnetic dipole approximation [7,8]. In the following figures, we show contour plots of the field for $-l/2 < z < l/2$ and for $80 \text{ nm} < y < 2500 \text{ nm}$. In Fig. 2 we show contours of H_z for axial magnetization; in Fig. 3 we show contours of H_y for transverse magnetization (parallel to y).

We may see from Figs. 2 and 3 that the magnetic dipole approximation, as we should expect, is valid only for ferromagnetic nanodots. For an axially magnetized wire, as the length of the wire increases, the magnetic field becomes smaller in its median region and becomes larger at its ends, where all sources of magnetic field are localized; the distribution of the magnetic field changes very little if one considers the ferromagnetic cylinder as a volume distribution of magnetic moments. That is, the treatment of a nanowire as a linear distribution of point magnetic moments works well in this application. For transversely magnetized wires, the in-plane magnetic field H_y is relatively uniformly distributed along the Oz axis with steep variations at the limits $z = l/2$ and $z = -l/2$ and its average value is almost independent of wire length. The numerical calculations show

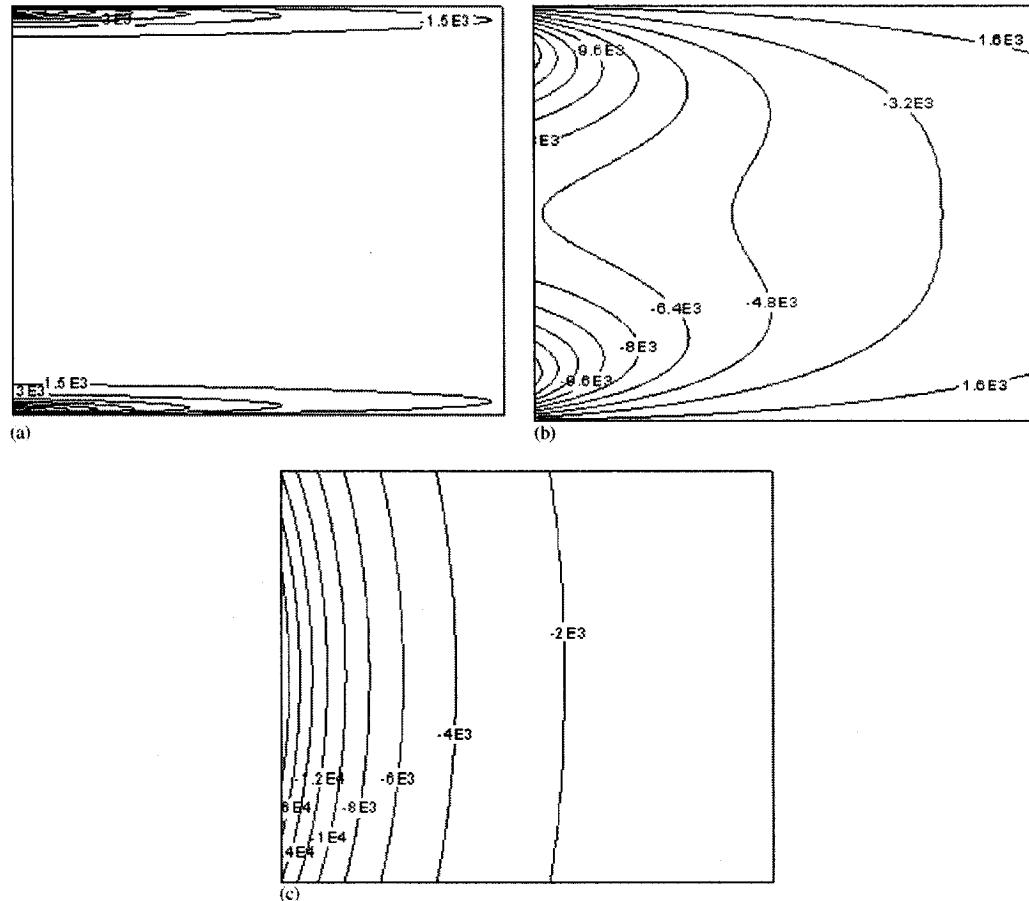


Fig. 2. Contour plot of out-of-plane magnetic field (in A/m) produced by a uniformly axially magnetized cylinder in the plane $-l/2 < z < l/2$ and $80 \text{ nm} < y < 250 \text{ nm}$ for various values of the wire length. The radius of the wire is $R = 25 \text{ nm}$ and the saturation magnetization $M_s = 1.7 \times 10^6 \text{ A/m}$. (a) $l = 5 \mu\text{m}$; (b) $l = 0.5 \mu\text{m}$; (c) $l = 0.05 \mu\text{m}$.

that an axially magnetized nanowire behaves like a pair of magnetic monopoles located at its ends.

In the context of the array, each axially magnetized nanowire exerts its influence mainly at the ends of its neighbors. The magnetic field in the middle region of a given wire is produced by the contributions of the farther neighbors. In Fig. 2 we show only the region corresponding to $-l/2 < z < l/2$ but it is obvious that beyond the ends of a long wire, the component H_z of the magnetic field becomes positive. Thus, variations

of wire length within the array can drastically change the influence of its neighbors on a given wire, with the field varying rapidly and even changing sign.

3. Magnetostatic interactions in ferromagnetic nanowire arrays

Here, we describe a strategy to find the influence of the other nanowires on a given wire. Our aim is

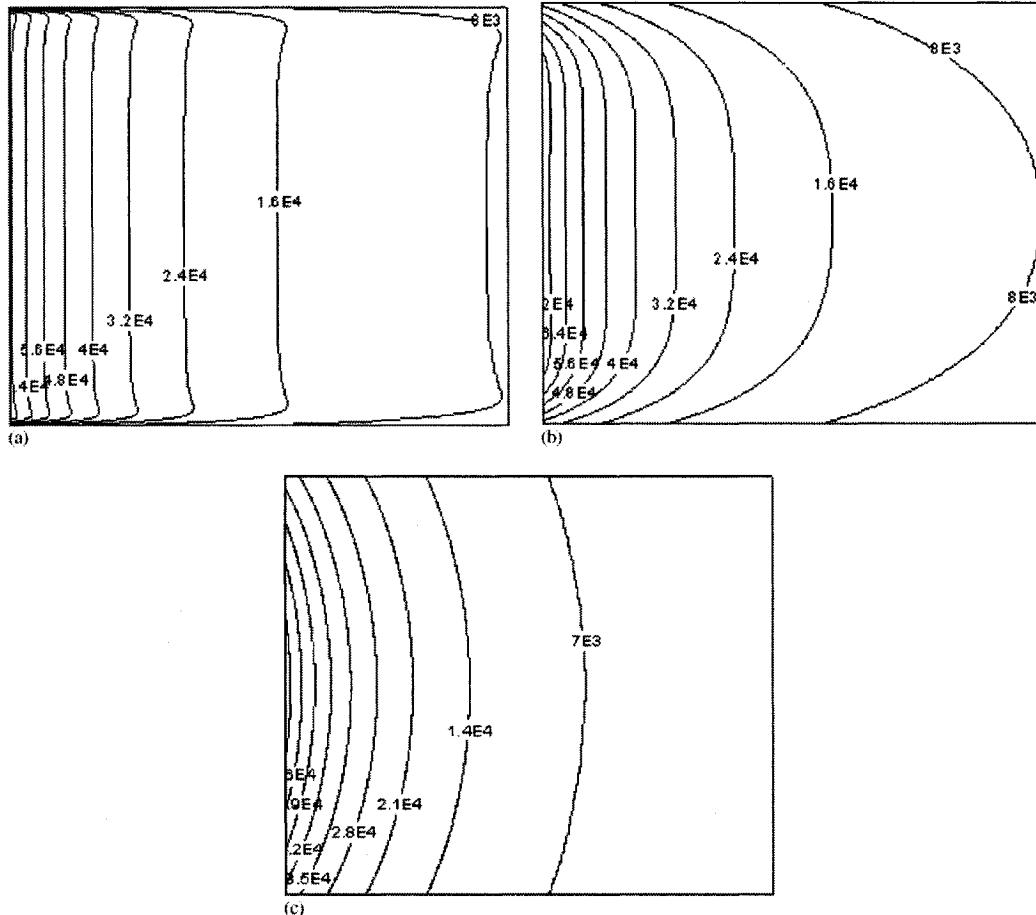


Fig. 3. Contour plot of in-plane magnetic field (in A/m) produced by a uniformly axially magnetized cylinder in the plane $-l/2 < z < l/2$ and $80 \text{ nm} < y < 250 \text{ nm}$ for various values of the wire length. The radius of the wire is $R = 25 \text{ nm}$ and the saturation magnetization $M_s = 1.7 \times 10^6 \text{ A/m}$. (a) $l = 5 \mu\text{m}$; (b) $l = 0.5 \mu\text{m}$; (c) $l = 0.1 \mu\text{m}$.

to determine the magnetic field created by all the ferromagnetic nanowires at a given point in a uniformly magnetized array. In Fig. 4, we show that the array is divided into two regions: Ω_1 , around the point of interest, P , in which each wire is treated as a linear discrete distribution of elementary magnetic dipoles, and Ω_2 , where the array is considered to be a continuous distribution of magnetization.

The total magnetic field at P is:

$$H_p = H_1|_{\Omega_1} + \frac{M_s}{4\pi} l \zeta \int_{\Omega_2} \frac{dS}{r^3}, \quad (1)$$

where H_1 is the contribution from Ω_1 , which we call the *discrete contribution*, ζ is the packing factor of the array, and r is the distance from P . The second term is called the *continuous contribution*.

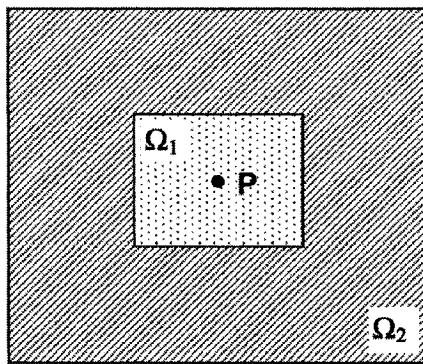


Fig. 4. The two regions of an extended nanowire array corresponding to discrete (Ω_1) and continuous (Ω_2) distribution of the magnetization.

In the following, we describe a simple way to evaluate the two terms in Eq. (1). The first depends upon the template and nanowire geometry and will be evaluated by a numerical algorithm. The second considers only the macroscopic characteristics of the array. If we think of the sample as a thin film with defects, we may interpret the discrete contribution as a term which takes into account the defects in the film and the second as a term which treats the general behavior of the array as a ferromagnetic thin film.

Ideally, it is better to have a region Ω_1 as large as possible, so that $\Omega_2 \rightarrow 0$, that is, all the sample would be treated as a discrete distribution of the magnetization. In practice, we are limited by computer capabilities. As we shall see, an Ω_1 which covers a few thousand μm^2 appears to be satisfactory. In each computation, the total magnetic field is successively evaluated for increasing values of the area of Ω_1 . The calculation ends when the difference between the current value of the total magnetic field and its value from the previous iteration is less than an imposed precision.

4. Magnetic field produced by region Ω_1

We treat region Ω_1 as a square 2D array of parallel and identical ferromagnetic nanowires.

We assume that all wires are parallel to the Oz axis, so that the xOy plane coincides with the median plane of the array. We have calculated the magnetic field produced by all the wires at points situated along the symmetry axis of the central nanowire, using the results of Section 2. We have also compared the magnetic field produced by the square array and that produced by an irregular array, such as is produced by deposition into a real template.

In order to evaluate the importance of the template geometry in interaction field computations, we investigated two small arrays ($\sim 60\,000$ nanowires), one square, the other, irregular. The irregular array was simulated by regularized Delaunay triangulation of rectangular grids [11], obtaining an interwire distance distribution similar to that of commercial Whatman membranes. The magnetic field acting on a wire in the center of the small arrays, when the magnetization is in the out-of-plane direction, is shown in Fig. 5. The interwire distance is about 100 nm; that is, the array is relatively highly packed. Except for very short nanowires, the behavior of the two types of membrane is almost identical, and the field contours are similar, for all lengths. For short wires, the magnetic field is almost uniform along the axis except at the ends, where steep variations can be observed. For longer wires, the magnetic field becomes nonuniform, with two peaks near the ends. The form of the concavity along the length is a function of the array size.

The average field as a function of wire length, for the same conditions as for Fig. 5, is shown in Fig. 6. For very short nanowires ($l \ll 1 \mu\text{m}$), the evolution of the interaction field with wire length is described reasonably well by the dipolar approximation, in which each nanowire is considered to be a single magnetic moment. In the limits of this approximation, the magnetic field increases proportional with the length of the wires. This seems obvious, since longer nanowires have greater magnetic moments and consequently, the magnetic field will be stronger. We call the limit at which the interaction field no longer increases proportionally with the length of wires the *dipolar length*, l_d . This parameter varies monotonically in the range of tens of nanometers for interwire spacings of

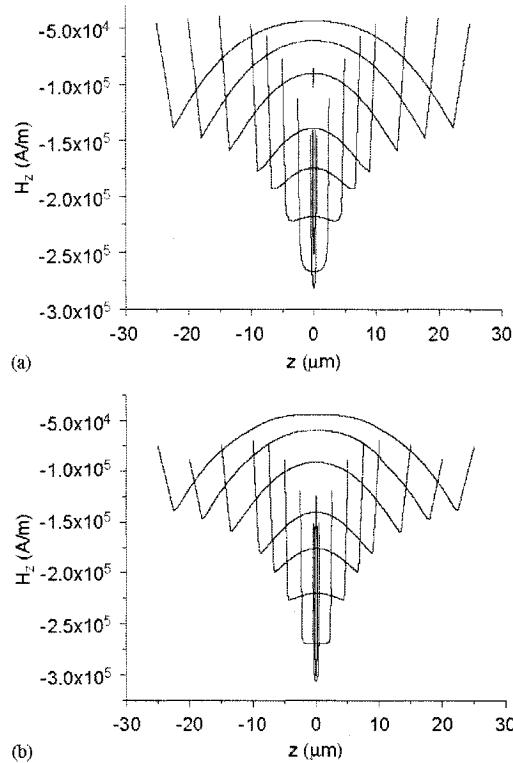


Fig. 5. Magnetic field along the central nanowire of an out-of-plane magnetized nanowire array: (a) rectangular array and (b) irregular array (Delaunay). $d = 100\text{ nm}$, $M_s = 1.7 \times 10^6 \text{ A/m}$ and $R = 25\text{ nm}$. Each curve corresponds to a length, l , equal to the range of values of z for that curve.

hundreds of nanometers. For sparser arrays, l_d is greater, that is, for greater interwire distances the dipolar approximation remains valid for slightly longer nanowires. For longer wires, if the array is small enough, the magnetic field can even decrease with increasing wire length. The general behavior can be understood by considering that as the wire density increases, the behavior of the array must approach that of a thin film and the array is equivalent with a double-sided distribution of magnetic monopoles. However, had we assumed this from the outset, we would not have been able to determine l_d , and the behavior near l_d and below. For high packing of short nanowires one

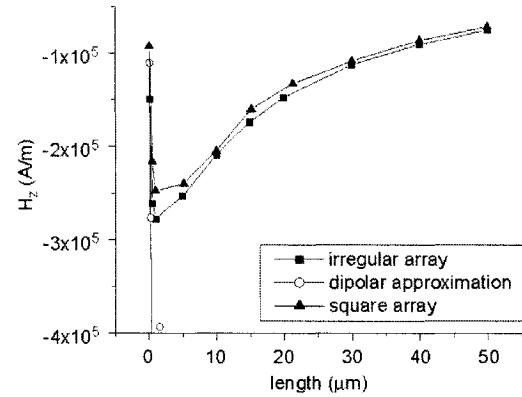


Fig. 6. Average magnetic field vs. length of wires in three different situations: rectangular array (filled circles), irregular array (filled triangles) and dipolar approximation on rectangular array (open circles)

may verify that

$$\lim_{\zeta \rightarrow 1} |H_z| < M_s, \quad (2)$$

that is, the maximum demagnetizing factor in the out-of-plane direction is 1 for total packing. We expect it to be close to the packing factor for sparser arrays. For an infinite array with 80% packing density, we found that the interaction field reached $0.8 M_s$ at $1\text{ }\mu\text{m}$ length. For wires longer than l_d , the average field increases with packing density and array size, but is always smaller than at l_d .

For long wires, as the array size increases, the difference between the central minimum and the two maxima of the magnetic field along the nanowires (see Fig. 5) decreases. This may be understood from the fact that at great distances the sharp peaks in Fig. 2a spread, and eventually overlap, approaching the shapes shown in Figs. 2b and c. For large arrays this difference becomes minimal, approaching the behavior expected for the thin film. This nonuniformity of magnetic field appears to be a characteristic of small nanowire arrays.

The evolution of the interaction field with the length of nanowires, shown in Fig. 6, indicates a

boundary between two different descriptions of a small nanowire array:

- For $l < l_d$, the nanowire array is equivalent to a nanodot array. The magnetic field increases in proportion to the wire length; each nanowire can be considered to be a single magnetic moment.
- For $l > l_d$, the array behaves like a normally magnetized thin film. The interaction field changes in a nonlinear fashion, and its absolute value decreases with wire length.

The behavior of the in-plane interaction field may be understood in similar terms. It decreases

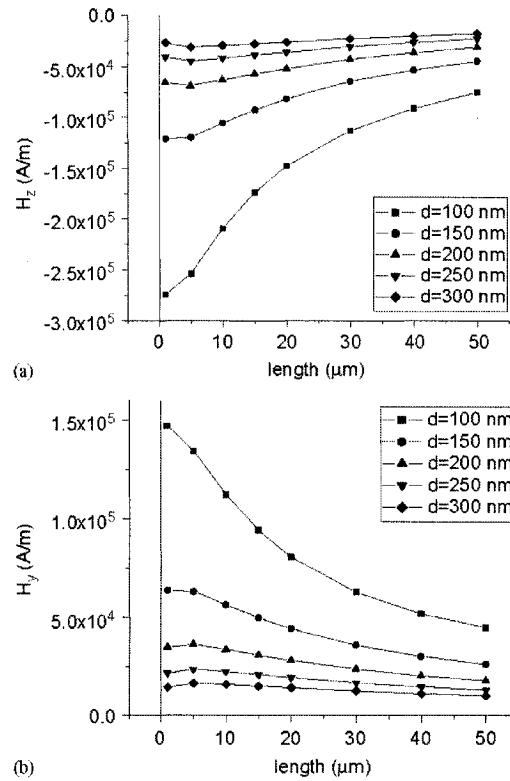


Fig. 7. Average interaction field as function of wire length for out-of-plane (a) and in-plane (b) saturated nanowire arrays with wire spacing as a parameter. We used an irregular template consisting of 63903 nodes in all computations. $M_s = 1.7 \times 10^6$ A/m and $R = 25$ nm.

with interwire spacing. For a given spacing, it increases with wire length for very short lengths, and then decreases, saturating at large lengths. In Fig. 7, we show the interaction field, for the same M_s and R as in previous figures, as a function of wire length, with interwire spacing as a parameter, for both out-of-plane and in-plane saturated magnetization for irregular templates containing $\sim 6 \times 10^4$ nodes. Both interaction fields have steep variations for short, closely spaced, nanowires. For sparser arrays, the interaction field presents smooth variations with the geometry of the array. The numerical results illustrated in Fig. 7 can easily be extended to arrays with different values of M_s and R , by normalizing by $M_s R^2$, as discussed above. For the choice of l and d which we have taken here, and for the array size of Fig. 7, the ratio between the out-of-plane and in-plane interaction fields is about -1.9 . As the size of the array tends to infinity, this ratio tends to -2 , independent of l and d . This is true both above and below the dipolar length.

5. Magnetic field produced by region Ω_2

We take, as the contribution of Ω_1 to the interaction field, the field produced by N nodes in a template of regular square shape. The side of this template is about $d\sqrt{N}$ where d is the average interwire distance. If the complete array is also square, of side a , the second term in Eq. (1) becomes

$$\Delta H_{\text{oop}} = -\frac{M_s}{\pi} I\zeta \int_{d\sqrt{N}/2}^{a/2} \int_{d\sqrt{N}/2}^{a/2} \frac{dx dy}{(x^2 + y^2)^{3/2}} \\ -\frac{M_s}{\pi} I\zeta \int_{-d\sqrt{N}/2}^{d\sqrt{N}/2} \int_{d\sqrt{N}/2}^{a/2} \frac{dx dy}{(x^2 + y^2)^{3/2}}. \quad (3)$$

A good approximation to Eq. (3), for infinite nanowire arrays is

$$\Delta H_{\text{oop}}^\infty = -\frac{2I\zeta}{d(1 + \sqrt{2})\sqrt{N}} M_s. \quad (4)$$

Had we chosen Ω_1 to be circular, we could have chosen Ω_2 to be a circular disc. This would have

provided a simpler equivalent to Eq. (3), with a closed form solution.

For $l = 1 \mu\text{m}$, $\zeta = 0.2$, $\sqrt{N} = 252$, $d = 150 \text{ nm}$ and $a = 1 \text{ cm}$ one can easily verify that $\Delta H_{\text{oop}} \cong \Delta H_{\text{oop}}^{\infty} = 2 \times 10^{-3} M_s$. Because this term increases with l , its value becomes important for arrays containing long wires. For small and sparse (large d) arrays, the continuous contribution in interaction field can become very small. For this kind of array it is possible to observe a decrease in absolute value of interaction field with wire length. If we multiply Eqs. (3) and (4) by a factor of $-\frac{1}{2}$, we obtain the continuous contribution to the in-plane saturated state. This proportionality factor is, of course, the same as that for the infinite limit of the discrete calculation. Obviously, the interaction fields will depend upon both array size and shape for small, sparse arrays of long wires, but not for large, dense arrays of short wires. Clearly, the quantity of greatest interest is the total field, arising from the sum of the two regions.

6. Total magnetic field

As discussed above, the magnetic field acting on a wire near the center of an array is the applied field plus the contributions from regions Ω_1 and Ω_2 . In order to find appropriate values for the dimension of Ω_1 we have computed the total magnetic field for increasing values of the area of Ω_1 , and have observed that the calculated interaction field becomes almost independent of this area, above a certain value. From the point of view of simplicity of the calculation, it is obviously preferable to work with small Ω_1 regions, to minimize computation time. However, precision is sacrificed if it is too small. We have therefore performed a convergence analysis, whose results are shown in Fig. 8, for a square array of 1 cm^2 total area. Fig. 8 (a) shows the variation of the continuous and discrete contributions to the interaction field as functions of N , that is, of the dimensions of Ω_1 . As expected, the discrete contribution increases and the continuous contribution decreases with increasing N . In Fig. 8 (b) we show the total field (the sum of the two contributions), which becomes almost constant for

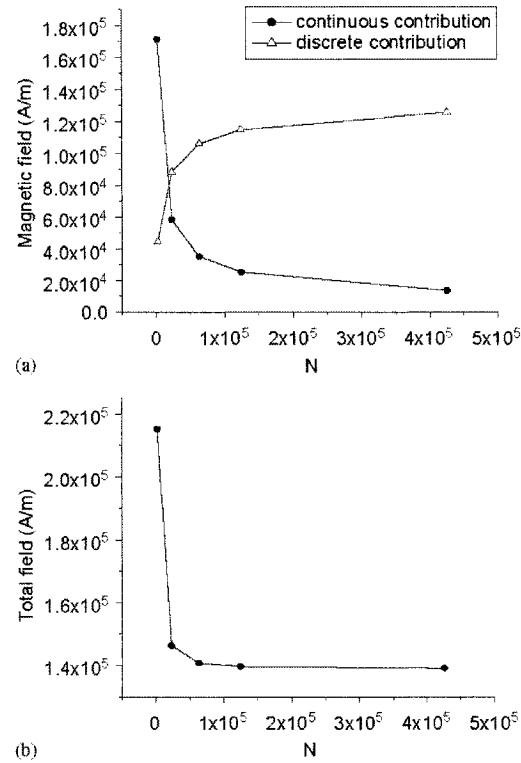


Fig. 8. (a) Evolution of continuous (dots) and discrete (triangles) contributions with the number of wires in Ω_1 . (b) Total magnetic field vs. number of wires accounted for in the discrete contribution. $l = 10 \mu\text{m}$, $R = 25 \text{ nm}$, $d = 150 \text{ nm}$, $M_s = 1.5 \times 10^6 \text{ A/m}$ for a sample area of 1 cm^2 .

regions Ω_1 containing 50 000 wires, beyond which, the field variations are below 1%. These results would hardly change if the area of the sample were 1 m^2 or greater. We can treat the sample with 1 cm^2 total area as an infinite array, and can use Eq. (4) in order to evaluate the continuous contribution. A significant decrease in total magnetic field is obtained for sample areas below 1 mm^2 , that is for such arrays, the area is a very important parameter. Obviously, this also applies to in-plane fields. In Fig. 9 and Table 1, we present the total interaction field for infinite arrays as a function of wire length, with interwire distance as a parameter, using the same values of M_s and R as in Fig. 7.

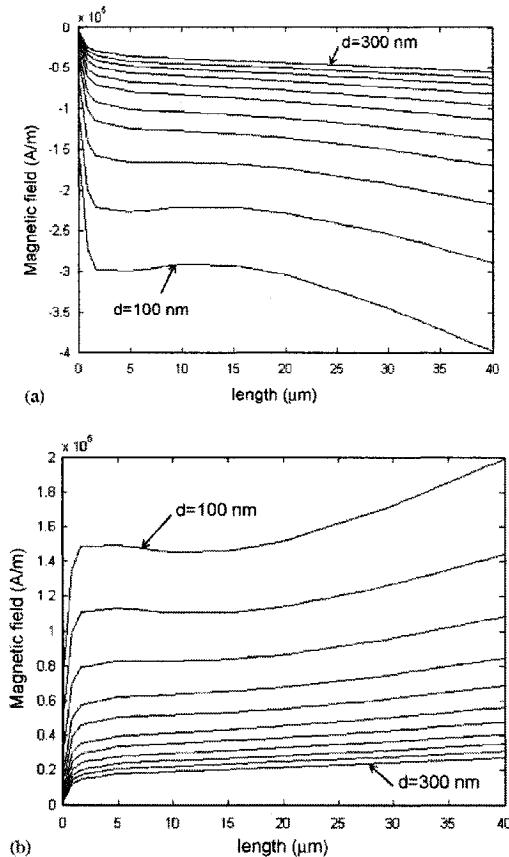


Fig. 9. Theoretical average magnetic field vs. length of wires at different interwire spacings. (a) out-of-plane magnetic saturation; (b) in-plane magnetic saturation. $R = 25 \text{ nm}$ and $M_s = 1.7 \times 10^6 \text{ A/m}$ for a infinite sample area. The contours correspond to 20 nm changes in d

7. Comparison with experiment

Using the results of the algorithm presented here, we may predict the applied field necessary to saturate an array of nanowires. The simplest hypothesis is that magnetostatic interactions completely dominate any anisotropy, that is, individual anisotropy fields are mainly given by the wire geometry. In this case, the saturation field normal to the plane of the membrane will

be given by

$$H_s = -H_{oop} \quad (5)$$

since the applied field must overcome the interaction field. The saturation field in the plane of the membrane is given by

$$H_s + H_{ip} = \frac{1}{2} M_s \quad (6)$$

since the combined applied and interaction fields must overcome the demagnetizing field of each wire. For sufficiently large arrays, the average interaction field should describe the behavior of the array, since the fields are relatively uniform along the length of the wire. For small membranes, this will pose an additional problem. If Eqs. (5) and (6) do not suffice to describe the behavior of an array, one may begin to consider the possibility of including a constant anisotropy energy density, in the description of array behavior, or whether a complex description of magnetization processes is necessary.

In Fig. 10, we show predictions for Co wires, $R = 65 \text{ nm}$, $d = 150 \text{ nm}$, as a function of wire length, assuming infinite arrays. We compare the curves with experimental values from the work of Strijkers et al. [7] considering the magnetization loops as simple linear piecewise functions, so that the saturation field is evaluated by extrapolation of the major hysteresis loop branches in the least square sense with these functions. We calculated the saturation field using Eqs. (5) and (6), that is, only the shape anisotropy is accounted for. As may be seen, the fit is very good for the in-plane direction. For the out-of-plane direction, the experimental values are below prediction for $l_d \leq l \leq 20 \mu\text{m}$. Within this range, the discrepancy increases as l decreases. This is not likely to arise from the presence of anisotropies. We believe that it is due to the fact that the wires in this range cannot be treated as infinite cylinders from the point of view of reversal mechanisms, as Hertel [12] has shown by micromagnetic simulations.

8. Conclusions

A strategy for determining the interaction field in magnetic saturated nanowire arrays is described

Table 1

Theoretical out-of-plane magnetic field (in A/m) at saturation, for different lengths (l) and interwire spacings (d) of a nanowire array with infinite area

| d (nm) | l(μm) | | | | | | | | |
|--------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|
| | 0.1 | 0.5 | 1 | 5 | 10 | 20 | 30 | 40 | 50 |
| 100 | −161310 | −214570 | −281160 | −298830 | −290750 | −303690 | −344430 | −398480 | −459340 |
| 150 | −52429 | −81795 | −11850 | −138260 | −141290 | −150770 | −167700 | −189910 | −215570 |
| 200 | −22970 | −40992 | −63519 | −78894 | −83038 | −90822 | −100920 | −113220 | −127190 |
| 250 | −11969 | −23926 | −38873 | −50731 | −54458 | −60729 | −67750 | −75755 | −84618 |
| 300 | −6991 | −15383 | −25873 | −35237 | −38381 | −43442 | −48708 | −54440 | −60633 |

For other values of l and d , a simple linear interpolation between neighboring points works very well (especially for longer wires). The in-plane magnetic field can be obtained by multiplying these values by a factor of $-\frac{1}{2}$. The values here are for $R = 25$ nm and $M_s = 1.7 \times 10^6$ A/m. For other values of R and M_s , the results in this table will be rescaled by multiplying them with a factor of $23.5 \times M_s R^2$.

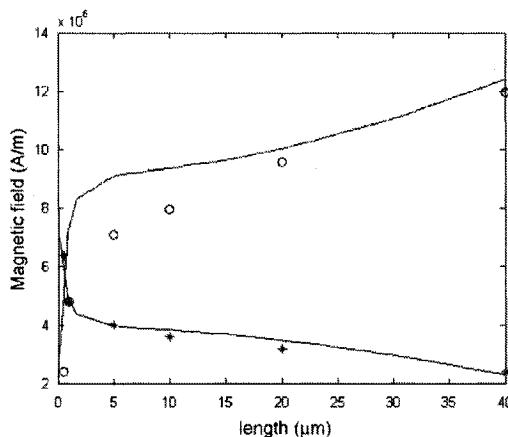


Fig. 10. Theoretical (line) and experimental saturation field for in-plane (stars) and out-of-plane (circles) directions vs. wire length.

in this paper. The evolution of this field with wire length shows an important variation of the slope at the length at which the treatment of each nanowire as a single dipole breaks down. A nanowire array behaves like a double-sided distribution of magnetic monopoles located at the ends of each nanowire. The curves and the table which we present for the interaction field may be applied to a wide range of wire compositions and diameters by a simple normalization. In

addition, they may be applied to other values of wire lengths and spacings by interpolation or extrapolation of the values which we have presented. Comparing the model with experiment for Co nanowires [7], we have shown that the behavior of nanowire arrays at fields close to saturation can be understood in terms of the predicted interaction fields. That is, the high field behavior of the arrays is dominated by magneto-static effects. We have also compared the model with experimental results for soft amorphous nanowires. The results in this case, presented elsewhere [13], are also quite satisfactory. We are presently extending the analysis presented here to lower fields, in order to understand magnetization processes in nanowire arrays.

References

- [1] L. Piraux, S. Dubois, J.L. Duvail, J. Mater. Res. 14 (1999) 3042.
- [2] N. Tsuya, T. Tokushima, M. Shiraki, Y. Wakui, Y. Saito, H. Nakamura, S. Hayano, A. Furugori, M. Tanaka, IEEE Trans. Magn. 22 (1986) 1140.
- [3] R.M. Metzger, V.V. Konovalov, M. Sun, T. Xu, G. Zangari, B. Xu, M. Benakli, W.D. Doyle, IEEE Trans. Magn. 36 (2000) 30.
- [4] S.Y. Chou, M. Wei, P.R. Krauss, P.B. Fisher, J. Vac. Sci. Technol. B 12 (1994) 3659.
- [5] S.Y. Chou, P.R. Kraus, L. Kong, J. Appl. Phys. 79 (1996) 6101.

ARTICLE IN PRESS

L. Clime et al. / Journal of Magnetism and Magnetic Materials ■ (■■■) ■■■

11

- [6] J.L. Duvail, S. Dubois, L. Piroux, A. Vaures, A. Fert, D. Adam, M. Champagne, F. Rousseaux, D. Decanini, *J. Appl. Phys.* 84 (1998) 6359.
- [7] G.J. Strijkers, J.H.J. Dalderop, M.A.A. Broeksteeg, H.J.M. Swagten, *J. Appl. Phys.* 86 (1999) 5141.
- [8] J. Rivas, A. Kazadi Mukenga Bantu, G. Zaragoza, M.C. Blanco, M.A. Lopez-Quintela, *J. Magn. Magn. Mater.* 249 (2002) 220.
- [9] M. Grimsditch, Y. Jaccard, I.K. Schuller, *Phys. Rev. B* 58 (1998) 11539.
- [10] M. Shima, M. Hwang, C.A. Ross, *J. Appl. Phys.* 93 (2003) 3440.
- [11] P.L. George, *Triangulation de Delaunay et maillage: applications aux éléments finis*, Hermès, Paris, 1997.
- [12] R. Hertel, *J. Appl. Phys.* 90 (2001) 5752.
- [13] M. Ciureanu, F. Beron, L. Clime, P. Ciureanu, A. Yelon, T.A. Ovari, R.W. Cochrane, F. Normandin, T. Veres, *Electrochim. Acta*, in press.

Annexe 2

Caractérisation de nanofils ferromagnétiques en utilisant les mesures magnétométriques du réseau

Journal of Magnetism and Magnetic Materials **299/2**, 487 (2006)

Liviu Clime, Fanny Béron, Petru Ciureanu, Mariana Ciureanu, Robert William
Cochrane et Arthur Yelon

Résumé

On présente un modèle phénoménologique pour le champ d’interaction dans les réseaux de nanofils ferromagnétiques et on utilise ensuite ce modèle pour évaluer le champ d’anisotropie effective d’un nanofil individuel. Par rapport aux autres méthodes qui pourraient être employées pour déterminer ce paramètre, notre approche présente l’avantage d’utiliser seulement les courbes d’aimantation dans le plan du réseau et de ne pas nécessiter des valeurs numériques pour la magnétisation de saturation ou pour le rayon des nanofils. On applique cette méthode pour trois échantillons différents et on trouve un champ d’anisotropie effective égal à $M_s/2$, ce qui nous indique le caractère démagnétisant de ce champ.

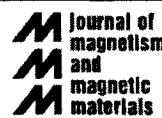


ELSEVIER

Available online at www.sciencedirect.com



Journal of Magnetism and Magnetic Materials ■ (■■■) ■■■



www.elsevier.com/locate/jmmm

Characterization of individual ferromagnetic nanowires by in-plane magnetic measurements of arrays

L. Clime^{a,*}, F. Béron^a, P. Ciureanu^a, M. Ciureanu^a, R.W. Cochrane^b, A. Yelon^a^a*École Polytechnique de Montréal, Département de génie physique and Regroupement québécois sur les matériaux de pointe (RQMP), CP 6079, succursale Centre-ville, Montréal, Qué., Canada H3C 3A7*^b*Département de physique, Université de Montréal and Regroupement québécois sur les matériaux de pointe (RQMP), CP 6128, succursale Centre-ville, Montréal, Qué., Canada H3C 3J7*

Received 14 February 2005

Abstract

We present a phenomenological model for the interaction field in ferromagnetic nanowire arrays and use it to obtain the effective anisotropy field of individual nanowires, from the in-plane saturation field of the array. In contrast to other methods which may be used to estimate this parameter, the proposed strategy requires no knowledge of the saturation magnetization nor of the nanowire radius. Applied to three arrays of different compositions, this approach yields an equivalent anisotropy field of the individual nanowires approximately equal to $M_s/2$, indicating that its origin is the demagnetizing field of the wire.

© 2005 Elsevier B.V. All rights reserved.

PACS: 75.50.Tt; 75.50.Kj; 75.40.Mg; 75.30.Cr; 75.30.Gw*Keywords:* Magnetostatic interactions; Ferromagnetic nanowires; Anisotropy field; Amorphous materials; Ferromagnetic nanostructures; Particulate media

1. Introduction

It is necessary to understand magnetostatic interactions in amorphous ferromagnetic nanowire arrays if we are to understand the magnetization

processes of these systems. When the sample is of moderate size the interaction field acting on a given wire can be evaluated by numerical methods (for example using a finite-element scheme) [1]. For larger arrays, computational limits require the adoption of hybrid methods (numerical and analytical) [2], considering the sample as a discrete distribution of magnetic dipoles in the immediate vicinity of the point of interest and as a continuous

*Corresponding author. Tel.: +514 3404711x5889; fax: +514 3404396.

E-mail address: liviu.clime@polymtl.ca (L. Clime).

distribution of magnetization in the remaining region.

In this paper, we apply the numerical results obtained in Ref. [2] in order to study this field and to obtain information about individual nanowires. Specifically, we consider an array of perfectly parallel and identical ferromagnetic nanowires, and assume that the sample surface is large enough to be considered infinite; that is, an increase of the sample area does not influence the interaction field in a significant manner. Our previous calculations [2] have shown that this approximation is valid even for samples of only a few tens of μm^2 , if the filling factor is large enough.

The predictions of the model developed in Ref. [2] agree well with two sets of experiments on wires of two compositions [3,4]. Here, we use the numerical results of the model to obtain an analytic, phenomenological, expression for the interaction field, from which the anisotropy field of individual nanowires can be extracted, using the in-plane saturation field of the array.

2. Theoretical model

Micromagnetic simulations were performed and the interaction field determined for ferromagnetic nanowire arrays with nanowire lengths, l , up to $50 \mu\text{m}$, and for an average interwire spacing, d , in the range of 150 – $300 \mu\text{m}$. Interaction fields, H_{\parallel} , for the magnetization oriented parallel to the nanowire axes, and H_{\perp} , for the magnetization oriented perpendicular to these axes, have been calculated using a hybrid method (numerical and analytical): relatively near neighbors were treated as linear chains of magnetic dipoles, while those at greater distance were treated as a continuous distribution of magnetization [2]. The magnetization density in these regions was evaluated taking into account the fill factor of the array. It was found that the interaction field exhibits an anomaly at a value of l which we call the dipolar length, l_d . Below l_d , the interaction field increases almost linearly with the wire length (the dipolar regime). Above it, the behavior of the interaction field is strongly dependent upon the array dimensions

and the interaction field increases less steeply than in the dipolar regime. The transition from the dipolar regime to the monopolar regime has also been observed for the interaction energy of two parallel and uniformly magnetized nanowires [5].

We define H_{int} , a field such that $H_{\parallel} = -H_{\text{int}}$ and $H_{\perp} = H_{\text{int}}/2$. A good approximation to H_{int} for $l > l_d$ is given by

$$H_{\text{int}}(d, l) = M_s r^2 \left[a(d)l + b(d) \tanh\left(\frac{l}{l_d}\right) \right], \quad (1)$$

where M_s is the saturation magnetization of the ferromagnetic material, r is the nanowire radius and l_d the dipolar length. $a(d)$ and $b(d)$ are phenomenological functions of d . For the values of d and l investigated, these two functions can be approximated by

$$a(d) = \frac{1}{c_1 d^2 + c_2 d} \quad (2)$$

and

$$b(d) = \frac{1}{c_0 c_3 d^3 + c_4 d^2 + c_5 d + 1}. \quad (3)$$

The changes in hyperbolic tangent values in Eq. (1) become important at the transition region between the dipolar and monopolar regimes of the array. This tangent may be taken as equal to 1 in the monopolar regime. The numerical values of the coefficients in Eqs. (2) and (3) are determined, in part, by imposing

$$\lim_{l, d \rightarrow 0} H_{\text{int}} = M_s. \quad (4)$$

That is, for large fill factors and short nanowires, the array must behave like a ferromagnetic thin film. Rigorously speaking, the limits in Eq. (4) will depend upon the array geometry, that is, the array becomes a thin film at $d \neq 0$. However, because of the hyperbolic dependence of $a(d)$ and $b(d)$, these corrections will not seriously affect the numerical values of the coefficients c_1 to c_5 . We can use the condition given by Eq. (4) to ensure the physical meaning of the interaction field beyond the limits used in the estimation of the model parameters.

The best fit of the coefficients c_1 – c_5 to the numerical calculation are given by

$$\begin{aligned} c_1 &= 17.8 \mu\text{m}, \\ c_2 &= 1.2 \mu\text{m}^2, \\ c_3 &= 2200 \mu\text{m}^{-3}, \\ c_4 &= 2270 \mu\text{m}^{-2}, \\ c_5 &= 200 \mu\text{m}^{-1}, \end{aligned} \quad (5)$$

when c_0 was fixed at $10^{-4} \mu\text{m}^2$. We attach no particular physical significance to expression (1) and numerical values (5).

An intuitive image of the accuracy of these approximations can be seen in Fig. 1, which shows a comparison between the interaction field given by Eq. (1) (full lines) and by precise calculations (points), for several infinite arrays with different inter-wire spacings. As it can be seen in this figure, the approximation given by Eq. (1) works very well for relatively sparse arrays (hundreds of nanometers) and for almost any length from 1 to 50 μm , but fails for very small l (nanodot arrays). At $l = 0$, the slope of the interaction field should correspond to the dipolar approximation $2.258 M_s r^2/d^3$, whereas Eq. (1) give a much smaller value.

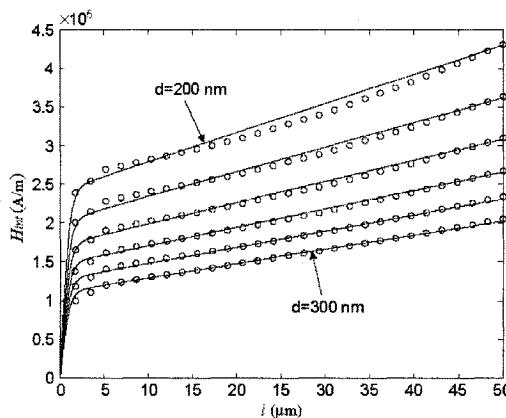


Fig. 1. Calculated interaction field for infinite arrays with different values of the inter-wire spacing. Numerical calculations are represented by the circles whereas the full lines give the approximation Eq. (1). $M_s = 10^6 \text{ A/m}$, $l_d = 1 \mu\text{m}$ and $r = 60 \text{ nm}$ in all these simulations.

3. Anisotropy field

For wires with large aspect ratios ($l \gg r$), the easy magnetic direction is along the wire axis due to demagnetizing effects. Hence designating h_k as the effective, in-plane anisotropy field of the individual ferromagnetic nanowires, we write

$$H_{\text{sat}}^{\text{ip}}(l) = h_k(l) - \frac{1}{2}H_{\text{int}}(d, l), \quad (6)$$

where $H_{\text{sat}}^{\text{ip}}$ is the saturation field in this plane. In our previous work [2,4], we used the numerical calculations in order to solve Eq. (6) and to determine h_k . This method is limited in precision, as it requires knowledge of $M_s r^2$ and of d to relatively high accuracy. Here, we present a method which does not require information about $M_s r^2$, and is only weakly dependent upon d .

For $l \gg l_d$ the hyperbolic tangent in Eq. (1) is almost 1 and we can take

$$H_{\text{sat}}^{\text{ip}}(l) = -\frac{1}{2}M_s r^2 a(d)l + [h_k - \frac{1}{2}M_s r^2 b(d)], \quad (7)$$

where $h_k(l) \approx h_k = \text{const}$, that is the anisotropy field is independent of the wire length. We can easily put Eq. (7) in the form

$$H_{\text{sat}}^{\text{ip}}(l) = -Al + B. \quad (8)$$

and find from Eqs. (7) and (8)

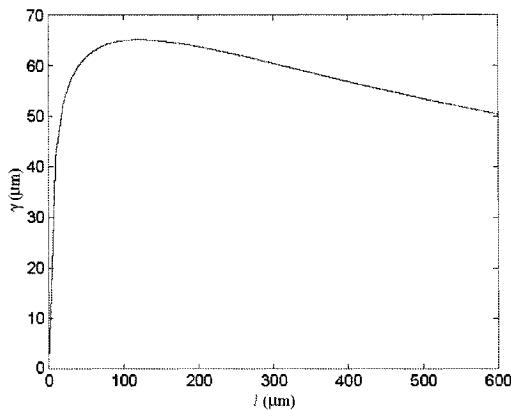
$$h_k = B + A\gamma(d), \quad (9)$$

where

$$\gamma(d) = \frac{b(d)}{a(d)} = \frac{1}{c_0} \frac{c_1 d^2 + c_2 d}{c_3 d^3 + c_4 d^2 + c_5 d + 1}. \quad (10)$$

Coefficients A and B are determined from experimental in-plane magnetization loops at different values of l , so that the anisotropy field h_k for the individual nanowires can be calculated from Eqs. (9) and (10).

In Fig. 2, we show $\gamma(d)$ for the range of interest. Because the interaction field in large nanowire arrays is weakly influenced by the arrangement of the wires [2], it seems that γ can be used for all types of templates. Furthermore, for spacings between 150 and 500 nm, it varies by only 3% for each 100 nm. That is, we can use Eq. (9) to estimate h_k with an error in d up to 100 nm if we accept an uncertainty in γ of about 3%. For arrays

Fig. 2. The function $\gamma(d)$.

with d near the maximum in γ , this uncertainty is even smaller.

4. Experiment

We have used the method presented in the previous section to determine the effective anisotropy fields for nanowires of three compositions. In each case we have extrapolated low and high field $M(H)$ curves, which are nearly linear, to their intersection, which we take to be H_{sat} .

In the first case, we use the results of Strijkers et al. [3] in their experimental study of the major hysteresis loops of Co nanowire arrays as a function of nanowire length. The other two are our measurements for Ni and for $\text{Co}_{94}\text{Fe}_5\text{B}_1$ arrays. All of these samples were obtained by electrodeposition into commercial Whatman alumina membranes. For our samples, the nominal pore diameter was 20 nm, but SEM investigations of the membrane surface give a diameter and an average inter-wire spacing of 120 ± 43 and 238 ± 55 nm, respectively [4].

The in-plane saturation fields have been determined for the three systems, and are shown in Fig. 3 as a function of the wire length, which remains the principal source of uncertainty. The fact that all three cases yield straight lines show that h_k is either independent of l , as we have assumed, or

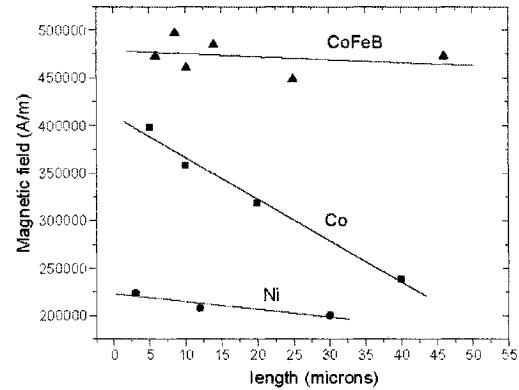


Fig. 3. Experimental length dependence of the in-plane saturation field (points) and the corresponding regression lines (full lines) for three ferromagnetic nanowire arrays.

Table 1

The equivalent anisotropy field for an individual nanowire as calculated with Eq. (9) and experimental $M_s/2$ for each sample

| Composition | $h_k \pm \Delta h_k (\times 10^6 \text{ A/m})$ | $M_s/2 (\times 10^6 \text{ A/m})$ |
|---------------------------------------|--|-----------------------------------|
| Co | 0.671 ± 0.009 | 0.69 ± 0.02 |
| Ni | 0.274 ± 0.001 | 0.24 ± 0.03 |
| $\text{Co}_{94}\text{Fe}_5\text{B}_1$ | 0.497 ± 0.015 | 0.60 ± 0.15 |

varies linearly, which is highly unlikely for large values of l . For each sample, we have calculated A and B in the least-squares sense and evaluated h_k using Eq. (9). The results are presented in Table 1.

For Co and Ni, the magnetization is well established from other measurements. In both cases, we see that the effective anisotropy field is very close to $M_s/2$, that is the effective anisotropy arises principally from the demagnetizing field. Any intrinsic anisotropies due to magnetocrystalline or magnetostriction effects are too small to be distinguished. For the CoFeB alloy, we do not know M_s a priori. The value which we obtain is smaller than the saturation magnetization of Co, as expected, and is again consistent with a determination [4] using the method of Ref. [2]. For closely spaced wire arrays, the behavior at high fields, that is, near saturation and above, is dominated by magnetostatic effects.

ARTICLE IN PRESS

L. Clime et al. / Journal of Magnetism and Magnetic Materials ■ (■■■) ■■■

5

5. Conclusions

We have presented a phenomenological model for the interaction field in large and uniformly magnetized ferromagnetic nanowire arrays. The coefficients of this model were evaluated using numerical simulations of arrays with an inter-wire spacing from 150 to 300 nm and wire lengths up to 50 μ m. This model can be used to evaluate the effective anisotropy field of individual nanowires using experimental in-plane magnetization curves of the array. The experimental results obtained on three ferromagnetic nanowire arrays are consistent with the hypothesis that $h_k \simeq M_s/2$ for all samples investigated. Understanding of the low field behavior, such as coercive forces, remanent

magnetizations and first-order reversal curves will require more elaborate models.

References

- [1] D.R. Fredkin, T.R. Koehler, IEEE Trans. Mag. 26 (1990) 415.
- [2] L. Clime, P. Ciureanu, A. Yelon, J. Magn. Magn. Mater., in press.
- [3] G.J. Strijkers, J.H.J. Dalderop, M.A.A. Broeksteeg, H.J.M. Swagten, J. Appl. Phys. 86 (1999) 5141.
- [4] M. Ciureanu, M. Beron, L. Clime, P. Ciureanu, A. Yelon, T.A. Ovari, R.W. Cochrane, F. Normandin, T. Veres, Electrochim. Acta, in press.
- [5] M. Beleggia, S. Tandon, Y. Zhu, M. De Graef, J. Magn. Magn. Mater. 278 (2004) 270.

Annexe 3

Algorithme de calcul basé sur la méthode de Shepard pour les diagrammes FORC

Journal of Optoelectronics and Advanced Materials 6, 1005 (2004)

Liviu Clime, Alexandru Stancu, Petru Ciureanu et Arthur Yelon

Résumé

Dans cet article on propose une nouvelle stratégie d'identification des distributions dans les modèles de type Preisach. La dérivée seconde des courbes de renversement du premier ordre (FORC) est évaluée après une interpolation dans les sens des plus petits carrés. Le principal avantage de cette méthode est qu'on peut utiliser des maillages irréguliers sur les deux directions du plan Preisach. En outre, la précision du diagramme FORC obtenue avec cet algorithme sur des données affectées par erreurs de mesure est meilleure par rapport aux algorithmes déjà existants.

First Order Reversal Curves diagram deduced by a Shepard method for bivariate interpolation of scattered data

Liviu Clime^{a),1}, Alexandru Stancu^{b)}, Petru Ciureanu^{a)} and Arthur Yelon^{a)}

^{a)} École Polytechnique Montréal, Département de génie physique et
Regroupement québécois sur les matériaux de pointe (RQMP)
CP 6079, succursale Centre-ville, Montréal, Québec, H3C 3A7, Canada

^{b)} Alexandru Ioan Cuza" University, Faculty of Physics
Blvd. Carol I, 11, Iasi, 700506, Romania

Abstract. A new strategy for identifying the distributions of Preisach-type models is described in this paper. The mixed second derivative of the First Order Reversal Curves (FORC) is evaluated after an interpolation in the weighted least-squares sense. The main advantages of this strategy are that it can deal with FORC curves on fully irregular grids. When the experimental errors are important, the weighted least-squares sense of this method increases the precision of the FORC diagram.

Keywords. FORC, FORC diagram, Preisach model, Shepard algorithm, irregular grids.

1. INTRODUCTION

Magnetic interactions between particles are important in theoretical and experimental studies of magnetic recording media. For example, Preisach-type models can predict the noise level in such media [1] if the model parameters are appropriate. Further information about the individual magnetization processes can easily be obtained via the interaction field. The classical method used in the characterization of magnetic interactions is the δM method [2]. Accurate micromagnetic simulations of interacting Stoner-Wohlfarth particles suggest that this method is appropriate for the study of the mean interaction field [3]. However, recent studies have demonstrated that measurement of first order reversal curves (FORC) can increase the precision of interaction measurements. Such measurements permit the decoupling of the effects of mean interaction field and of interaction field variance [4], which is not possible in a δM -based method. Finally, the FORCs do not require the use of an alternating magnetic field to demagnetize the sample, as is the case in the δM method. Relatively few algorithms for obtaining the FORC diagram from a family of FORC curves have been proposed. The first of

¹ Corresponding author: liviu.clime@polymtl.ca

these, described by C. R. Pike and co-workers [4] consists of a local bivariate polynomial interpolation with six coefficients on regular field grids. Better results have been obtained on irregular field grids, based on the condition that each field step produce the same variation of magnetic moment in the major hysteresis loop [5]. Relatively recent Preisach models for strongly interacting ferromagnetic particulate systems use complex distributions [6] which are difficult to identify from a reasonable number of experiments. The FORC diagram strategy we propose here can deal with fully irregular grids and is based on a local interpolation of the FORC curves in the weighted least-squares sense, using 10-parameter polynomial functions. Using this strategy one can obtain accurate FORC diagrams with a minimal set of experimental measurements.

2. MEASUREMENT OF FORC CURVES

Each FORC curve, $\Gamma^{(i)}$, begins with saturation of the sample using a positive applied field, H_+ . The field is then ramped down to a reverse field $H_r^{(i)}$ (see Fig. 1 a)). The FORC $\Gamma^{(i)}$ consists of measurements of the magnetization $M^{(i)}$ at increasing field values $H_1^{(i)}, H_2^{(i)}, \dots, H_{N_i}^{(i)}$ back up to saturation (in the magnetization process R \rightarrow S of Fig. 1 a)).

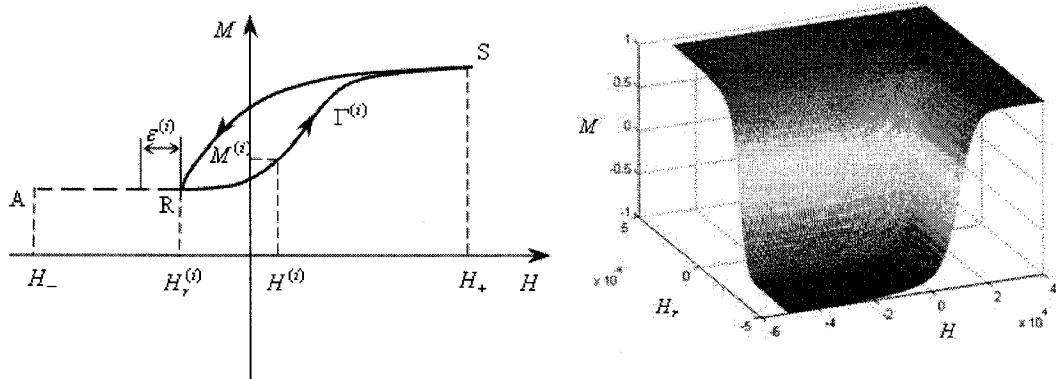


Figure 1. a) Experimental measurement of a FORC. After a positive saturation (S) the field is ramped down to the reversal field $H_r^{(i)}$ ($S \rightarrow R$). The FORC $\Gamma^{(i)}$ consists of a measurement of the magnetization $M^{(i)}$ at different increasing field values $H^{(i)}$ back up to saturation ($R \rightarrow S$); **b)** Simulated FORC curves with a Complete-Moving-Hysteresis model.

An artificial set of points corresponding to the horizontal segment AR (see Fig. 1 a) is added in order to highlight the reversible part of the FORC diagram. In order to generate these points we can use a step $\varepsilon^{(i)}$ comparable with the average field step in the real RS process. All the points from all possible $\Gamma^{(i)}$ FORCs compose a surface $M(H_r, H)$ on $[H_-, H_+] \times [H_-, H_+]$ Preisach-plane. In Fig. 1 b) we show such a surface obtained with a

Complete-Moving-Hysteresis model as presented in ref. [1]. We describe a numerical algorithm which can be employed in order to obtain the bivariate function

$$(1) \quad \rho(H_r, H) = -\frac{\partial^2 M(H_r, H)}{\partial H_r \partial H},$$

which is usually presented in a fill contour plot and named *FORC diagram*.

3. EVALUATION OF THE FORC DIAGRAM

For each node, k , of the Preisach plane we define a nodal function

$$(2) \quad f^k(H_r, H) = \sum_{j=1}^{10} c_j^k \cdot \varphi_j(H_r, H),$$

where the functions $\varphi_j \in \{1, H_r, H, H_r^2, H^2, H_r H, H_r^3, H^3, H_r^2 H, H H_r^2\}$. The nodal function f^k is obtained via a weighted least-square (WLS) method using only the first N_c neighbours of each node. If we denote by N^k the collection of first N_c neighbours of the k -node,

$$(3) \quad Q_k = \sum_{i \in N^k \cup \{k\}} w_k(H_{ri}, H_i) \left[M_i - \sum_{j=1}^{10} c_j^k \cdot \varphi_j(H_{ri}, H_i) \right]^2 \rightarrow \min$$

where w_k is a weighting function. In contrast with the Shepard method, which keeps the value M_i for the nodal function at the node k [7], we include this node in the minimization condition. The weighting functions, w_k , must be 1 at the node k , and decrease gradually around this node. We have obtained good results with gaussian weighting functions with the same standard deviation for all nodes, but even the constant function $w_k(H_r, H) = 1$ can be used instead if the magnetization variations on the FORC curves are not very steep. Decreasing the standard deviation of the weighting function can increase the local character of the interpolant and lead to a better identification of the steep regions on the FORC diagram. From Eq. (3) we obtain a linear system consisting of ten equations with c_j^k , $j = \overline{1,10}$ as unknowns:

$$(4) \quad \frac{\partial Q_k}{\partial c_j^k} = 0, \quad j = \overline{1,10}$$

With these coefficients calculated, we can now evaluate the mixed second derivative of Eq. (1) at the node k :

$$(5) \quad \rho_k = -c_6^k - 2c_9^k H_{rk} - 2c_{10}^k H_k.$$

In Fig. 2 we show the FORC diagrams obtained from the FORC curves illustrated in Fig. 1 b, using the proposed WLS algorithm (a) and the Pike method (b). The reversible part is almost nonexistent and the diagram is more spotted with numerical errors (the darkest regions of diagrams) when the second algorithm is used (Fig. 1 b).

We can highlight some features of this WLS method compared with the Pike method: a) a versatile data input; b) a better identification of the distribution; c) one can try more weight functions w_k and different values for N_c until the desired precision is reached; d) the base functions φ_j can also be replaced by other functions, for example, by cosine series functions [8].

The FORC diagram can be directly used in investigating the physical mechanisms giving rise to hysteresis in magnetic systems [4]. Moreover, for systems with zero moving parameter, we can use it like distribution function in Preisach type models. For systems with non zero moving parameter, the geometric transform of the FORC diagram into the operative plane can be used to identify the moving parameter [5]. This strategy for the identification of the moving parameter in Preisach models leads to a complete nonparametric identification procedure for this kind of model.

In order to predict different magnetization processes (which involve different regions in the Preisach plane) we need a relatively uniform distribution of the points in the Preisach plane. We can use many methods to interpolate the initial FORC diagram but if we deal with complex systems which can have complicated FORC diagrams (multiple peaks, asymmetries) or if the nodal density varies widely in the Preisach plane, a flexible method is necessary. We obtained good results with a modified Shepard algorithm with 10-parameter cosine series nodal functions [8].

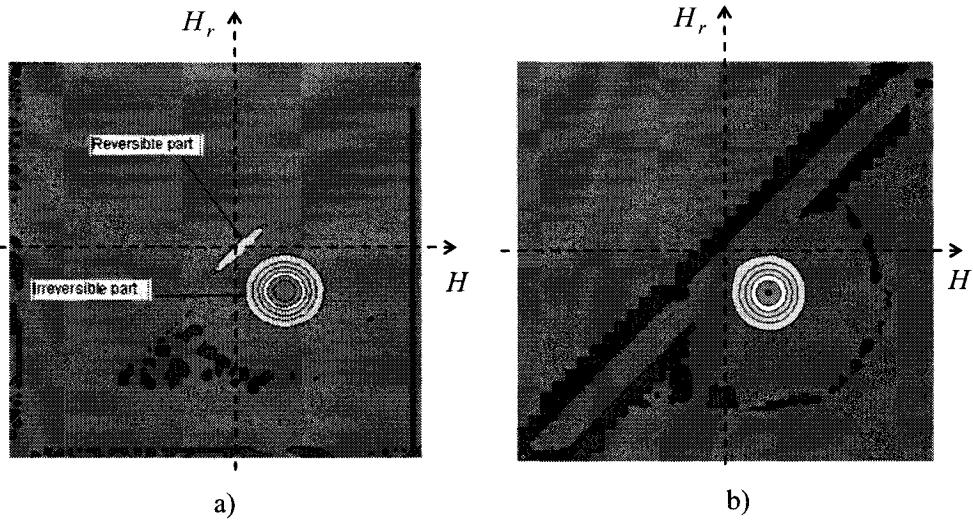


Figure 2. Calculated FORC diagram from the data of Fig. 1 b) with the weighted least-squares algorithm (a) and with a Pike-type algorithm (b). $w_k = 1$, $N_c = 28$.

4. CONCLUSIONS

In this paper, we have presented a strategy which improves the identification of FORC diagrams using a Shepard algorithm. The use of a weighted least-square method on irregular grids can significantly increase the precision of the FORC diagram without increasing the number of experiments. Varying the standard deviation of the weighting function in an appropriate manner can improve identification of the FORC diagram.

5. REFERENCES

- [1] E. Della Torre, F. Vajda, IEEE Transactions on Magnetics, **30**(1994)
- [2] Al. Stancu, P. R. Bissell, R. W. Chantrell, Journal of Applied Physics, **87**, 8645(2000)
- [3] Al. Stancu, L. Stoleriu, M. Cerchez, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, **225**, 411(2001)
- [4] C. R. Pike, A. P. Roberts, K. L. Verosub, Journal of Applied Physics, **85**, 6660(1999)
- [5] P. Postolache, M. Cerchez, L. Stoleriu, Al. Stancu, IEEE Transactions on Magnetics, **39**(2003)
- [6] Al. Stancu, L. Stoleriu, P. Postolache, M. Cerchez, CQ-04 Joint MMM-Intermag Conference, Anaheim 2004. In press in IEEE Transaction on Magnetics.
- [7] R. J. Renka, ACM Transactions on Mathematical Software, **25**, 70(1999)
- [8] R. J. Renka, ACM Transactions on Mathematical Software, **25**, 74(1999)

Annexe 4

Liste des publications de l'auteur (2003-présent)¹

- [1]* L. Clime, P. Ciureanu, A. Yelon, J. Magn. Magn. Mater. **297/1**, 60 (2006)
- [2]* L. Clime, F. Béron, P. Ciureanu, M. Ciureanu, R. W. Cochrane, A. Yelon, J. Magn. Magn. Mater. **299/2**, 487 (2006)
- [3] G. Rudkowska, L. Clime, P. Ciureanu, A. Yelon, J. Appl. Phys. **97**, 10M104 (2005)
- [4] M. Ciureanu, F. Beron, L. Clime, P. Ciureanu, A. Yelon, T. A. Ovari, R. W. Cochrane, F. Normandin, T. Veres, Electrochim. Acta **50**, 4487 (2005)
- [5]* L. Clime, A. Stancu, P. Ciureanu, A. Yelon, Journal of Optoelectronics and Advanced Materials **6**, 1005 (2004)
- [6] P. Ciureanu, G. Rudkowska, L. Clime, A. Sklyuyev, A. Yelon, Journal of Optoelectronics and Advanced Materials **6**, 905 (2004)
- [7] L. Clime, G. Rudkowska, J. G. S. Duque, A. E. P. de Araujo, M. Knobel, P. Ciureanu, A. Yelon, Physica B **343**, 410 (2003)

¹Les articles marqués avec un astérisque ont été utilisés dans la thèse.