

NOTE TO USERS

This reproduction is the best copy available.

UMI[®]

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

**PROPRIÉTÉS MAGNÉTOSTATIQUES DE RÉSEAUX DE NANOFILS
VIA LES COURBES DE RENVERSEMENT DU PREMIER ORDRE**

**FANNY BÉRON
DÉPARTEMENT DE GÉNIE PHYSIQUE
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL**

**THÈSE PRÉSENTÉE EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLÔME DE PHILOSOPHIAE DOCTOR (Ph. D.)
(GÉNIE PHYSIQUE)
OCTOBRE 2008**

© Fanny Béron, 2008.



Library and
Archives Canada

Bibliothèque et
Archives Canada

Published Heritage
Branch

Direction du
Patrimoine de l'édition

395 Wellington Street
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

395, rue Wellington
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Your file Votre référence

ISBN: 978-0-494-47714-4

Our file Notre référence

ISBN: 978-0-494-47714-4

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.

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 protègent cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

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

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

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

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

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Cette thèse intitulée :

**PROPRIÉTÉS MAGNÉTOSTATIQUES DE RÉSEAUX DE NANOFILS
VIA LES COURBES DE RENVERSEMENT DU PREMIER ORDRE**

présentée par : BÉRON, Fanny

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

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

M. Francoeur Sébastien, Ph.D., président

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

M. Ménard David, Ph.D., membre

M. Vázquez Manuel, Ph.D., membre

Je sais tout ce que je sais,
je ne sais pas tout ce que je ne sais pas,
mais surtout,
je sais que je ne sais pas tout...

Remerciements

On ne peut réaliser un projet de doctorat sans l'apport de nombreuses personnes. Mes premiers remerciements vont naturellement à mon directeur de recherche, le professeur Arthur Yelon, qui, depuis maintenant cinq ans, a su assurer la transition entre l'étudiante et la chercheuse. Je ne pourrais cependant passer sous silence l'importante contribution du professeur David Ménard dans ce processus.

Je remercie l'ensemble des membres du Laboratoire de Magnéto-Électronique, non seulement pour l'aide technique, mais aussi pour tous les bons moments passés ensemble. Plus particulièrement, je remercie Louis-Philippe Carignan, qui est passé de collègue à ami et n'a jamais refusé de me donner un coup de main, Christian Lacroix, à qui le titre de collègue s'est greffé à celui déjà existant d'ami, et mon compagnon de bureau Djamel Seddaoui, qui s'est dévoué en tant qu'interlocuteur à chaque fois qu'il fallait que j'explique un concept à quelqu'un afin de mieux le comprendre moi-même. Merci aussi à Gabriel Monette, Vincent Boucher, Élyse Adam, Luiz Melo, ainsi que tous les anciens, nouveaux arrivés et stagiaires du laboratoire, pour m'avoir accueillie si chaleureusement et l'ambiance que vous faites régner dans le lab et votre bureau.

Je tiens à souligner la collaboration de M. Liviu Clime, Mme Mariana Ciureanu et du professeur Robert Cochrane (Université de Montréal), qui ont contribué à jeter les bases de ce projet de recherche, ainsi que du professeur Georgiy Tsoi (University of Alabama at Birmingham), pour m'avoir fourni des échantillons différents.

Je me dois aussi de mentionner le soutien financier du Conseil de recherches en sciences naturelles et génie (CRSNG), ainsi que celui du Fonds québécois de la recherche sur la nature et les technologies (FQRNT).

L'ensemble de ce projet n'aurait pas la même apparence sans la précieuse contribution de Thierry Beauchemin, qui m'a supportée (dans tous les sens du terme) tout au long de mon doctorat.

Merci à tous mes amis d'exister dans ma vie. Merci à tous ceux qui m'ont proposé des activités sportives, sachant très bien que je ne pourrais refuser. Vous avez contribué à l'équilibre dont j'ai besoin pour continuer.

Finalement, je ne peux pas passer sous silence le soutien indéfectible de ma famille, peu importe mes choix. Je ne serais pas devenue la même personne que je suis aujourd'hui sans l'apport de mon père, Dr Patrick Béron. Merci pour la confiance, les discussions et les échanges. Ah oui, merci aussi pour la lecture critique de ce manuscrit...

Résumé

Les matériaux magnétiques nanostructurés se retrouvent de plus en plus intégrés dans divers dispositifs, étant donné leur versatilité et le progrès des techniques de fabrication. Selon leur géométrie, les interactions dipolaires entre les nano-entités magnétiques peuvent être très élevées et modifier considérablement le comportement magnétique de la structure entière. La connaissance des propriétés magnétostatiques individuelles des entités et du champ d'interaction perçu par chacune est donc primordiale pour pouvoir atteindre les propriétés magnétiques globales spécifiques que requiert un dispositif.

En ce sens, la technique des courbes de renversement du premier ordre (FORC) a été améliorée et utilisée pour caractériser le comportement magnétique de divers réseaux de nanofils ferromagnétiques. Tous possédaient une direction préférentielle d'aimantation selon l'axe des nanofils et un rapport longueur sur diamètre élevé (diamètre = 15 à 175 nm, longueur = 1 à 60 μm , distance inter-fil = 50 à 300 nm). L'influence du matériau et des dimensions géométriques a été étudiée à l'aide de nanofils composés uniformément de Ni, de CoFeB et de CoFe, tandis que l'influence de la structure a été étudiée en utilisant des nanofils possédant une structure multicouche, soit une alternance de nanodisques de Ni et de Cu. La technique des courbes de renversement du premier ordre est basée sur une analyse statistique du comportement magnétique de chaque entité magnétique dans un système.

La présentation des résultats provenant de la méthode FORC a été modifiée afin qu'ils représentent graphiquement l'ensemble du renversement de l'aimantation, réversible et irréversible. Pour ce faire, un indicateur de réversibilité a été défini à partir de la susceptibilité initiale des courbes de renversement du premier ordre, tandis qu'une méthode de calcul adéquate pour les processus irréversibles de faible coercivité a été mise au point. Les valeurs de coercivité FORC et de champ d'interaction global peuvent

être extraites de cette représentation graphique. Afin de pouvoir donner un sens physique à ces valeurs, le modèle sous-jacent à l'interprétation des résultats a été remplacé par un nouveau modèle, spécifiquement développé pour la caractérisation de nanostructures magnétiques.

La caractérisation de réseaux de nanofils ferromagnétiques par la technique FORC a permis de dégager plusieurs résultats et d'émettre certaines hypothèses concernant leur comportement magnétique. Les résultats concernant les nanofils uniformes soumis à un champ appliqué parallèlement à l'axe des nanofils sont cohérents avec l'hypothèse du renversement de l'aimantation des nanofils par nucléation-propagation. Avec un champ magnétique perpendiculaire, le renversement s'effectuerait plutôt par rotation cohérente vers l'axe des nanofils, lorsqu'ils sont de diamètre uniforme et relativement élevé (175 nm). Dans le cas des réseaux de nanofils multicouches, l'indicateur de réversibilité s'est avéré caractériser adéquatement l'anisotropie des réseaux. Lorsque le champ est appliqué selon l'axe des nanofils, le champ d'interaction est proportionnel à l'épaisseur des nanodisques de nickel, tandis que le renversement de l'aimantation dans la direction perpendiculaire s'effectue via un mélange de renversement cohérent et incohérent. Finalement, dans tous les cas, le champ d'interaction dipolaire n'est pas uniforme au sein du réseau, ni dans le plan, ni en hauteur.

Abstract

Nanostructured magnetic materials are increasingly integrated into various devices, given their versatility and the advance of fabrication techniques. Depending on their geometry, dipole interactions between the magnetic nano-entities can be very high and alter the magnetic behavior of the entire structure. Knowledge of the individual magnetostatic properties of the entities and of the interaction field acting on each is therefore essential if we are to achieve the specific overall magnetic properties required for devices.

In this sense, the first-order reversal curve (FORC) technique has been improved and used to characterize the magnetic behavior of various ferromagnetic nanowire arrays. All exhibited an axially preferential direction of magnetization and a high aspect ratio (diameter = 15 to 175 nm, length = 1 to 60 μm , interwire distance = 50 to 300 nm). The influence of composition and of geometrical dimensions was studied with nanowires of uniform composition of Ni, CoFeB, and CoFe, whereas the structure effect was studied by using nanowires with a multilayer structure, alternating nanodiscs of Ni and of Cu. The first-order reversal curve technique is based on a statistical analysis of the magnetic behavior of each magnetic entity in a system.

The results from the FORC method have been modified so that they graphically represent the whole reversal of the magnetization, reversible and irreversible. To do so, a reversibility indicator was defined from the initial susceptibility of the first-order reversal curves, whereas a calculation method suitable for the irreversible processes with a low coercivity has been developed. The values of FORC coercivity and global interaction field can be extracted from this graphical representation. In order to give a physical meaning to these values, a new interpretation model was specifically developed for the characterization of magnetic nanostructures.

The characterization of ferromagnetic nanowire arrays by the FORC technique yielded several results and hypotheses about their magnetic behavior. The results for uniform nanowires submitted to an applied field parallel to the axis of the nanowires are consistent with the hypothesis of a reversal of the nanowire magnetization by nucleation-propagation. With a perpendicular field, the reversal would rather be a coherent rotation toward the nanowire axis, in the case of uniform and relatively high diameter (175 nm). In the case of multilayer nanowire arrays, the reversibility indicator proved to adequately characterize the array anisotropy. When the field is applied along the axis of nanowires, the interaction field is proportional to the thickness of the nickel nanodiscs, whereas the magnetization reversal in the perpendicular direction is through a mixture of coherent and incoherent reversal. Finally, in all cases, the dipolar interaction field is not uniform within the array, neither in the plane, nor in length.

Table des matières

Dédicace	iv
Remerciements	v
Résumé	vii
Abstract	ix
Table des matières.....	xi
Liste des annexes	xiv
Liste des tableaux	xv
Liste des figures	xvi
Liste des acronymes	xx
Liste des symboles	xxi
Lexique magnétique.....	xxiv
 Introduction	 1
 Partie I: Courbes de renversement du premier ordre	 7
Chapitre 1: Revue de littérature.....	8
1.1 Concepts de base.....	8
1.1.1 Phénomènes hystérétiques	8
1.1.2 Modèle de Preisach-Krasnoselskii	10
1.1.3 Détermination de la fonction de pondération.....	14
1.1.4 Modèle classique de Preisach	16
1.2 Philosophie d'utilisation actuelle	17
 Chapitre 2: Méthodologie.....	 20
2.1 Acquisition d'un ensemble de courbes de renversement du premier ordre	20
2.2 Processus réversibles.....	22
2.2.1 Indicateur de réversibilité η	23

2.2.2 Courbes purement réversibles et irréversibles	24
2.2.3 Paramètre spécifique de réversibilité η_{SH}	26
2.3 Processus irréversibles	28
2.3.1 Fonction de distribution FORC	28
2.3.2 Diagramme FORC extrapolé	31
2.4 Présentation et caractérisation des résultats FORC	33
Chapitre 3: Interprétation des résultats FORC via le modèle d'analyse physique	35
3.1 Description du modèle	37
3.2 Simulation	40
3.3 Résultats	40
3.3.1 Hystérons identiques	41
3.3.2 Distribution d'hystérons	53
3.3.3 Coercivité de la courbe d'hystérésis majeure	56
3.3.4 Réversibilité	57
3.4 Discussion et récapitulation	58
Partie II: Réseaux de nanofils ferromagnétiques	63
Chapitre 4: Présentation générale	64
4.1 Structure	64
4.2 Dispositifs à haute fréquence	67
4.3 Fabrication des réseaux	68
4.4 Caractérisation magnétique	71
4.4.1 Magnétomètre à échantillon vibrant	71
4.4.2 Courbes d'hystérésis vectorielles	73
Chapitre 5: Réseaux de nanofils uniformes	76
5.1 Revue de littérature	76
5.1.1 Modélisation du champ d'interaction	77
5.1.2 Mécanismes de renversement de l'aimantation	78

5.2 Échantillons.....	80
5.3 Comportement axial	82
5.3.1 Mécanismes réversibles	84
5.3.2 Mécanismes irréversibles	88
5.4 Comportement transverse	96
5.4.1 Mécanismes irréversibles	96
5.4.2 Mécanismes réversibles	103
5.5 Synthèse	105
Chapitre 6: Réseaux de nanofils multicouches	106
6.1 Revue de littérature	106
6.2 Échantillons.....	107
6.3 Anisotropie.....	109
6.3.1 Mesure de l'indicateur de réversibilité.....	109
6.3.2 Modélisation des interactions dipolaires.....	110
6.4 Comportement axial	112
6.4.1 Coercivité	113
6.4.2 Champ d'interaction.....	114
6.4.3 Partie irréversible additionnelle	115
6.5 Comportement transverse	115
6.5.1 Renversement de l'aimantation.....	117
6.5.2 Coercivité	118
6.6 Synthèse	119
Conclusion.....	121
Références	130
Annexes	135

Liste des annexes

Annexe A: Modèle mobile de Preisach.....	135
A.1 Description du modèle	135
A.2 Simulation	136
A.3 Résultats	137
A.3.1 Champ d'interaction nul.....	137
A.3.2 Champ d'interaction négatif.....	139
 Annexe B: Programme de simulation pour le modèle d'analyse physique	 142
B.1 Code <i>MatLab</i>	142
 Annexe C: Distribution de longueur des nanofils non-uniforme.....	 147
C.1 Distribution de longueur des nanofils	147
C.2 Effets d'une distribution de longueur non-uniforme	149
C.3 Modèle proposé	152

Liste des tableaux

Tableau 3.1 : Points importants à regarder sur un résultat FORC et leur cause	61
Tableau 5.1 : Caractéristiques des séries d'échantillons de réseaux de nanofils uniformes.....	81
Tableau 5.2 : Valeurs de coercivité extraites selon différentes méthodes	93
Tableau 5.3 : Influence de la zone de filtration sur les valeurs d'aimantation rémanente et de coercivité dans la direction transverse	100
Tableau 6.1 : Caractéristiques géométriques des échantillons de réseaux de nanofils multicouches.....	108

Liste des figures

Figure 1 : Schéma d'un réseau de nanofils ferromagnétiques	2
Figure 1.1 : Caractéristiques d'un cycle d'hystérésis	9
Figure 1.2 : Opérateur $\hat{\gamma}_{\alpha\beta}$	11
Figure 1.3 : Interprétation géométrique du modèle de Preisach-Krasnoselskii	12
Figure 1.4 : Mécanisme de création de l'interface $L(t)$	13
Figure 1.5 : Condition de congruence pour un système hystérétique	14
Figure 1.6 : Courbe de renversement du premier ordre	15
Figure 1.7 : Région des hystérons s'étant renversés entre $u = \beta$ et $u = \alpha$ sur la courbe de renversement du premier ordre	16
Figure 1.8 : Hystéron mathématique du modèle classique de Preisach	17
Figure 2.1 : Ensemble de courbes de renversement du premier ordre	21
Figure 2.2 : Calcul de l'indicateur de réversibilité η en fonction du champ	23
Figure 2.3 : Séparation en courbes purement réversible et irréversible.....	25
Figure 2.4 : Cas présentant une hystérésis dans la courbe réversible	26
Figure 2.5 : Types d'hystéron du système considéré	26
Figure 2.6 : Géométrie des courbes de renversement du premier ordre pour le système considéré	27
Figure 2.7 : Paramètre spécifique de réversibilité η_{SH} en fonction du champ	28
Figure 2.8 : Diagramme FORC	30
Figure 2.9 : Diagrammes FORC (a) tronqué (b) étendu et (c) extrapolé	31
Figure 2.10 : Résultat FORC représentant les paramètres H_c^{FORC} et ΔH_u	34
Figure 3.1 : Formes des entités magnétiques et hystérons de base associés.....	38
Figure 3.2 : Représentation schématique d'un champ d'interaction moyen.....	39

Figure 3.3 : Résultats FORC simulés pour des hystérons fondamentaux soumis à un champ d'interaction externe.....	41
Figure 3.4 : Résultats FORC simulés pour des hystérons faciles identiques soumis à un champ d'interaction externe.....	43
Figure 3.5 : Résultats FORC simulés pour des hystérons difficiles identiques soumis à un champ d'interaction externe.....	45
Figure 3.6 : Formation d'un super-hystéron à partir d'hystérons de base difficile et facile.....	47
Figure 3.7 : Résultats FORC simulés pour des super-hystérons soumis à un champ d'interaction externe	48
Figure 3.8 : Zoom sur les courbes de renversement du premier ordre, montrant les changements de la partie irréversible induits par les super-hystérons soumis à un champ d'interaction négatif.....	50
Figure 3.9 : Modèle de Stoner-Wohlfarth.....	51
Figure 3.10 : Résultats FORC simulés pour des hystérons Stoner-Wohlfarth soumis à un champ d'interaction externe	52
Figure 3.11 : Résultats FORC simulés pour des hystérons ayant une distribution gaussienne de champ de saturation et soumis à un champ d'interaction externe.	54
Figure 3.12 : Évolution de la différence $k_{intra}(\text{facile}) - H_c^{Hyst}$ pour un super-hystéron ..	57
Figure 3.13 : Courbes de réversibilité en fonction du champ pour des hystérons simulés.....	58
Figure 3.14 : Récapitulation du comportement des distributions FORC selon les paramètres k_{intra} et k_{inter}	60
 Figure 4.1 : Schéma d'un nanofil.....	 65
Figure 4.2 : Comportement théorique d'un nanofil individuel	66
Figure 4.3 : Réseau de nanofils.....	67
Figure 4.4 : Schéma d'un circulateur à trois ports à base de réseaux de nanofils ferromagnétiques	68
Figure 4.5 : Schéma d'une cellule électrolytique pour l'électrodéposition	69
Figure 4.6 : Influx électrique lors de l'électrodéposition.....	70
Figure 4.7 : Membrane Anodisc™ 0.02 μm	71
Figure 4.8 : Magnétomètre à échantillon vibrant	72

Figure 4.9 : Décomposition du vecteur aimantation M en composantes parallèle (M_x) et transverse (M_y).	73
Figure 4.10 : Configurations possibles pour des courbes d'hystérésis vectorielles de réseaux de nanofils	74
Figure 4.11 : Courbes d'hystérésis vectorielles typiques d'un réseau de nanofils	75
Figure 5.1 : Variation du champ d'interaction à la saturation selon la hauteur dans un nanofil	78
Figure 5.2 : Représentation schématique du renversement de l'aimantation d'un nanofil par nucléation et propagation d'une paroi de domaine	79
Figure 5.3 : État rémanent transverse d'un nanofil isolé	80
Figure 5.4 : Résultat FORC axial typique de chaque série d'échantillons	83
Figure 5.5 : Comparaison des résultats FORC obtenus par le modèle d'analyse physique concernant le mécanisme de renversement de l'aimantation axiale.	84
Figure 5.6 : Séparation de la courbe d'hystérésis totale en courbes purement réversible et irréversible.....	85
Figure 5.7 : Tests de l'influence de divers paramètres sur la proportion de réversibilité	87
Figure 5.8 : Mécanismes réversibles possibles de renversement de l'aimantation.....	88
Figure 5.9 : Sections transversales de la distribution irréversible parallèle à l'axe H_u ..	89
Figure 5.10 : Comparaison des résultats FORC obtenus par le modèle d'analyse physique concernant la distribution spatiale de champ d'interaction dans le réseau de nanofils	90
Figure 5.11 : Variation de la position en H_c du maximum de la distribution irréversible par rapport à H_c^{FORC} en fonction de H_u	91
Figure 5.12 : Comparaison des résultats FORC obtenus par le modèle d'analyse physique concernant la distribution spatiale de champ d'interaction le long des nanofils.....	92
Figure 5.13 : Résultat FORC axial dont l'échelle de ρ_{FORC} a été ajustée afin de mettre en évidence la distribution irréversible additionnelle	94
Figure 5.14 : Approches à la saturation dépendantes de la quantité de nanofils contenant des parois de domaine	95
Figure 5.15 : Courbes d'hystérésis majeures transverses typiques des réseaux de nanofils uniformes	96
Figure 5.16 : Résultat FORC transverse typique de chaque série d'échantillons.....	97

Figure 5.17 : Aimantation rémanente en fonction de (a) longueur (b) inverse de la longueur	98
Figure 5.18 : Représentation schématique de la signification physique des paramètres A et B de l'équation (5.2).	98
Figure 5.19 : Vue de dessous d'une membrane commerciale d'alumine contenant des nanofils de Ni dont la zone de filtration a été complètement enlevée par polissage	99
Figure 5.20 : Zoom des courbes d'hystérésis majeures transverses mesurées avec et sans la zone de filtration	100
Figure 5.21 : Résultats FORC transverses sans la zone de filtration	101
Figure 5.22 : Effet du champ d'interaction positif sur les courbes d'hystérésis transverses	103
Figure 5.23 : Comparaison entre les courbes d'hystérésis transverses expérimentales et simulées à l'aide d'hystérons Stoner-Wohlfarth	104
 Figure 6.1 : Nanofil multicouche	 108
Figure 6.2 : Indicateur de réversibilité η pour les réseaux multicouches	109
Figure 6.3 : Provenance des champs d'interaction dans les réseaux de nanofils multicouches	110
Figure 6.4 : Résultats de la modélisation des interactions dipolaires dans les réseaux de nanofils multicouches en fonction du ratio des épaisseurs	111
Figure 6.5 : Résultats FORC de réseaux de nanofils multicouches (direction axiale).	112
Figure 6.6 : Coercivité en fonction du ratio des épaisseurs (direction axiale).....	113
Figure 6.7 : Champ d'interaction global ΔH_i en fonction de l'épaisseur des couches de Ni.....	114
Figure 6.8 : Résultats FORC de réseaux de nanofils multicouches (direction transverse).....	116
Figure 6.9 : Indicateur de réversibilité en fonction du champ magnétique pour Ni ₂₀ /Cu ₁₀	118
Figure 6.10 : Coercivité en fonction du ratio des épaisseurs (direction transverse)	119

Listes des acronymes

Acronyme	Signification
bcc	Cubique centré (<i>body-centered cubic</i>)
FMR	Résonance ferromagnétique (<i>Ferromagnetic Resonance</i>)
FORC	Courbe de renversement du premier ordre (<i>First-Order Reversal Curve</i>)
GMR	Magnétorésistance géante (<i>Giant Magnetoresistance</i>)
MFM	Microscopie à force magnétique (<i>Magnetic Force Microscopy</i>)
SQUID	<i>Superconducting Quantum Interference Device</i>
VSM	Magnétomètre à échantillon vibrant (<i>Vibrating Sample Magnetometer</i>)

Listes des symboles

Symbole	Signification
α, β	Valeurs d'entrée pour lesquelles l'opérateur $\hat{\gamma}_{\alpha\beta}$ change d'état
$\hat{\gamma}_{\alpha\beta}$	Opérateur
$\hat{\Gamma}$	Opérateur d'hystérésis
δM	Méthode de caractérisation des interactions
ΔH	Intervalle entre deux mesures de champ
ΔH_r	Intervalle entre deux mesures de champ de renversement
ΔH_u	Champ d'interaction global
η	Indicateur de réversibilité
η_{SH}	Paramètre spécifique de réversibilité
θ	Angle entre le champ et l'anisotropie uniaxiale
$\mu(\alpha, \beta)$	Fonction de pondération des opérateurs $\hat{\gamma}_{\alpha\beta}$
μ, σ	Valeur moyenne et variance de k_{intra}
ρ_{FORC}	Fonction de distribution FORC
$\Phi(t)$	Flux magnétique
χ_{FORC}	Susceptibilité initiale de la courbe de renversement du premier ordre
χ_{Hyst}	Susceptibilité de la courbe d'hystérésis majeure

Symbole	Signification
A	Longueur de l'aimantation bloquée vers la saturation
B	Proportion indépendante de la longueur de l'aimantation bloquée vers la saturation
d	Diamètre des nanofils
D	Distance inter-fil
$D_{\vec{H}_c}$	Dérivée directionnelle selon la direction de l'axe H_c
f	Valeur de sortie
H	Champ magnétique
H_{appl}	Champ magnétique appliqué
H_c	Axe de coercivité
H_c^{FORC}	Coercivité FORC
H_c^{Hyst}	Coercivité sur la courbe d'hystérésis majeure
H_{eff}	Champ effectif
H_{int}	Champ d'interaction
H_k	Champ d'anisotropie
H_{min}, H_{max}	Extrémités du résultat FORC
H_r	Champ de renversement
H_{sat}	Champ de saturation
H_{tot}	Champ magnétique total
H_u	Axe de champ d'interaction
H_x	Champ magnétique appliqué

Symbole	Signification
k_{inter}	Coefficient de champ d'interaction moyen
k_{intra}	Champ de saturation des hystérons de base
L	Longueur des nanofils
$L(t)$	Interface entre les régions $S^+(t)$ et $S^-(t)$
M	Aimantation
M_{irr}	Aimantation des processus irréversibles
M_{rev}	Aimantation des processus réversibles
M_r	Aimantation rémanente
M_s	Aimantation à saturation
M_{tot}	Aimantation totale
M_x	Composante parallèle de l'aimantation
M_y	Composante transverse de l'aimantation
P	Porosité
$S^\pm(t)$	Région du plan (α, β) avec opérateurs en position ± 1
t	Temps
t_{Ni}	Épaisseur des couches de Ni
t_{Cu}	Épaisseur des couches de Cu
u	Valeur d'entrée
$V(t)$	Tension induite
x_{rev}	Pourcentage de réversibilité intrinsèque

Lexique magnétique

Terme	Signification
Anisotropie de forme	Direction préférentielle de l'aimantation due à la forme du matériau magnétique
Anisotropie magnétocristalline	Direction préférentielle de l'aimantation due à la structure cristallographique
Axe facile	Direction la plus facile à aimanter
Champ d'interaction moyen	Champ d'interaction uniforme dans tout l'échantillon et proportionnel à l'aimantation
Champ effectif	Somme des champs d'anisotropie et des champs d'interaction
Coercivité	Champ magnétique pour lequel l'aimantation est nulle
Courbe d'hystérésis	Graphique de l'aimantation en fonction du champ magnétique appliqué
Courbe d'hystérésis majeure	Courbe dont les extremums sont des points de saturation
Courbe d'hystérésis mineure	Courbe dont les extremums ne sont pas des points de saturation
Domaine magnétique	Région d'aimantation uniforme
État de désaimantation	État à champ nul pour lequel l'aimantation est nulle
Ferromagnétique	Alignement parallèle des spins
Hystéron	Courbe d'hystérésis majeure d'un phénomène hystérétique de base
Interaction d'échange	Interaction à courte portée entre les spins

Terme	Signification
Interaction dipolaire	Interaction à longue portée entre les dipôles magnétiques
Magnétorésistance	Changement de la résistance électrique selon l'orientation relative de l'aimantation
Paroi de domaine	Frontière entre les domaines magnétiques
Plage d'hystérésis	Intervalle entre les points de saturation
Rémanence	État à champ nul
Rotation cohérente	Mécanisme de renversement de l'aimantation gardant les moments magnétiques parallèles entre eux
Saturation	Point au-delà duquel l'aimantation n'augmente plus
Susceptibilité	Pente sur la courbe d'hystérésis

Introduction

Avant donc d'écrire, apprenez à penser.

- Nicolas Boileau (Art Poétique, 1674)

Tout comportement d'une foule ne peut être uniquement réduit à la somme des individus.¹ Les exemples abondent dans la nature : le banc de poissons ou l'essaim d'insectes agit comme un seul individu, mais possédant des propriétés émergentes, i.e. des propriétés qu'aucun des individus du groupe ne possèdent, mais qui apparaissent lorsque ces individus sont regroupés en un système. Cette caractéristique n'est pas seulement réservée au monde animal : par exemple, une forêt constitue un système en soi, où l'organisation spatiale et temporelle de chaque plante dépend des autres plantes. Un des éléments clé qui caractérise une foule est que les individus doivent savoir qu'ils font partie d'un ensemble.¹ En d'autres termes, il faut qu'il y ait des interactions entre les individus, à courte ou longue portée, sinon ce n'est qu'un système de plusieurs individus isolés sans propriété émergente.

Selon ces critères, le comportement magnétique de structures constituées d'entités magnétiques imbriquées dans une matrice doit être considéré comme celui d'une foule. En effet, les entités magnétiques se « parlent » entre elles via les interactions d'échange ou dipolaires, selon la distance qui les sépare. La présente étude s'intéresse plus particulièrement à une géométrie spécifique de nanostructure magnétique, soit les réseaux de nanofils ferromagnétiques (figure 1). Dans ce cas-ci, de fortes interactions dipolaires sont présentes, car la distance entre les nanofils est faible. Les réseaux étudiés sont caractérisés par un rapport longueur sur diamètre élevé (entre 30 et 350) et par un axe facile d'aimantation parallèle à l'axe des nanofils, i.e. la direction qu'il est plus facile d'aimanter. La composition des nanofils peut être uniforme ou multicouche, où chaque nanofil est constitué de nanodisques ferromagnétiques et non-magnétiques en alternance. Leurs principales applications présentement envisagées sont des dispositifs à haute fréquence², des mémoires magnétiques à haute densité³ et

des senseurs magnétiques⁴. Étant donné que la fréquence de résonance des réseaux se situe dans les gigahertz, ceux fabriqués pour ce projet sont destinés au développement de dispositifs novateurs fonctionnant à haute fréquence. Finalement, à cause de la nature ferromagnétique des matériaux employés pour fabriquer les nanofils, leur comportement est hystérétique, i.e. dépend de l'histoire de l'application du champ magnétique.

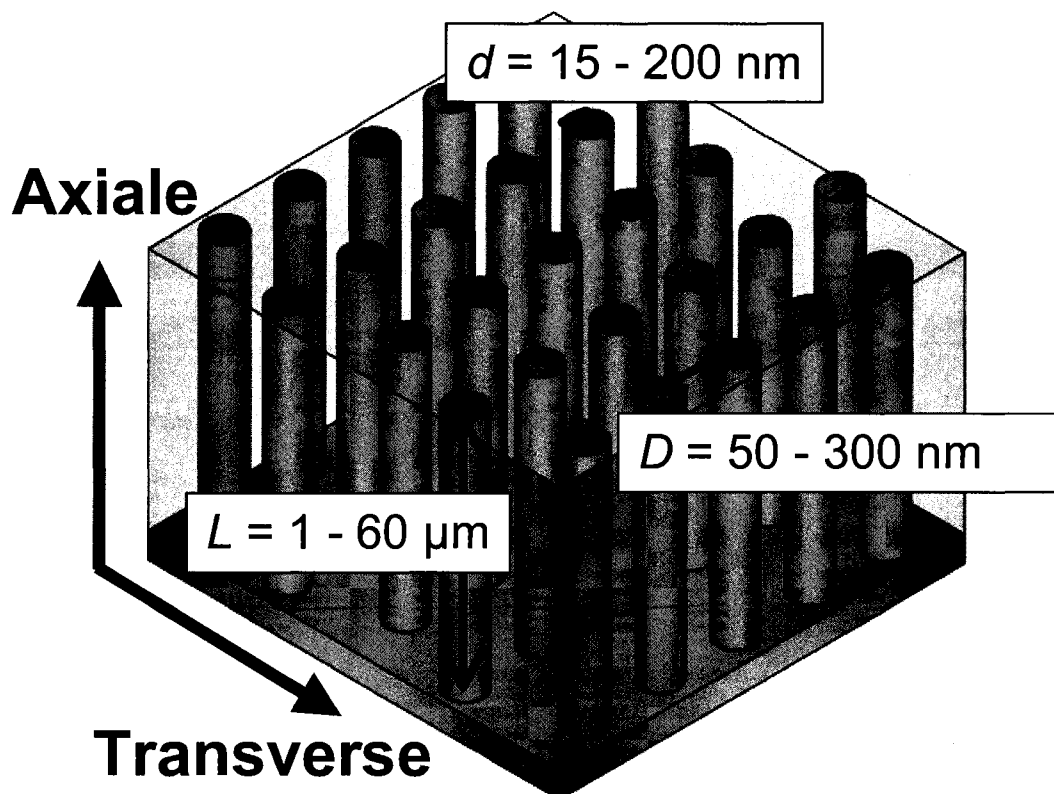


Figure 1 : Schéma d'un réseau de nanofils ferromagnétiques.
Les dimensions géométriques (diamètre d , distance inter-fil D et longueur L) sont indiquées, ainsi que les deux directions principales d'application du champ magnétique, soit axiale et transverse.

Peu importe le système, il est habituellement beaucoup plus simple d'avoir accès à son comportement global, comparativement au comportement des individus et aux moyens qu'ils utilisent pour se « parler ». Cependant, la compréhension du comportement global, pour être en mesure de le contrôler par la suite, passe obligatoirement par la connaissance des comportements individuels et de leurs interactions. Ainsi, la conception d'un dispositif à haute fréquence requiert de connaître

les relations entre les propriétés magnétiques des nanofils individuels, leurs interactions dipolaires et les paramètres géométriques des réseaux, par exemple.

La mesure de l'aimantation du réseau en fonction du champ magnétique appliqué est simple à acquérir et donne le comportement global du réseau lors du renversement de son aimantation. Ceci correspond donc à l'observation du comportement de la foule. La même mesure expérimentale mais effectuée sur un seul nanofil ou nanodisque est non seulement beaucoup plus difficile à réaliser (manipulation du nanoaimant, nécessité d'utiliser un appareil de mesure à très haute sensibilité, tel un SQUID (*Superconducting Quantum Interference Device*)), mais pourrait différer de son comportement magnétique dans le réseau, puisque l'environnement a changé. En effet, il faut se rappeler qu'un même individu agit différemment lorsqu'il est isolé et lorsqu'il se trouve dans une foule.¹

Des techniques expérimentales comme la résonance ferromagnétique (FMR)^{5,6} et la spectroscopie Mössbauer⁷ permettent de caractériser les interactions dipolaires entre les nanofils, ainsi que l'anisotropie de forme, une caractéristique des nanofils individuels. Elles sont basées sur l'absorption d'une onde électromagnétique, soit de basse énergie (micro-ondes pour la résonance ferromagnétique) ou de haute énergie (rayons gamma pour la spectroscopie Mössbauer). Ceci permet de savoir, entre autres, dans quelle direction l'échantillon s'aimante le plus facilement. Cependant, dans les deux cas, la technique ne permet pas de distinguer directement quelle proportion du champ interne de l'échantillon provient de l'anisotropie de forme et quelle proportion provient des interactions dipolaires.

La méthode δM^8 , aussi appelée Henkel modifiée, permet d'obtenir la valeur des interactions dipolaires dans un matériau. Elle nécessite uniquement un magnétomètre, mais demande de démagnétiser l'échantillon, ce qui peut modifier les résultats obtenus selon la technique de désaimantation employée.

Pour parvenir à connaître à la fois le comportement individuel des nanofils et leurs interactions, une méthode expérimentale différente et novatrice a été utilisée pour cette étude. Elle ne nécessite également que l'utilisation d'un magnétomètre, mais s'est

avérée plus précise dans l'évaluation des champs d'interactions que la méthode δM .⁹ De plus, elle permet de découpler les effets provenant d'un champ d'interaction de type moyen (uniforme dans l'ensemble de l'échantillon) d'un champ d'interaction local, tout en renseignant sur les propriétés magnétiques des nanofils individuels. La technique repose sur le principe de mettre le système dans un certain état, puis de changer l'état d'une seule entité à la fois et de répéter ce genre de mesure pour l'ensemble des états possibles du système, afin de connaître le comportement de toutes les entités. Ce type de mesure se nomme un ensemble de courbes de renversement du premier ordre (FORC, *First-Order Reversal Curves*) et leur utilisation en ce sens a été imaginée par Mayergoyz en 1985.¹⁰

Mon mémoire de maîtrise¹¹, intitulé *Propriétés magnétostatiques de nanofils ferromagnétiques et interactions dues à l'effet du réseau*, traite principalement de la fabrication des réseaux de nanofils ferromagnétiques et de l'implémentation expérimentale de cette technique de mesure avec un champ appliqué axialement. L'analyse quantitative y est limitée à l'observation de relations entre certains paramètres définis sur les résultats obtenus via la technique et les paramètres géométriques des réseaux utilisés. En effet, le principal défi rencontré lors de l'application de la méthode des courbes de renversement du premier ordre réside dans l'interprétation des résultats. Premièrement, le modèle mathématique qui sous-tend cette technique se base sur des entités mathématiques possédant uniquement deux états, soit ± 1 , ce qui n'est pas nécessairement le cas des entités magnétiques du système mesuré.¹⁰ Deuxièmement, un champ d'interaction proportionnel à l'aimantation globale induit des déformations dans les résultats.¹² Finalement, plusieurs systèmes physiques différents peuvent mener à des résultats identiques.¹³

Présentement, la technique des courbes de renversement du premier ordre est peu utilisée afin d'étudier les réseaux de nanofils ferromagnétiques. Spinu *et al.* ont été les premiers à présenter des résultats de nanofils de nickel en 2004.¹⁴ Ces nombreux avantages font en sorte qu'elle tend à se répandre de plus en plus. En effet, durant l'écriture de cette thèse, deux groupes différents ont présenté des résultats préliminaires,

également sur des réseaux de nickel.^{15, 16} Cependant, dans les trois cas, l'interprétation des résultats reste très superficielle, notamment à cause du manque de modèle d'interprétation incluant des champs d'interaction proportionnels à l'aimantation globale. Il est donc primordial de positionner l'École Polytechnique de Montréal parmi les joueurs importants dans ce domaine en plein essor. L'expertise acquise au cours des dernières années a rendu les courbes de renversement du premier ordre un outil de caractérisation couramment employé dans le Laboratoire de Magnéto-Électronique.

L'objectif général de cette étude consiste à comprendre le comportement magnétique des réseaux de nanofils ferromagnétiques. Pour ce faire, il faut donc parvenir à déterminer le comportement des nanofils individuels et les interactions dans un réseau. La voie préconisée est via le développement d'une méthode d'interprétation des courbes de renversement du premier ordre, permettant d'en extraire des informations quantitatives spécifiques au renversement de l'aimantation dans des réseaux de nanofils. Cette thèse comporte ainsi deux volets, puisqu'il a premièrement fallu développer les outils nécessaires à l'utilisation de la méthode de caractérisation. Concernant les courbes de renversement du premier ordre, les objectifs spécifiques sont :

- Développer des outils de traitement des données, afin de calculer l'information provenant des différents processus de renversement de l'aimantation :
 - Processus réversibles
 - Processus irréversibles
- Bâtir un modèle d'interprétation applicable pour des résultats expérimentaux, fondé sur les caractéristiques d'entités magnétiques de base.

Ce n'est qu'une fois ces objectifs atteints que le volet d'interprétation des résultats provenant de réseaux de nanofils a pu être commencé. Les objectifs spécifiques reliés aux réseaux de nanofils ferromagnétiques sont :

- Mesurer et calculer les résultats FORC expérimentaux de divers réseaux de nanofils, avec un champ magnétique appliqué parallèlement et perpendiculairement à l'axe des nanofils.

- Interpréter les résultats obtenus expérimentalement en termes de phénomènes physiques se produisant lors du renversement de l'aimantation.
- Caractériser quantitativement ces phénomènes afin de simuler et prédire le comportement magnétique des réseaux de nanofils.

La structure du texte suit cet ordre. L'utilisation des courbes de renversement du premier ordre comme méthode de caractérisation expérimentale de matériaux hystérétiques constitue la partie I. Le fondement mathématique des courbes de renversement du premier ordre et la philosophie actuelle d'utilisation sont présentés dans un premier temps (chapitre 1). La méthodologie à suivre concernant la mesure et les calculs est ensuite expliquée dans le chapitre 2. Puis, dans le chapitre 3, des résultats, simulés à l'aide d'un modèle développé dans le cadre de ce projet, permettent de dresser une liste des aspects importants à regarder dans un but d'interprétation en termes physiques.

La partie II, pour sa part, traite des informations obtenues par l'application spécifique de cette méthode à des réseaux de nanofils ferromagnétiques. Elle débute par une présentation générale des réseaux, de leurs avantages pour des dispositifs à haute fréquence, ainsi que leur fabrication et caractérisation expérimentale (chapitre 4). Les deux derniers chapitres présentent les résultats obtenus via les courbes de renversement du premier ordre et leur analyse, mesurées parallèlement et perpendiculairement à l'axe des nanofils, pour respectivement des nanofils uniformes (chapitre 5) et multicouches (chapitre 6).

Les résultats de cette thèse ont directement mené à la publication de cinq articles dans des revues scientifiques avec comité de lecture¹⁷⁻²⁰, ainsi que cinq présentations dans des conférences spécialisées d'envergure mondiale, trois présentations orales²¹⁻²³ et deux par affiche^{24, 25}.

Partie I

Courbes de renversement du premier ordre

*If you can't explain it to a six year old,
you don't really understand it.*

- Karl Popper

*I learned very early the difference between knowing
the name of something and knowing something.*

- Richard Feynman

Avant d'être en mesure de s'attaquer à la compréhension du comportement magnétique dans les réseaux de nanofils, il faut s'assurer d'avoir en main des outils de caractérisation ou de simulation adéquats. Ces outils étant notre seule source d'information possible, il est extrêmement important de bien les comprendre, puisqu'une erreur d'interprétation peut aisément mener à des conclusions erronées. De même, si les outils existants ne sont pas totalement appropriés pour l'étude entreprise, c'est la responsabilité du chercheur de préalablement développer les outils qu'il emploiera par la suite, afin qu'ils répondent aux besoins spécifiques de l'étude.

Dans le cas de la technique des courbes de renversement du premier ordre, l'outil principalement manquant est un modèle d'interprétation des résultats pouvant être employé pour des résultats expérimentaux provenant de nanostructures magnétiques. Sans un tel modèle d'interprétation, l'analyse des résultats demeure limitée à une interprétation qualitative et sans fondement physique.

Ainsi, les objectifs spécifiques énoncés pour le volet des courbes de renversement du premier ordre sont de développer des outils de traitement des données, afin de calculer l'information provenant des processus réversibles et irréversibles de renversement de l'aimantation, puis de bâtir un modèle d'interprétation applicable pour des résultats expérimentaux, fondé sur les caractéristiques d'entités magnétiques de base.

Chapitre 1: Revue de littérature

The aspect of the subject which has been dwelt on is that scientific progress considered historically, is not a strictly logical process, and does proceed by syllogisms. New ideas emerge dimly into intuition, come into consciousness from nobody knows where, and become the material on which mind operates, forging them gradually into consistent doctrine, which can be welded on to existing domains of knowledge. But this process is never complete: a crude connection can always be pointed to by a logician as an indication of the imperfection of human constructions.

- Joseph Larmor (préface de *Science and hypothesis* (1952), par Henri Poincaré)

Les courbes de renversement du premier ordre réfèrent à des courbes d'hystérésis dites mineures, c'est-à-dire dont les extremums ne sont pas des points de saturation. Dans notre cas, elles permettent d'obtenir les caractéristiques individuelles des nanofils, ainsi que les interactions entre eux. Un modèle mathématique pouvant décrire les courbes engendrées par les phénomènes hystérétiques, quels qu'ils soient, est premièrement présenté. Ce modèle repose sur une distribution d'opérateurs, dont la fonction de pondération peut être déterminée en mesurant les courbes de renversement du premier ordre. Dans un second temps, un aperçu de la philosophie d'utilisation actuelle des courbes de renversement du premier ordre sera donné.

1.1 Concepts de base

1.1.1 Phénomènes hystérétiques

Un phénomène est dit hystérétique lorsque, pour une même valeur de la variable d'entrée, il existe plusieurs valeurs possibles pour la variable de sortie. Dans le cas étudié ici des hystérésis « statiques », le choix de la valeur sortante ne dépend que de la séquence des valeurs d'entrée précédentes, plus précisément, des valeurs d'entrée auxquelles le sens d'application de l'entrée a été inversé. L'hystérésis est plutôt considérée comme « dynamique » lorsque la vitesse de transition entre les valeurs d'entrée modifie la valeur de sortie. La conséquence principale réside dans la division en

parcours « aller » et « retour » entre les points de saturation, selon le sens de variation de la variable d'entrée. L'ensemble de ces deux branches est appelé cycle d'hystérésis ou courbe d'hystérésis majeure, tandis que le terme plage d'hystérésis réfère à l'intervalle entre les points de saturation, i.e. où les parcours aller et retour ne sont pas superposés (figure 1.1). La rémanence représente l'état pour une valeur d'entrée nulle, tandis que la coercivité est la valeur d'entrée devant être appliquée au système afin de retrouver un signal de sortie nul. Finalement, la pente de la courbe d'hystérésis est appelée susceptibilité (χ).

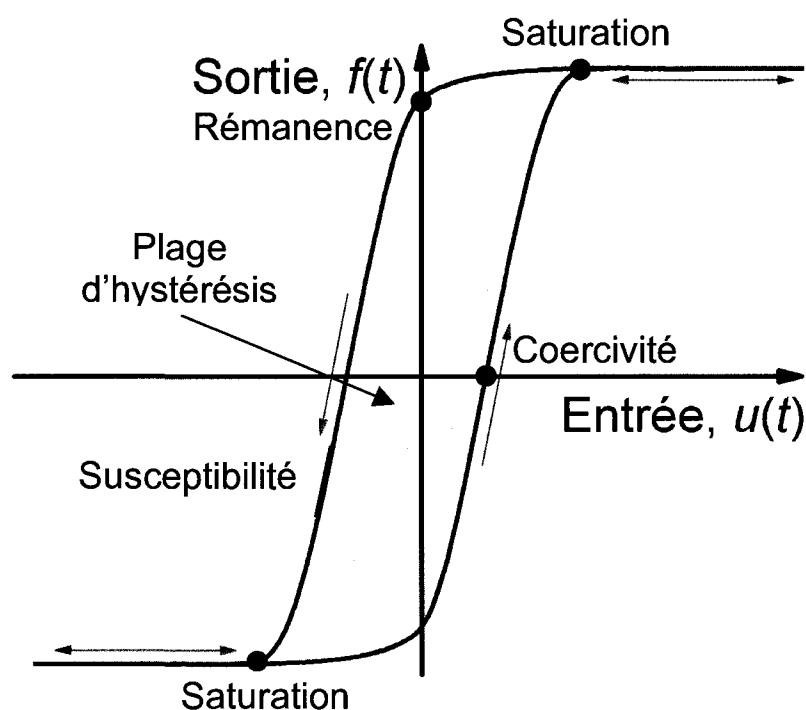


Figure 1.1 : Caractéristiques d'un cycle d'hystérésis

De manière mathématique, un phénomène hystérétique peut être décrit comme un transducteur dont la relation entre l'entrée $u(t)$ et la sortie $f(t)$ est composée de plusieurs branches, une transition de branche survenant pour chaque valeur extremum d'entrée appliquée. Un modèle mathématique d'hystérésis se doit donc de conserver en mémoire, d'une manière ou d'une autre, les extremums de valeur d'entrée qui ont été appliqués.¹⁰

La nature du phénomène physique présentant une hystérésis peut être très variée : magnétique, mécanique, optique, etc. Toutefois, de par sa nature mathématique, le modèle présenté ci-dessous et les conclusions en découlant demeurent valables peu importe le phénomène physique. Il suffit d'ajuster les variables d'entrée et de sortie avec les paramètres en cause, par exemple, le champ magnétique appliqué et l'aimantation dans le cas des matériaux magnétiques, ou la tension appliquée et la déformation engendrée pour un matériau plastique.

1.1.2 Modèle de Preisach-Krasnoselskii

Ce modèle est l'œuvre de deux scientifiques. Le premier, un physicien du nom de Preisach, proposa en 1932 un modèle scalaire de l'hystérésis, fondé sur des hypothèses concernant les différents mécanismes d'aimantation.²⁶ Ce modèle fit l'objet de plusieurs discussions et transformations au fil des années.²⁷ Trente ans plus tard, un mathématicien du nom de Krasnoselskii reprit l'idée derrière le modèle de Preisach et en dégagait un modèle mathématique d'hystérésis complètement affranchi de quelque considération physique que ce soit.²⁸

Il repose sur la base d'un ensemble infini d'opérateurs dénotés $\hat{\gamma}_{\alpha\beta}$. Chaque opérateur peut être représenté dans le plan (u, f) par un cycle d'hystérésis rectangulaire allant de +1 à -1 et se renversant en α et en β (figure 1.2). Puisque si une valeur de sortie $f(t_0)$ et les valeurs d'entrée ultérieures $u(t > t_0)$ sont données, les valeurs de sortie ultérieures $f(t > t_0)$ sont définies de manière unique, les opérateurs sont dits posséder une mémoire locale. L'opérateur d'hystérésis $\hat{\Gamma}$, pour sa part, possède une mémoire globale et est défini de la manière suivante :

$$f(t) = \hat{\Gamma}u(t) = \iint_{\alpha > \beta} \mu(\alpha, \beta) \hat{\gamma}_{\alpha\beta} u(t) d\alpha d\beta \quad (1.1)$$

où $\mu(\alpha, \beta)$ représente la fonction de pondération des opérateurs $\hat{\gamma}_{\alpha\beta}$.¹⁰

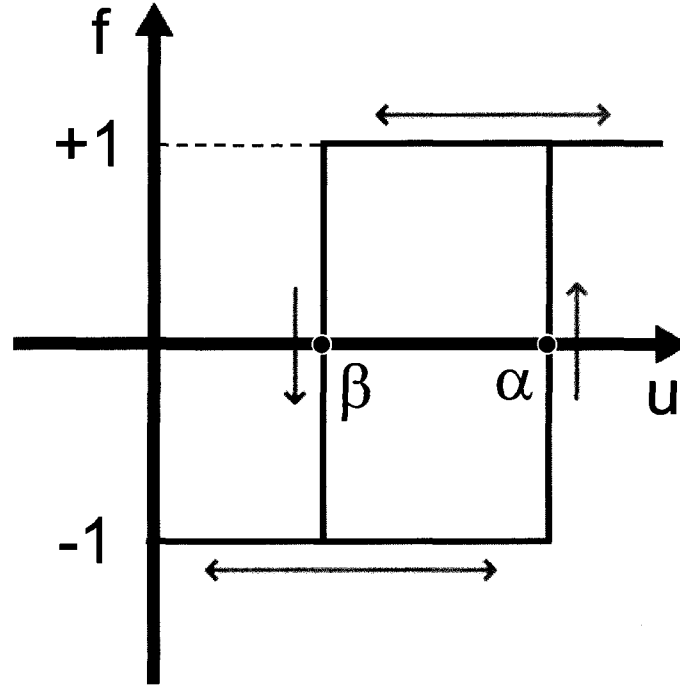


Figure 1.2 : Opérateur $\hat{\gamma}_{\alpha\beta}$

La compréhension de l'équation (1.1) peut être facilitée par une représentation géométrique dans le plan (α, β) , où chaque opérateur $\hat{\gamma}_{\alpha\beta}$ est représenté de manière unique dans la partie $\alpha \geq \beta$ (figure 1.3). Le triangle inférieur droit définit l'ensemble des opérateurs $\hat{\gamma}_{\alpha\beta}$. Pour chaque instant t , il se retrouve divisé en deux sous-régions, $S^+(t)$ et $S^-(t)$, représentant les zones où les opérateurs sont respectivement en position +1 et -1. L'équation (1.1) peut donc être vue comme la soustraction des aires respectives de $S^+(t)$ et $S^-(t)$, pondérée par $\mu(\alpha, \beta)$:

$$f(t) = \iint_{S^+(t)} \mu(\alpha, \beta) d\alpha d\beta - \iint_{S^-(t)} \mu(\alpha, \beta) d\alpha d\beta \quad (1.2)$$

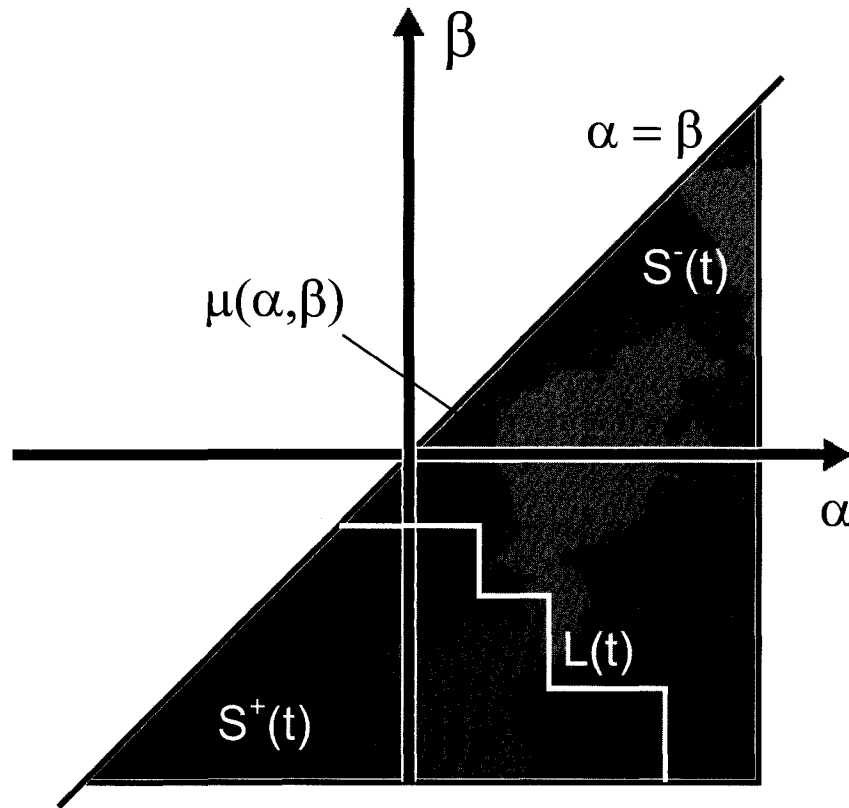


Figure 1.3 : Interprétation géométrique du modèle de Preisach-Krasnoselskii.

La fonction de pondération des opérateurs $\hat{\gamma}_{\alpha\beta}(\mu(\alpha,\beta))$ est représentée par le degré de luminosité.

Les sous-régions $S^+(t)$ (en bleu) et $S^-(t)$ (en rouge) sont séparées par l'interface $L(t)$ (en blanc).

C'est dans l'interface $L(t)$ entre les deux sous-régions que les valeurs extremums d'entrée sont conservées en mémoire. En effet, lorsque la valeur d'entrée augmente, les opérateurs qui étaient en position -1 et dont α est inférieur à la valeur finale d'entrée u ont basculé en position $+1$. Ce processus est représenté géométriquement par un déplacement vers la droite du segment horizontal de $L(t)$ attaché à la droite $\alpha = \beta$ [figure 1.4 (a)]. À l'inverse, une diminution de la valeur d'entrée va renverser des opérateurs en $+1$ si β est supérieur à la valeur finale d'entrée u , ce qui se traduit par la descente du segment vertical de $L(t)$ attaché à la droite $\alpha = \beta$ [figure 1.4 (b)].¹⁰

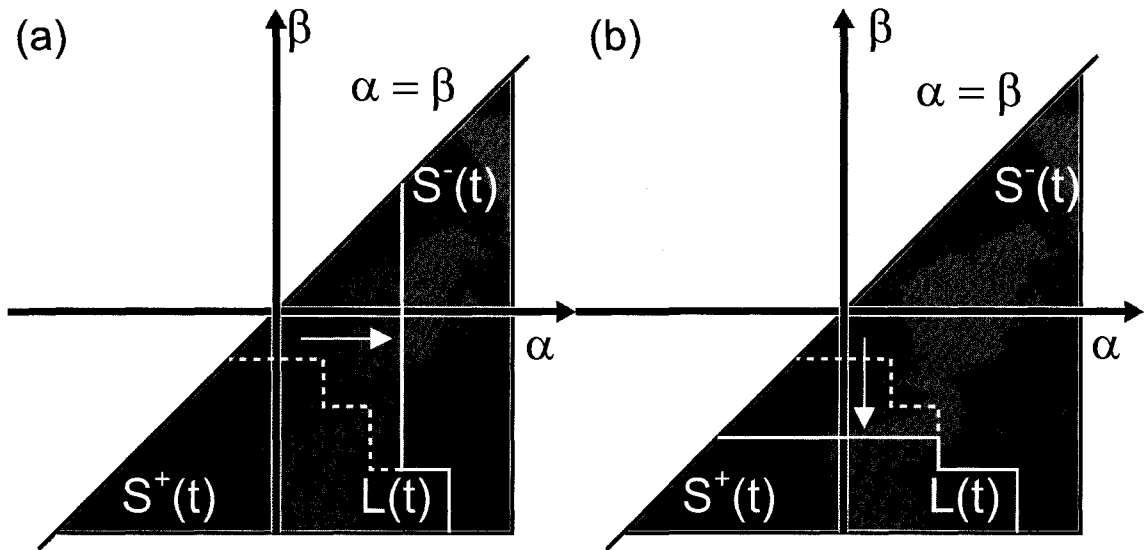


Figure 1.4 : Mécanisme de création de l'interface $L(t)$
 (a) Augmentation de u (b) Diminution de u

Ceci amène aux deux conditions nécessaires et suffisantes pour qu'un phénomène hystérétique puisse être modélisé par le modèle de Preisach-Krasnoselskii.¹⁰ La première propriété est celle dite d'effacement, puisque l'atteinte d'un extremum de valeur d'entrée va « effacer » de la mémoire les extremums inférieurs ou supérieurs, selon le sens de la variation de u . Cette condition est expérimentalement respectée pour les matériaux magnétiques. La deuxième est celle de congruence, i.e. les cycles d'hystérésis entre deux extremums identiques restent identiques (figure 1.5). Cette condition n'étant pas respectée pour la majorité des systèmes magnétiques connus, cela a mené à l'élaboration de plusieurs variantes du modèle relâchant la contrainte de congruence.²⁹

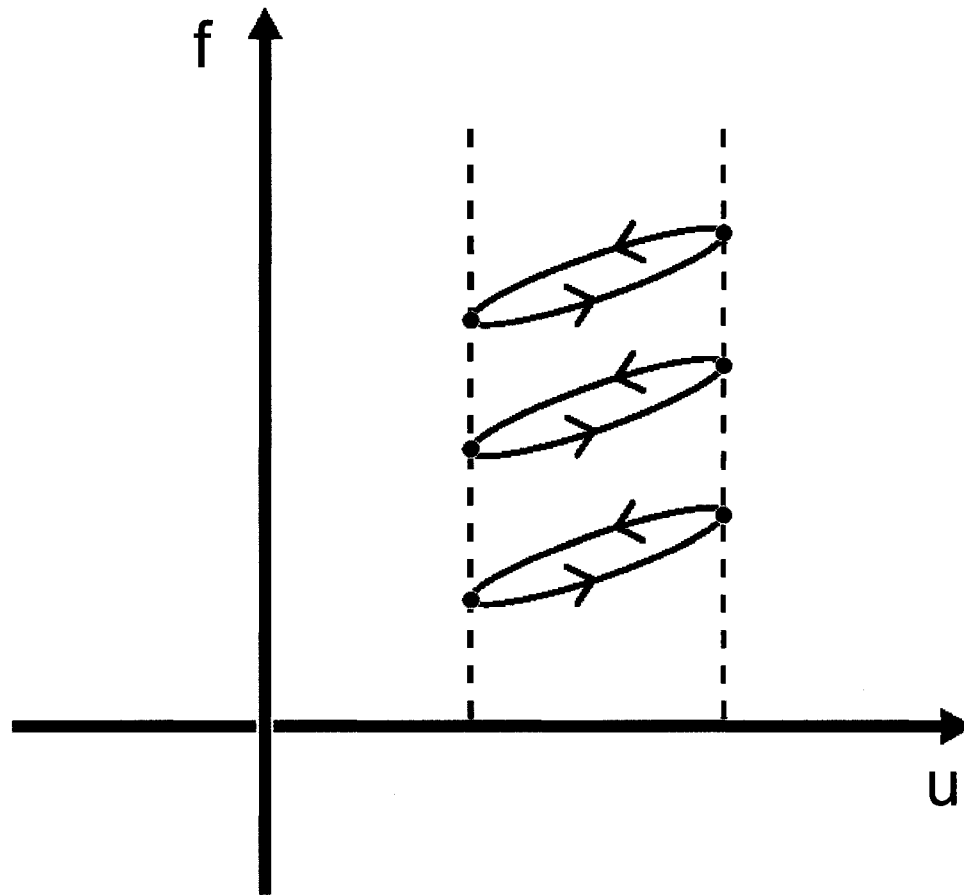


Figure 1.5 : Condition de congruence pour un système hystérétique.
Les cycles d'hystérésis entre deux extremums demeurent identiques.

1.1.3 Détermination de la fonction de pondération

En 1985, Mayergoyz proposa un moyen afin de déterminer la fonction de pondération des opérateurs $\hat{\gamma}_{\alpha\beta}$.¹⁰ L'idée sous-jacente est de créer un point de renversement dans la direction de l'application de l'entrée, afin d'obtenir deux points entre lesquels un seul opérateur s'est retourné, ce qui permet d'en déduire sa pondération. Selon l'hypothèse que le système est constitué d'un nombre fini d'opérateurs de telle sorte qu'il soit possible de les placer tous en position +1 pour une valeur d'entrée assez grande (saturation), une courbe de renversement du premier ordre est obtenue en diminuant u jusqu'à une certaine valeur β , puis en augmentant u jusqu'à la valeur initiale d'entrée, i.e. la saturation (figure 1.6).

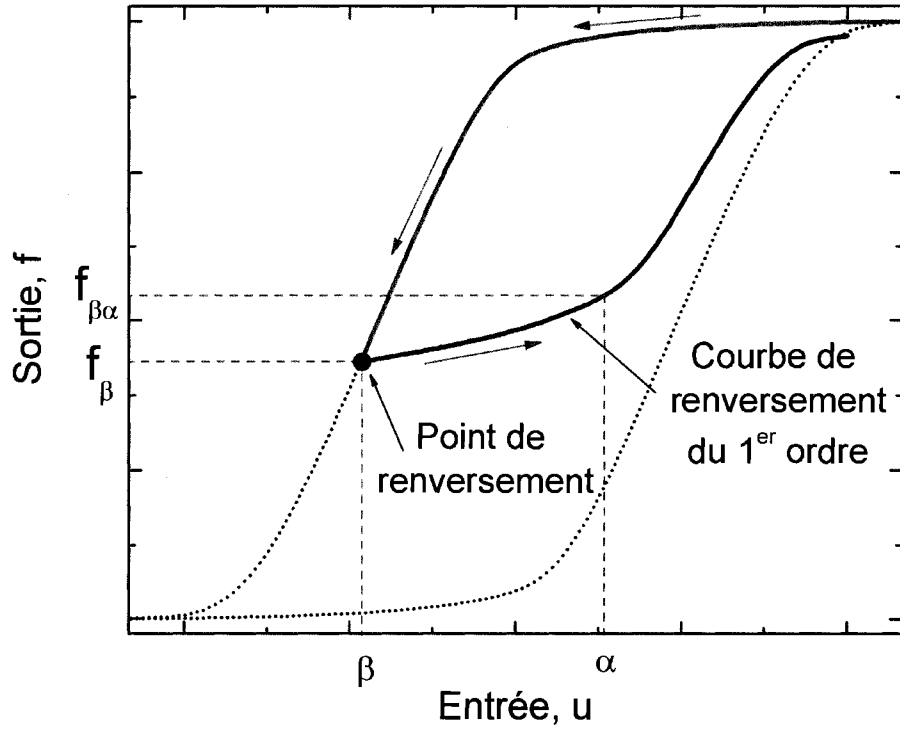


Figure 1.6 : Courbe de renversement du premier ordre.

Soit f_β et $f_{\beta\alpha}$ les valeurs de sortie respectivement en $u = \beta$ et en $u = \alpha$ sur la courbe, leur différence définit la fonction suivante :

$$F(\alpha, \beta) = f_{\beta\alpha} - f_\beta \quad (1.3)$$

ce qui, selon l'interprétation géométrique, est équivalent à (voir figure 1.7) :

$$F(\alpha, \beta) = 2 \int_\beta^\alpha \left(\int_\beta^y \mu(x, y) dx \right) dy \quad (1.4)$$

La fonction de pondération $\mu(\alpha, \beta)$ peut donc être déterminée par :

$$\mu(\alpha, \beta) = -\frac{1}{2} \frac{\partial^2 F(x, y)}{\partial x \partial y} \Big|_{x=\alpha, y=\beta} \quad (1.5)$$

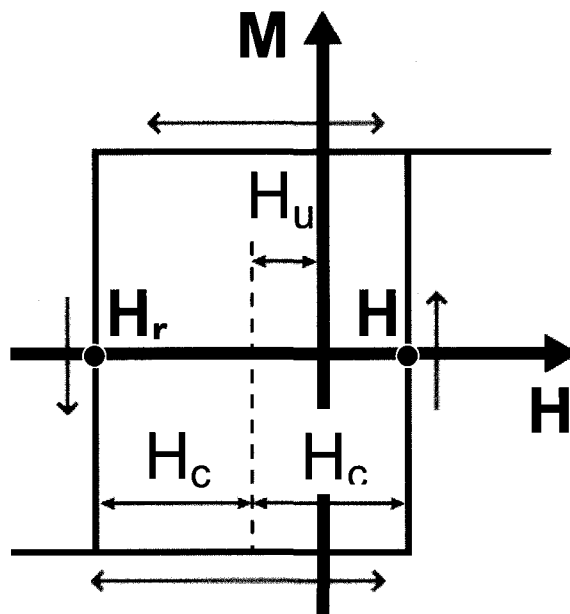


Figure 1.8 : Hystéron mathématique du modèle classique de Preisach.

L'épithète « mathématique » est accolé au terme « hystéron » afin de mettre l'emphasis sur le fait qu'ils n'ont pas nécessairement de signification physique.

1.2 Philosophie d'utilisation actuelle

Les courbes de renversement du premier ordre ont été utilisées par plusieurs groupes de recherche pour étudier différents systèmes magnétiques. Le but ici n'est point de faire une revue exhaustive de l'ensemble de ses utilisations, mais plutôt de montrer la philosophie actuellement en vigueur dans ce domaine.

Ce fut Pike qui, en récupérant l'idée de Mayergoyz de mesurer les courbes de renversement du premier ordre afin d'obtenir la fonction de pondération, fit connaître la technique de caractérisation expérimentale en 1999⁹, même si quelques groupes les avaient déjà employées, notamment sur des rubans amorphes³⁰. Elle connut un premier essor en géomagnétisme³¹⁻³⁷, où elle avait l'avantage de permettre de savoir si les échantillons géologiques étudiés contenaient plusieurs distributions de particules ferromagnétiques. Elle a été ensuite appliquée à diverses structures magnétiques : médium d'enregistrement magnétique³⁸, superposition d'une couche magnétique dure et

douce (*exchange-spring magnets*)^{39, 40}, verres de spin⁴¹, films ferroélectriques⁴², réseaux de nanopoints^{43, 44}, de nanopiliers⁴⁵ et de nanofils^{14, 17, 18, 20}, entre autres.

Cependant, la plupart de ces études ont été limitées à considérer la fonction de pondération calculée comme une signature particulière de l'échantillon étudié. En effet, pour pouvoir associer le diagramme de la fonction de pondération à la distribution statistique des caractéristiques H_c et H_u du système, il faut que le modèle de Preisach puisse le représenter. Il faut donc qu'il soit constitué d'entités magnétiques non corrélées dont le cycle d'hystérésis est rectangulaire. En termes expérimentaux, cela suppose de mesurer des particules monodomaines selon leur axe facile et assez espacées les unes des autres pour que leurs interactions dipolaires soient négligeables.

Pour tout autre type de système, c'est-à-dire la grande majorité, l'interprétation du diagramme selon le modèle classique de Preisach ne peut être faite. Une appréciation qualitative de la coercivité et de l'interaction entre les particules peut parfois être effectuée, mais seulement pour certains cas relativement simples.

En ce sens, le groupe de Stancu, en collaboration avec Andrei, a effectué au cours des dernières années un travail admirable de paramétrisation de la fonction de pondération et d'identification de paramètres pouvant servir de valeurs d'entrée dans des modèles de Preisach modifiés^{29, 46-49}.

À l'École Polytechnique de Montréal, les courbes de renversement du premier ordre ont été introduites en 2004 par Liviu Clime, un ancien étudiant du professeur Alexandru Stancu, lors de son doctorat. Au fil des années, j'ai développé une philosophie concernant ces courbes qui consiste plutôt à considérer le résultat obtenu comme une représentation de tous les états possibles du système étudié lors du renversement de son aimantation. Il peut ensuite être possible d'extraire de cette représentation des valeurs caractérisant des processus physiques, comme la coercivité moyenne des particules et le champ d'interaction en vigueur.

Les bases de la théorie pour obtenir les propriétés magnétiques des nanofils et la valeur des interactions dipolaires dans un réseau sont maintenant en place. À partir de la mesure des courbes de renversement du premier ordre d'un réseau de nanofils, il est possible de calculer la fonction de pondération des hystérons mathématiques. Le prochain chapitre traite de la méthodologie à suivre pour acquérir ces courbes, ainsi que des calculs pouvant être effectués sur les données afin d'obtenir une représentation complète des processus de renversement de l'aimantation. La manière d'interpréter cette représentation, pour en extraire des valeurs reliées à des phénomènes physiques, est présentée au chapitre 3.

Chapitre 2: Méthodologie

I believe there is no philosophical high-road in science, with epistemological signposts. No, we are in a jungle and find our way by trial and error, building our road behind us as we proceed.

- Max Born

Afin d'être en mesure d'utiliser le concept des courbes de renversement du premier ordre pour déterminer la fonction de pondération des hystérons mathématiques, quatre étapes sont requises. Il faut premièrement acquérir un ensemble de courbes de renversement du premier ordre, soit par mesure expérimentale ou par simulation. Deux fonctions mathématiques peuvent ensuite être appliquées sur cet ensemble, pour rendre compte des processus réversibles et irréversibles se produisant lors de l'hystérésis. Finalement, l'ensemble des résultats calculés précédemment peut être combiné dans une représentation graphique de la fonction de pondération des hystérons mathématiques.

La méthodologie présentée dans cette section est générale et peut être appliquée telle quelle sur tout phénomène hystérétique. Cependant, la notation employée correspond au phénomène d'hystérésis magnétique, puisque les résultats expérimentaux présentés dans la partie II proviennent de matériaux magnétiques.

2.1 Acquisition d'un ensemble de courbes de renversement du premier ordre

Une courbe de renversement du premier ordre est une courbe d'hystérésis mineure mesurée entre un champ dit de renversement (H_r) et le champ de saturation (H_{sat}) (voir figure 1.6). Ce dernier joue le rôle d'une remise à zéro de l'histoire magnétique de l'échantillon. Ainsi, même si tant la saturation positive que négative peuvent être utilisées, l'usage général privilégie la saturation positive. De plus, pour des échantillons saturant à très haut champ, il n'est pas essentiel d'atteindre la saturation complète. L'important réside dans le fait d'appliquer un champ magnétique supérieur à la fin de la partie hystérétique de la courbe.

Afin d'obtenir la fonction de pondération de l'ensemble des hystérons, il est nécessaire d'acquérir un ensemble de courbes de renversement du premier ordre, i.e. plusieurs courbes débutant à des champs de renversement différents (figure 2.1). Après une saturation positive (H_{sat}), un champ de renversement (H_r) est appliqué et un temps d'attente est imposé avant que la mesure de l'aimantation soit prise, pour s'assurer que le système est bien stabilisé. Une attente de cinq secondes s'est avérée être un bon compromis entre le temps d'acquisition et la stabilité de la mesure. L'aimantation est mesurée sur le trajet de retour jusqu'à H_{max} , avec un intervalle de ΔH Oe. Cette mesure est ensuite répétée plusieurs fois, pour des valeurs de champs de renversement distantes de ΔH_r Oe. Afin d'obtenir une représentation complète du renversement de l'aimantation, les valeurs de champ de renversement couvrent la partie hystérétique de la courbe majeure d'hystérésis (de H_{min} à H_{max}). Pour accélérer le temps d'acquisition, aucune mesure n'est donc effectuée entre H_{max} et le champ de saturation. Les courbes peuvent être acquises dans n'importe quel ordre, puisque que chacune se termine par l'application d'un champ de saturation.

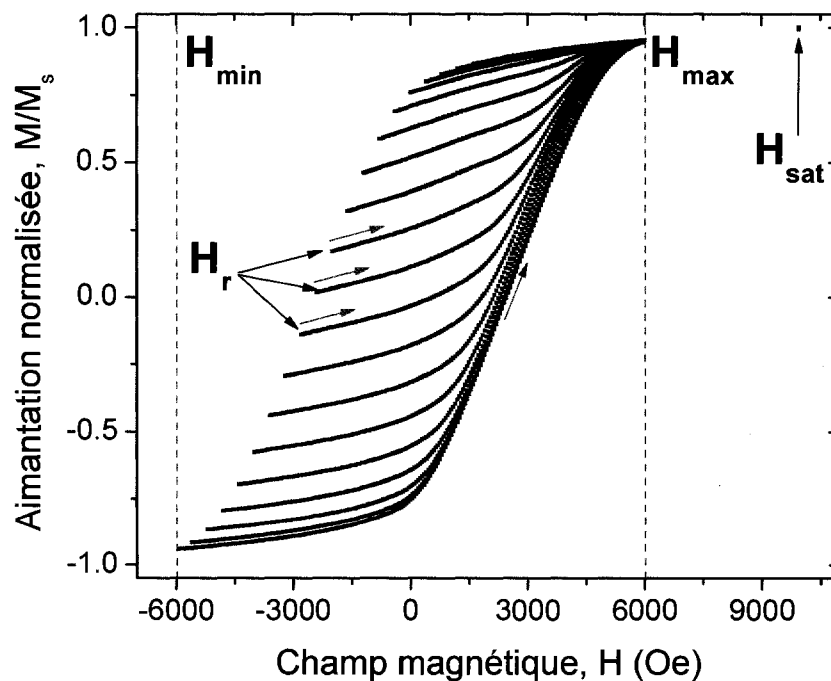


Figure 2.1 : Ensemble de courbes de renversement du premier ordre.
 Pour des raisons pratiques, seulement une courbe sur quatre est représentée. ($\Delta H_r = 100$ Oe, $\Delta H = 50$ Oe)
 (Réseau de nanofils de CoFe, $d = 15$ nm, $D = 55$ nm, $L = 1,6$ μ m, direction axiale)

La précision des résultats extraits dépend de deux paramètres fixés expérimentalement : l'écart entre deux points consécutifs sur une courbe (ΔH) et celui entre deux champs de renversement (ΔH_r). Il est préférable d'utiliser un ratio $\Delta H_r/\Delta H$ entre 1 et 2,5, afin d'obtenir une grille de points relativement uniforme dans le plan utilisé pour la représentation des résultats, soit (H, H_r) .¹¹ De petites valeurs augmentent la précision, mais augmentent aussi le nombre de mesures à acquérir et donc le temps d'acquisition. Le nombre de points totaux est donné par la relation suivante :

$$\text{Nb Points} = \frac{1}{2} \left(\frac{H_{\max} - H_{\min}}{\Delta H_r} \right) \left(\frac{H_{\max} - H_{\min}}{\Delta H} \right) + \left(\frac{H_{\max} - H_{\min}}{\Delta H_r} \right) \quad (2.1)$$

Après une première acquisition rapide d'un ensemble de courbes, avec peu de points expérimentaux, il est possible de venir augmenter localement la précision dans certaines régions d'intérêt du plan (H, H_r) , en augmentant le nombre de points mesurés dans ces zones. Un gain de temps permettant d'acquérir des mesures 5 à 10 plus rapidement peut ainsi être atteint, comparativement à une acquisition à haute précision effectuée sur l'ensemble du plan (H, H_r) .¹⁸

Le lecteur intéressé par des détails complémentaires concernant l'acquisition des courbes de renversement du premier ordre est référé au chapitre 5 de la référence [11]. À partir d'un ensemble de courbes, deux représentations peuvent être ensuite calculées, celle des processus réversibles et celle des processus irréversibles.

2.2 Processus réversibles

Lorsqu'il y a un balayage du champ magnétique d'un champ de saturation à l'autre, le renversement de l'aimantation peut se faire via des processus réversibles (sans perte d'énergie) et irréversibles (avec perte d'énergie). Les processus réversibles peuvent provenir de deux sources : 1) des entités magnétiques en soi, l'aimantation de certaines se renverse en tout ou en partie de manière réversible (nommée réversibilité intrinsèque) et 2) du système, par exemple, dû à une grande variance de champ d'interaction, des entités de faible coercivité se renversent de manière réversible (nommée réversibilité

effective). Le pourcentage de réversibilité intrinsèque (x_{rev}) réfère à la proportion des processus réversibles intrinsèques versus ceux irréversibles.

2.2.1 Indicateur de réversibilité η

La susceptibilité (pente) au début des courbes de renversement du premier ordre, i.e. à $H = H_r$ (χ_{FORC}) (figure 2.2), est influencée par la réversibilité. Étant donné que la variation du champ appliqué change de signe à H_r , l'hypothèse avancée est que, pour un retournement de l'aimantation complètement réversible, elle est égale à celle de la courbe majeure d'hystérésis (à $H = H_r$, χ_{Hyst}), tandis qu'elle est nulle pour un retournement complètement irréversible. Un indicateur de réversibilité (η) en fonction du champ appliqué peut alors être exprimé comme le ratio de ces susceptibilités :¹⁹

$$\eta(H = H_r) = \frac{\chi_{FORC}(H = H_r)}{\chi_{Hyst}(H = H_r)} \quad (2.2)$$

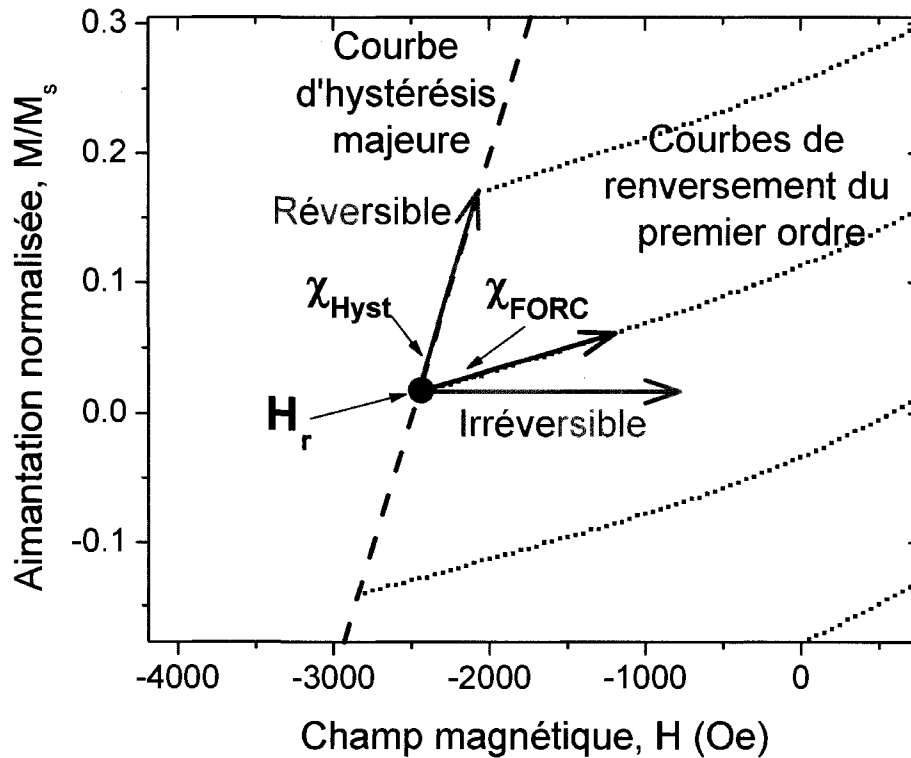


Figure 2.2 : Calcul de l'indicateur de réversibilité η en fonction du champ.
(Réseau de nanofils de CoFe, $d = 15$ nm, $D = 55$ nm, $L = 1,6$ μ m, direction axiale)

Cette méthode est générale et est sensible autant à la réversibilité intrinsèque qu'effective. Le résultat obtenu permet de comparer la proportion de réversibilité de deux échantillons, mais pas d'en obtenir une valeur exacte. Selon le système, plusieurs approches sont possibles pour extraire le pourcentage de réversibilité intrinsèque x_{rev} à partir des courbes de renversement du premier ordre.

2.2.2 Courbes purement réversibles et irréversibles

Une première approche n'est valable qu'en l'absence de champ d'interaction proportionnel à l'aimantation totale. Elle repose sur le principe de reconstruction des courbes d'hystérésis majeures des phénomènes purement réversibles et irréversibles. Premièrement, la courbe de χ_{FORC} en fonction de H_r [figure 2.3 (b)] est extraite à partir des courbes de renversement du premier ordre [figure 2.3 (a)]. La courbe d'hystérésis créée par les processus réversibles (M_{rev}) peut être reconstruite via l'intégrale de cette courbe [figure 2.3 (c)] :⁵⁰

$$M_{rev}(H) = \int_{-\infty}^H \chi_{FORC}(H_r) dH_r - 0,5 M_{rev}(\infty) \quad (2.3)$$

La courbe d'hystérésis purement irréversible (M_{irr}) correspond alors à la différence entre la courbe d'hystérésis totale (M_{tot}) et celle purement réversible [figure 2.3 (c)] :⁵⁰

$$M_{irr}(H) = M_{tot}(H) - M_{rev}(H) \quad (2.4)$$

En l'absence de réversibilité effective, le pourcentage de réversibilité intrinsèque x_{rev} correspond à la valeur de M_{rev} à la saturation. Le résultat est cependant faussé si l'échantillon n'est pas complètement saturé à la fin de la plage couverte par les courbes de renversement du premier ordre. En effet, le zéro de l'intégrale sous la courbe est déplacé par rapport à sa véritable position dans ce cas-ci.

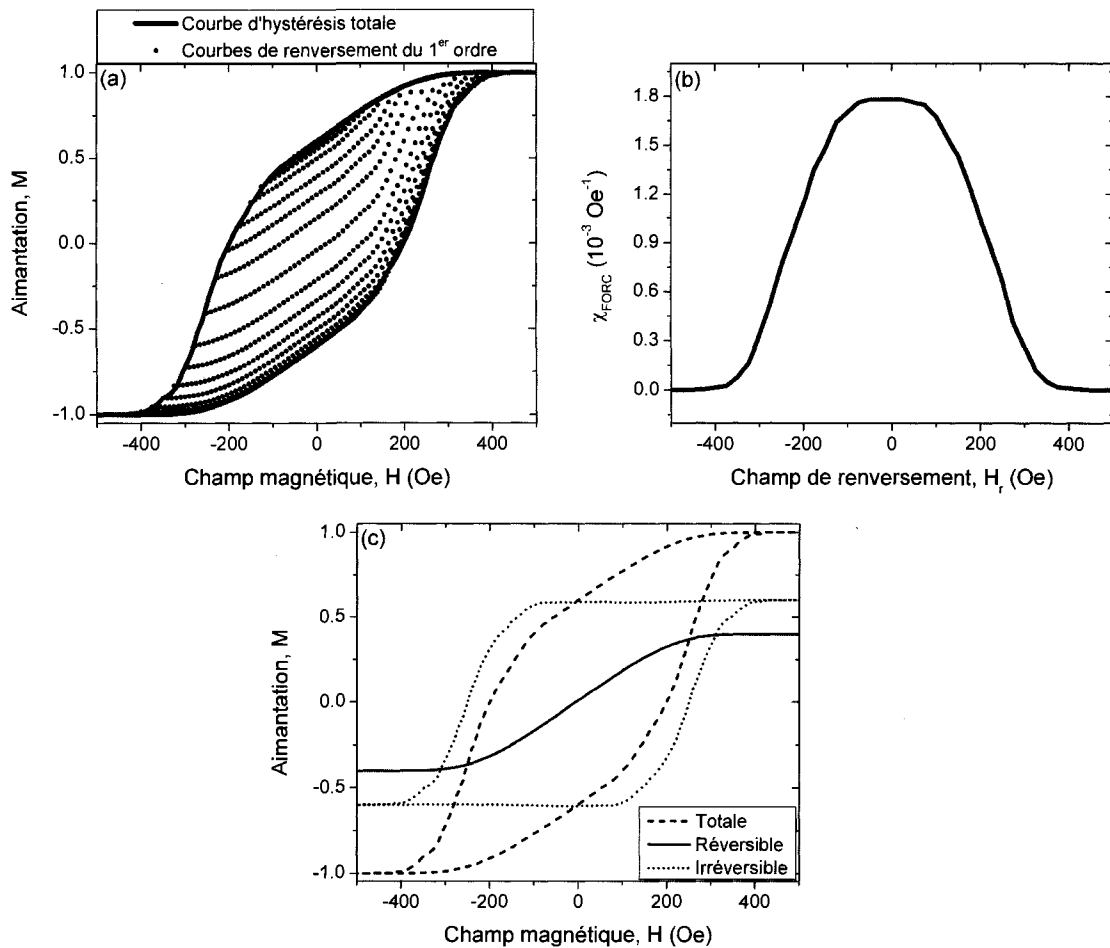


Figure 2.3 : Séparation en courbes purement réversible et irréversible
 (a) Courbe d'hystérésis totale et courbes de renversement du premier ordre
 (b) χ_{FORC} en fonction de H_r
 (c) Courbes d'hystérésis purement réversible et irréversible

Cependant, il s'est avéré que cette technique n'est pas applicable en présence d'un champ d'interaction proportionnel à l'aimantation globale, puisqu'il modifie la pente χ_{FORC} et la plage d'hystérésis. L'intégrale de χ_{FORC} en fonction de H_r ne correspond donc plus à la courbe purement réversible. Visuellement, il est possible de s'en rendre compte puisqu'elle présente une hystérésis [figure 2.4 (a)]. Une autre situation pour laquelle une hystérésis est obtenue dans la courbe purement réversible est lorsque le signe de la courbure de celle-ci diffère selon la branche parcourue [figure 2.4 (b)]. Dans ce cas, les processus de renversement de l'aimantation réversibles et irréversibles ne peuvent pas être séparés, car ce sont les mêmes spins qui exécuteront successivement les deux types de renversement.

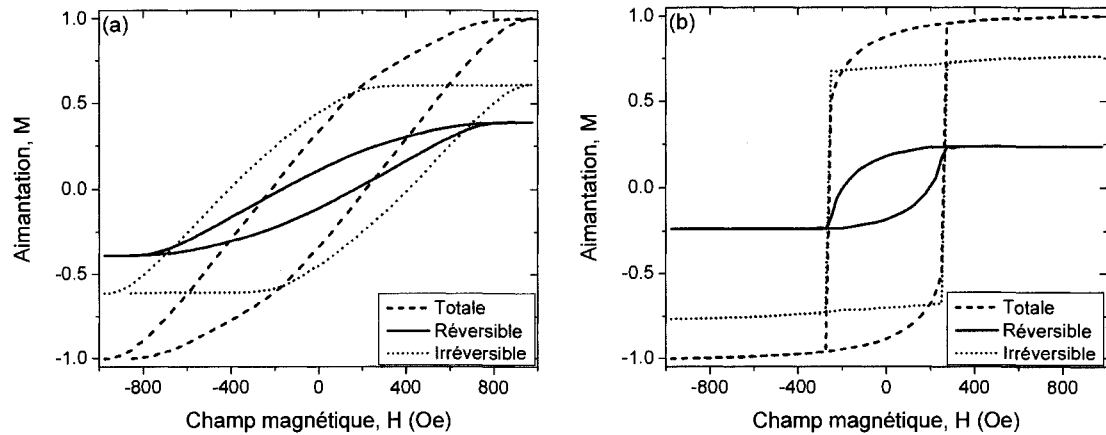


Figure 2.4 : Cas présentant une hystérésis dans la courbe réversible.
 (a) Présence d'un champ d'interaction proportionnel à l'aimantation totale ($H_{int} = -500M$)
 (b) Signe de la courbure de la courbe réversible changeant selon la branche parcourue

2.2.3 Paramètre spécifique de réversibilité η_{SH}

Pour obtenir le pourcentage de réversibilité intrinsèque x_{rev} pour un système contenant des interactions, il faut donc développer géométriquement une équation spécifique à ce système. Par exemple, soit un système composé d'hystérons irréversibles et réversibles, dont les courbes d'hystérésis sont représentées à la figure 2.5, et soumis à un champ d'interaction du type $H_{int} = k_{inter}M$, avec $k_{inter} < 0$, x_{rev} est ainsi égal à la proportion d'hystérons du type B.

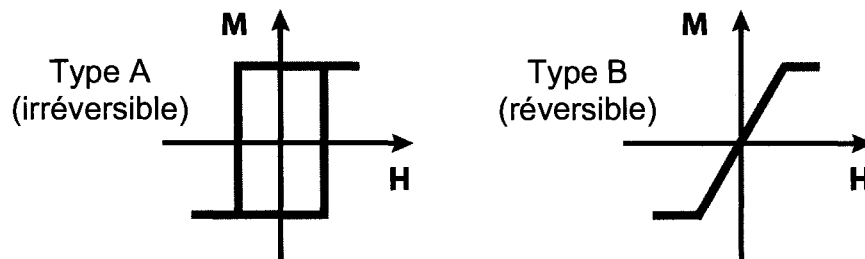


Figure 2.5 : Types d'hystéron du système considéré.
 Le champ de saturation des deux types d'hystéron est identique et vaut k_{intra} .

Dans ce cas particulier, il est possible de montrer que les susceptibilités dans la zone indiquée sont respectivement équivalentes à (figure 2.6) :

$$\chi_{FORC} = \frac{x_{rev}}{k_{intra} - x_{rev} k_{inter}} \quad (2.5)$$

$$\chi_{Hyst} = -\frac{1}{k_{inter}}$$

ce qui permet d'isoler la proportion de processus réversibles :

$$x_{rev} = \frac{\chi_{Hyst} \times \chi_{FORC} \times k_{intra}}{\chi_{Hyst} - \chi_{FORC}} \quad (2.6)$$

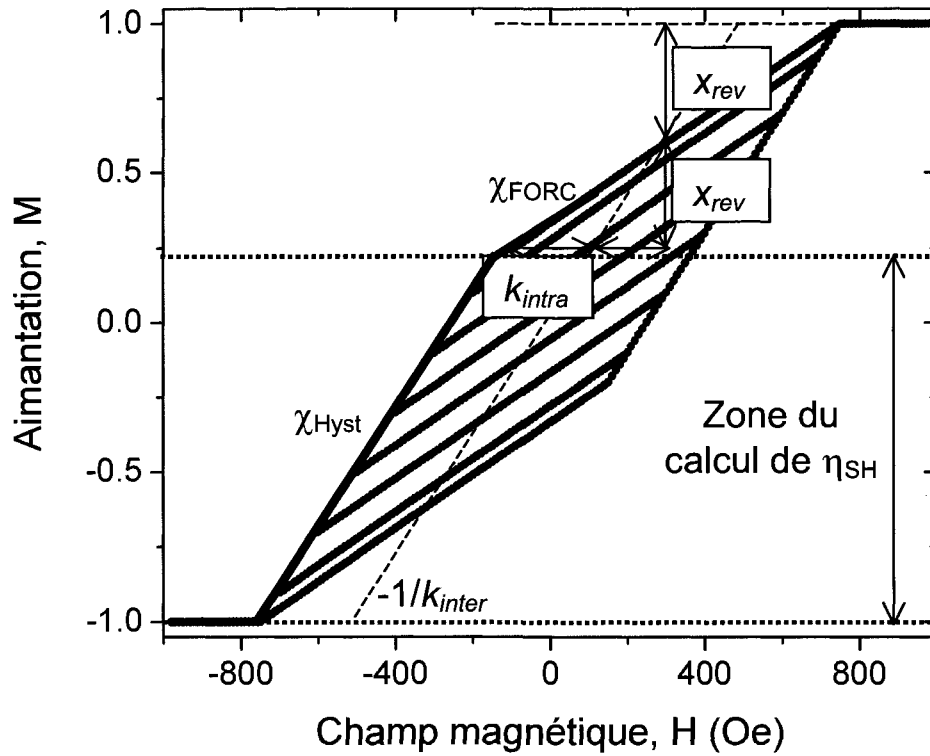


Figure 2.6 : Géométrie des courbes de renversement du premier ordre pour le système considéré.
($x_{rev} = 0,4$, $k_{intra} = 250$ Oe, $k_{inter} = -500$ Oe)

Ainsi, en calculant le paramètre de réversibilité η_{SH} en fonction du champ via l'expression suivante :

$$\eta_{SH}(H = H_r) = \frac{\chi_{Hyst}(H = H_r) \times \chi_{FORC}(H = H_r) \times k_{intra}}{\chi_{Hyst}(H = H_r) - \chi_{FORC}(H = H_r)} \quad (2.7)$$

la valeur minimum de η_{SH} correspond alors à x_{rev} (figure 2.7). Pour éviter les divisions par zéro, η_{SH} est fixé à 1 lorsque $\chi_{Hyst} = \chi_{FORC}$. Cette méthode n'est toutefois valable que lorsqu'il n'y a pas de distributions de valeurs de champs coercitifs et d'interaction, ce qui limite son application pour des courbes expérimentales.

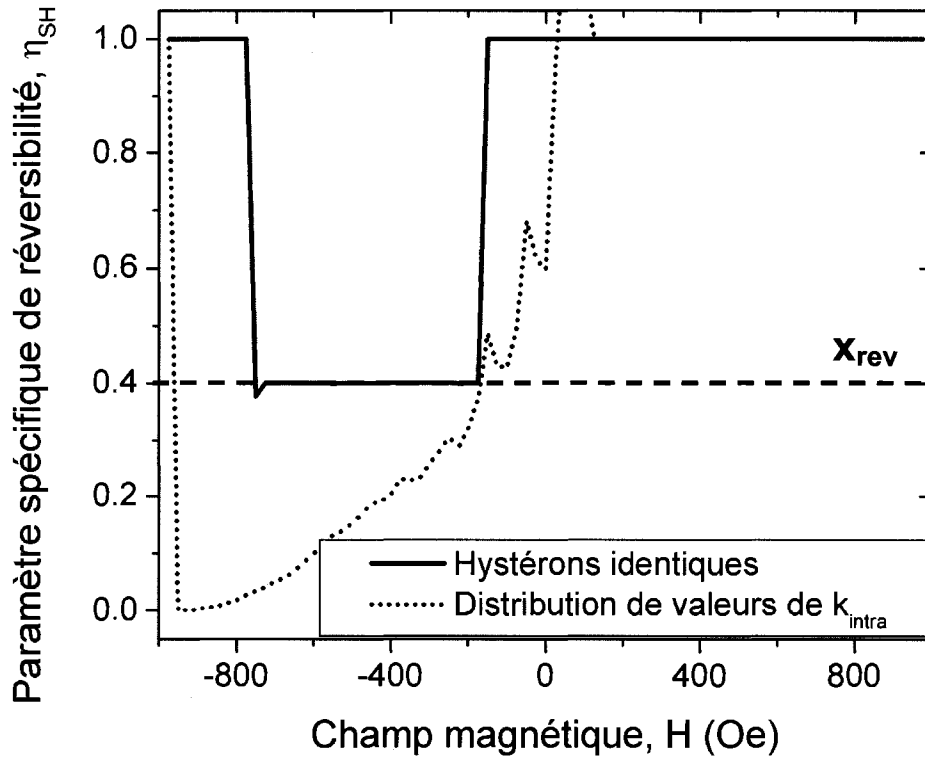


Figure 2.7 : Paramètre spécifique de réversibilité η_{SH} en fonction du champ.
($x_{rev} = 0,4$, $k_{intra} = 250$ Oe, $k_{inter} = -500$ Oe)

2.3 Processus irréversibles

2.3.1 Fonction de distribution FORC

Lorsqu'un phénomène irréversible se produit, il y a dégradation de l'énergie et ainsi une augmentation de l'entropie. Pour un matériau magnétique, ceci se traduit par une hystérésis lors de la mesure de l'aimantation en fonction du champ appliqué, c'est-à-dire que les trajets d'aller et de retour diffèrent. Cette différence dépend de la fonction de pondération μ des hystérons mathématiques, présentée à la section 1.1.4. Seuls les hystérons mathématiques irréversibles, c'est-à-dire de coercivité non nulle

($H_c > 0$, i.e. $H > H_r$) participent au phénomène d'hystérésis. La fonction générale μ mène ainsi à la fonction de distribution ρ_{FORC} , où les caractéristiques des processus de renversement de l'aimantation irréversibles sont calculées via une dérivée seconde de l'aimantation (M), en fonction de H et de H_r :⁹

$$\rho_{FORC}(H, H_r) = -\frac{1}{2} \frac{\partial^2 M(H, H_r)}{\partial H \partial H_r} \quad (H > H_r) \quad (2.8)$$

Une surface doit être interpolée autour de chaque point afin de pouvoir calculer numériquement cette dérivée sur le réseau de points.⁵¹ La grandeur de cette surface, et ainsi le facteur de lissage de ρ_{FORC} , est contrôlée par le nombre de plus proches voisins utilisés pour l'interpolation de la surface.¹¹

La fonction de distribution est présentée par un diagramme de contour, appelé diagramme FORC, sur lequel l'échelle verticale est traduite par un code de couleur allant de 0 (bleu) à la valeur maximale (rouge) (figure 2.8). Il est à noter que seul le triangle inférieur droit correspond aux points mesurés par les courbes de renversement du premier ordre. La fonction de distribution donne directement la distribution statistique des hystérons mathématiques, selon leurs paramètres H et H_r [figure 2.8 (a)]. Il est cependant plus aisé d'utiliser un système d'axes diagonaux lors de l'interprétation du diagramme FORC, à la manière d'un plan de Preisach. La coordonnée selon l'axe H_c représente la coercivité de l'hystéron, tandis que celle selon l'axe H_u donne le décalage de l'hystéron (voir figure 1.8), d'où les noms respectifs d'axe de coercivité et d'axe de champ d'interaction. Les hystérons réversibles sont ainsi localisés en $H = H_r$, tandis que ceux irréversibles se situent dans le reste du triangle [figure 2.8 (b)]. Les deux systèmes de coordonnées sont reliés par les relations suivantes :

$$H_c = \frac{H - H_r}{2} \quad H_u = -\frac{H + H_r}{2} \quad (2.9)$$

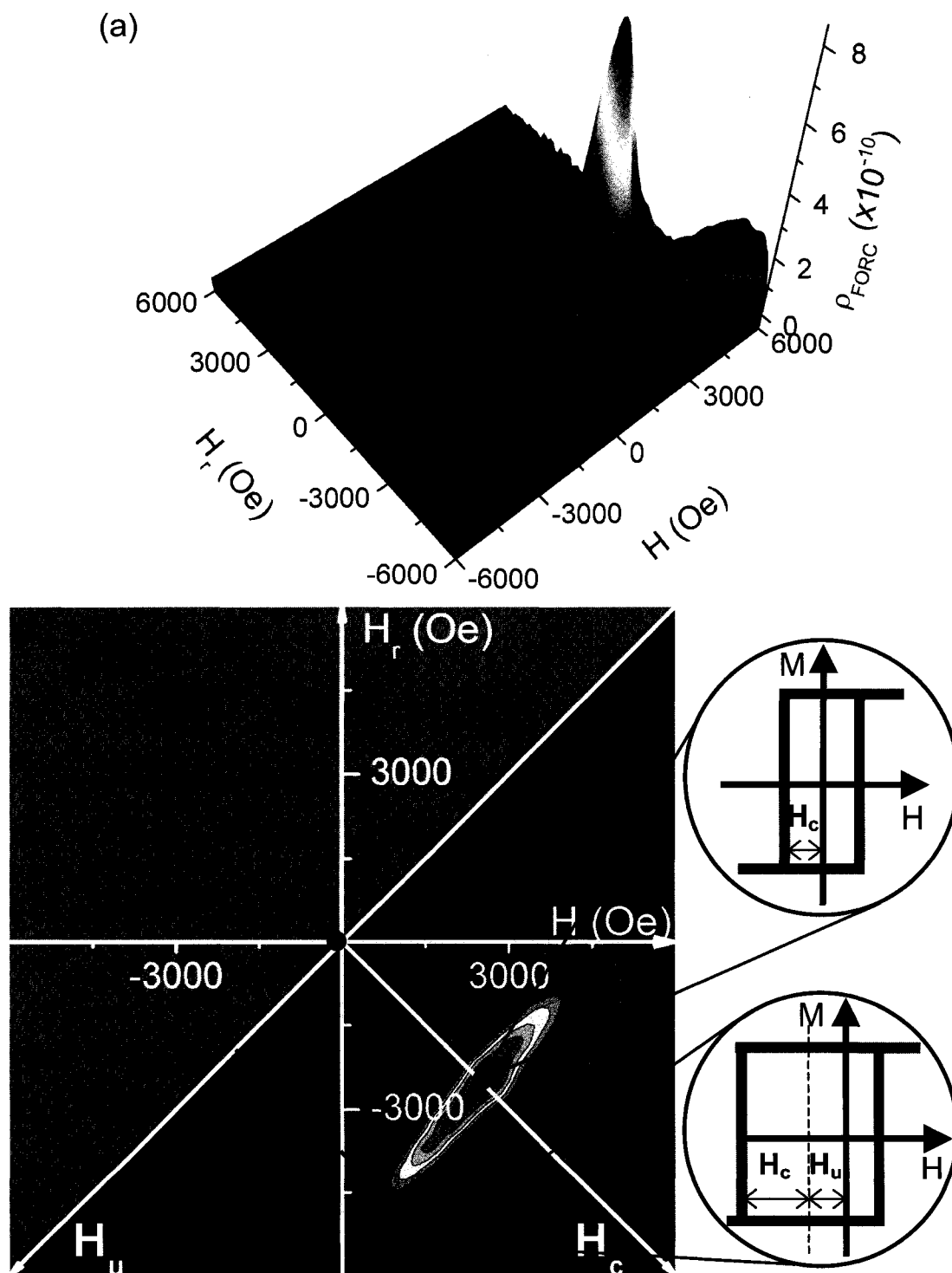


Figure 2.8 : Diagramme FORC.

(a) Représentation tridimensionnelle

(b) Représentation dans un plan de Preisach, où trois hystérons mathématiques sont représentés.
(Réseau de nanofils de CoFe, $d = 15$ nm, $D = 55$ nm, $L = 1,6$ μ m, direction axiale)

2.3.2 Diagramme FORC extrapolé

L'application numérique de la dérivée seconde sur le réseau de points est problématique près de $H = H_r$, puisqu'il n'y a pas de points mesurés pour $H < H_r$. Les deux options généralement employées pour contourner ce problème sont soit de ne pas calculer ρ_{FORC} pour quelques points au début de chaque courbe (diagramme FORC tronqué, figure 2.9 (a)), soit d'étendre les courbes de renversement du premier ordre en ajoutant des points de telle sorte que (diagramme FORC étendu, figure 2.9 (b)) :⁵²

$$M(H_{\min} < H < H_r) = M(H = H_r) \quad (2.10)$$

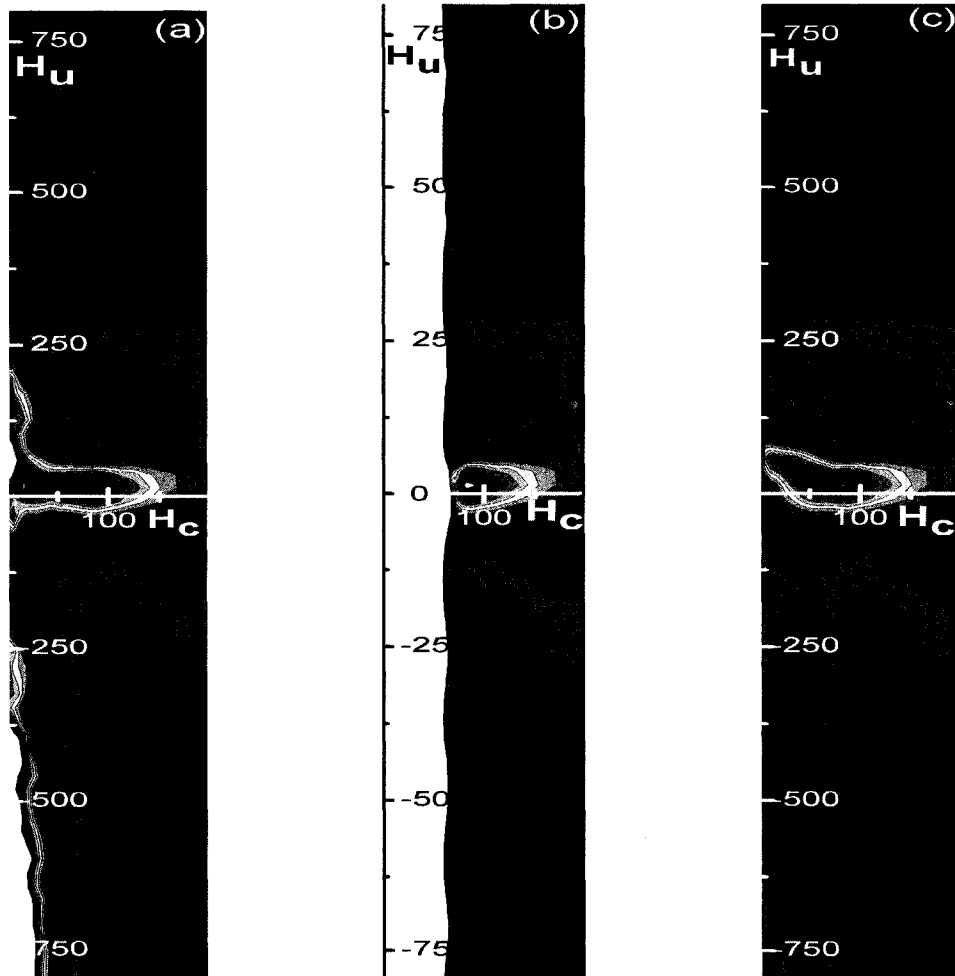


Figure 2.9 : Diagrammes FORC (a) tronqué (b) étendu et (c) extrapolé

Les diagrammes sont présentés dans le plan (H_c, H_u) afin de pouvoir examiner les conséquences du calcul de l'équation (2.8) dans la région quasi-réversible (près de $H_c = 0$). L'échelle est normalisée selon (c), les valeurs supérieures et inférieures apparaissant respectivement en blanc et noir.

(Réseau de nanofils de CoFeB, $d = 200$ nm, $D = 285$ nm, $L = 22$ μ m, direction transverse)

Cependant, ces deux options ne permettent pas d'obtenir la représentation de ρ_{FORC} dans la région dite « quasi-réversible », i.e. près de $H_c = 0$. En effet, soit cette information n'est pas calculée, soit, si l'échantillon n'est pas totalement irréversible, elle est recouverte par l'élargissement, dû à l'interpolation numérique de la surface, du changement de susceptibilité entre l'extension des courbes et le début des courbes mesurées.¹⁹

Comme montré sur la figure 2.9, cette perte d'information peut être cruciale si des processus irréversibles surviennent dans la région quasi-réversible. Une troisième option, appelée diagramme FORC extrapolé¹⁹, a donc été développée afin d'obtenir une représentation de l'ensemble des phénomènes irréversibles [figure 2.9 (c)]. Le principe est d'ajouter des points dans la région $H < H_r$, mais en extrapolant les courbes de manière à minimiser les dérivées selon H et selon H_r à la frontière $H = H_r$.

Pour ce faire, dans un premier temps, deux fonctions sont calculées en $H = H_r$, i.e. sur l'axe H_u . Il s'agit de $f(H_u)$, l'aimantation, et de $g(H_u)$, sa dérivée directionnelle selon la direction de l'axe H_c ($D_{\hat{H}_c}$) :

$$f(H_u) = M(H = H_r) \quad (2.11)$$

$$g(H_u) = D_{\hat{H}_c} M(H = H_r) \quad (2.12)$$

Lors du calcul de l'équation (2.12), il est préférable d'interpoler une grille (H, H_r) en utilisant les valeurs minimales des écarts ΔH et ΔH_r utilisés dans la région quasi-réversible. Puisque ces différentes valeurs de pente calculées ne forment pas une courbe lisse et que même une très faible discontinuité va produire un pic sur le diagramme FORC, les deux fonctions, $f(H_u)$ et $g(H_u)$, sont transformées en spline cubique. Ensuite, une valeur d'aimantation est extrapolée pour chaque point de la grille (H, H_r) où $H < H_r$:

$$M(H, H_r) = f(H_u) - g(H_u) \times d(H, H_r) \quad (2.13)$$

où $d(H, H_r) = (H_r - H)/\sqrt{2}$ est la distance entre le point (H, H_r) et l'axe H_u où $H = H_r$. Ceci donne un ensemble complet de points sans discontinuité (ou le moins possible) en $H = H_r$. L'application de l'équation (2.8) est ensuite effectuée, mais uniquement sur les points mesurés, la distribution ρ_{FORC} étant fixée à zéro pour $H < H_r$.

2.4 Présentation et caractérisation des résultats FORC

Par souci de clarté et de concision, une représentation graphique de l'ensemble des résultats provenant de la mesure des courbes de renversement du premier ordre a été mise au point. Les processus irréversibles sont représentés par une distribution colorée dans un diagramme FORC extrapolé, où les deux systèmes d'axes utilisés, (H, H_r) et (H_c, H_u) , sont indiqués. L'indicateur de réversibilité η en fonction de H_r est montré sous la forme d'une bande diagonale localisée dans la partie $H < H_r$ du diagramme FORC, uniquement pour les valeurs de champ où il y a un renversement de l'aimantation (χ_{Hyst} non nulle). La valeur de η est symbolisée par des tons de gris allant de blanc (100 % réversible, $\eta = 1$) à noir (0 % réversible, $\eta = 0$). Ce graphique est référé ultérieurement par l'appellation « résultat FORC » (figure 2.10).

Deux paramètres quantitatifs extraits de la courbe de réversibilité en fonction du champ et des diagrammes FORC caractérisent les différentes parties (réversible ou irréversible, selon le cas) constituant un résultat FORC. Pour chaque partie, l'emplacement de son maximum sur l'axe H_c est appelé coercivité FORC (H_c^{FORC}), tandis que la moitié de son élargissement de hauteur uniforme, selon l'axe H_u , est appelée champ d'interaction global (ΔH_u) (figure 2.10).^{11, 17, 18} Cette valeur réfère au champ d'interaction vu de manière homogène par l'ensemble des hystérons à la saturation. Le chapitre 3 traite plus en détails des interprétations possibles de ces paramètres.

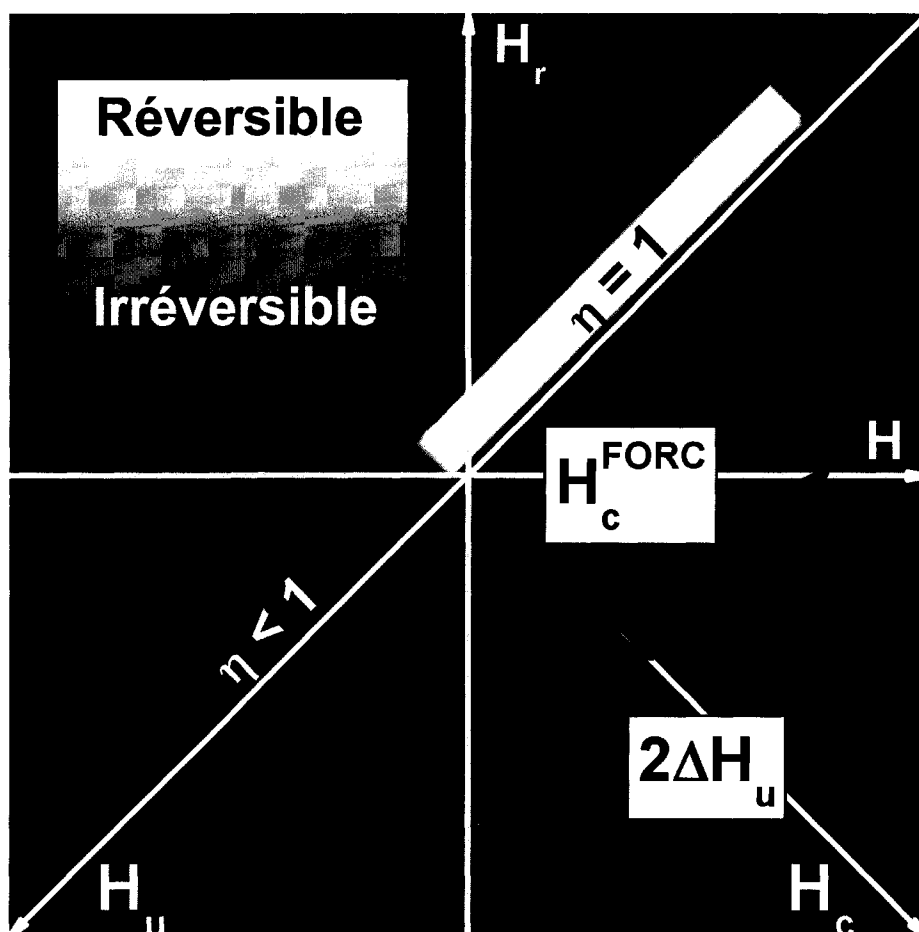


Figure 2.10 : Résultat FORC représentant les paramètres H_c^{FORC} et ΔH_u .
 Les informations concernant les processus irréversibles sont représentées par le diagramme FORC extrapolé, tandis que celles se rapportant aux processus réversibles sont représentées par la bande diagonale, symbolisant l'indicateur de réversibilité en fonction du champ.
 (Résultat FORC calculé à partir des courbes de renversement présentées à la figure 2.6)

Chapitre 3: Interprétation des résultats FORC via le modèle d'analyse physique

*Science may be described as the art of systematic oversimplification:
the art of discerning what we may with advantage omit.*
- Karl Popper

Tel que mentionné précédemment dans le chapitre 1, la technique de caractérisation des courbes de renversement du premier ordre est fondée sur le modèle classique de Preisach. Il est néanmoins possible de mesurer expérimentalement les courbes de renversement du premier ordre de n'importe quel échantillon magnétique et d'ainsi obtenir sa fonction de distribution ρ_{FORC} . Cependant, son interprétation en termes de quantités physiques peut être difficile à effectuer. En effet, ρ_{FORC} donne la distribution statistique d'hystérons mathématiques de paramètres H_c et H_u qui n'ont pas nécessairement de signification physique. De plus, la présence d'interaction entre les hystérons (phénomènes élémentaires d'hystérésis) va déformer cette distribution statistique des hystérons mathématiques. En conséquence, la plupart des études expérimentales faites à partir des courbes de renversement du premier ordre sont limitées à faire une interprétation des résultats uniquement qualitative et sans fondement physique.

Il est donc primordial de premièrement construire un modèle pouvant refléter le comportement magnétique de l'échantillon à analyser. Des résultats FORC sont ensuite simulés à partir de ce modèle, ce qui permet de définir les règles reliant les caractéristiques des résultats FORC et les paramètres d'entrée du modèle. Si nécessaire, le modèle peut être raffiné afin de mieux rendre compte du comportement réel de l'échantillon analysé.

Historiquement, la plupart des modèles développés pour les matériaux magnétiques sont des dérivés du modèle classique de Preisach. Les plus utilisés sont le modèle mobile de Preisach⁵³, le modèle de Preisach à variance variable⁵⁴ et le modèle de

Preisach pour médium structuré²⁹. Le plus simple d'entre eux est le modèle mobile de Preisach, où un champ d'interaction proportionnel à l'aimantation est pris en compte. L'annexe A en présente les résultats FORC simulés pour divers paramètres, ainsi que les relations entre les paramètres d'entrée et les paramètres H_c^{FORC} et ΔH_u . Cependant, ils demeurent tous fondés sur les hystérons mathématiques. Ceci ne résout pas le premier problème soulevé lors de l'interprétation des résultats, à savoir le lien entre une distribution statistique de phénomènes élémentaires mathématiques et celle de phénomènes élémentaires physiques. De plus, l'utilisation d'hystérons mathématiques exclut la prise en compte des processus réversibles dans les modèles ci-dessus.

Afin d'être en mesure d'interpréter correctement les résultats FORC en termes physiques, un nouveau modèle, basé sur une idée innovatrice et dit d'analyse physique, a été développé durant ce doctorat. La base du modèle a été publiée dans la référence [13]. Au lieu de partir de distributions statistiques des paramètres H_c et H_u décrivant les hystérons mathématiques, la première étape consiste plutôt à définir les courbes d'hystérésis des phénomènes élémentaires physiques pouvant se produire lors du renversement de l'aimantation. Par souci de simplicité, le modèle d'interprétation décrit ici est limité à des systèmes d'entités magnétiques constituées chacune d'un seul domaine magnétique. Ainsi, les hystérons utilisés décrivent directement le comportement magnétique individuel des entités magnétiques présentes dans une nanostructure. Les hystérons peuvent donc être réversibles ou irréversibles, selon le comportement de la nano-entité simulée, et il est possible d'ajouter plusieurs types d'hystéron différents, en proportion variable, afin de simuler adéquatement la nanostructure voulue. La deuxième étape demande de définir le terme d'interaction présent entre les entités magnétiques. Dans cette étude, le champ d'interaction a été considéré comme proportionnel à l'aimantation pour des raisons de simplicité, puisque les hystérons ont été utilisés sans localisation dans l'espace. Cependant, l'implémentation d'autres types d'interaction et d'une localisation spatiale des hystérons est relativement aisée à faire.

Une fois le système défini, il est possible de simuler son comportement et donc de tracer les courbes de renversement du premier ordre. Les relations quantitatives entre les caractéristiques du système simulé et celles du résultat FORC obtenu peuvent ensuite être extraites par comparaison. Par la suite, en utilisant le système simulé approprié, ces relations permettront de quantifier les phénomènes physiques dans un système expérimental, tandis que le résultat FORC simulé permettra de s'assurer que les phénomènes physiques présumés intervenir lors du renversement de l'aimantation sont effectivement présents.

Après avoir décrit la base du modèle d'analyse physique et comment les simulations ont été effectuées, les résultats FORC et leur comportement en termes de H_c^{FORC} et de ΔH_u sont présentés pour divers hystérons, en allant de la situation la plus simple à la plus complexe. Une récapitulation des résultats, ainsi que la marche à suivre pour interpréter en termes physiques un résultat FORC d'une nanostructure magnétique selon le modèle d'analyse physique, clôturent le chapitre.

3.1 Description du modèle

Un spin à 0 K constitue physiquement l'unité magnétique de base. Les interactions d'échange induisent ensuite une interaction positive (alignement ferromagnétique) ou négative (alignement anti-ferromagnétique). Le modèle le plus général possible devrait donc partir d'un spin et des interactions d'échange. Cependant, puisque la technique des FORC est fréquemment employée pour caractériser des nanostructures composées d'entités magnétiques, le modèle a été simplifié et adapté en ce sens. Il utilise le modèle de Stoner-Wohlfarth⁵⁵, qui décrit le renversement de l'aimantation d'une particule ferromagnétique monodomaine, i.e. dont tous les moments magnétiques (spins) sont alignés en permanence dans la même direction. La particule possède cependant une anisotropie uniaxiale, qui peut être créée par la forme de la particule, sa structure cristallographique, une contrainte, etc. Cette anisotropie définit ainsi une direction selon laquelle l'aimantation a naturellement tendance à s'aligner et qui est appelée axe facile. Le modèle de Stoner-Wohlfarth donne la direction de l'aimantation qui est la plus

favorable en termes d'énergie, selon l'angle entre l'axe facile et le champ magnétique. L'aimantation de la particule étant considérée comme un seul vecteur, l'ensemble des moments magnétiques demeure donc en tout temps aligné parallèlement entre eux. La rotation de l'aimantation est ainsi qualifiée de cohérente, tandis que le terme renversement non-cohérent réfère aux situations où les spins exécutent des rotations vers des directions différentes.

Une sphère ferromagnétique à 0 K, isotrope et monodomaine, constitue l'unité physique de base employée dans le modèle d'analyse physique. Sa courbe d'hystérésis peut être modélisée par un hystéron vertical, réversible en $H = 0$, référé ensuite par « hystéron fondamental » [figure 3.1 (a)]. En ajoutant à cette sphère une anisotropie uniaxiale, comme une anisotropie de forme, par exemple, les cas extrêmes du modèle de Stoner-Wohlfarth (en termes d'angle entre la direction d'anisotropie et le champ magnétique) donnent deux autres types d'hystérons, soit vertical irréversible [figure 3.1 (b)] et linéaire [figure 3.1 (c)]. Ils représentent respectivement des entités soumises à un champ appliqué dans la direction de l'axe facile et de l'axe difficile et seront donc appelés « hystéron facile » et « hystéron difficile ».

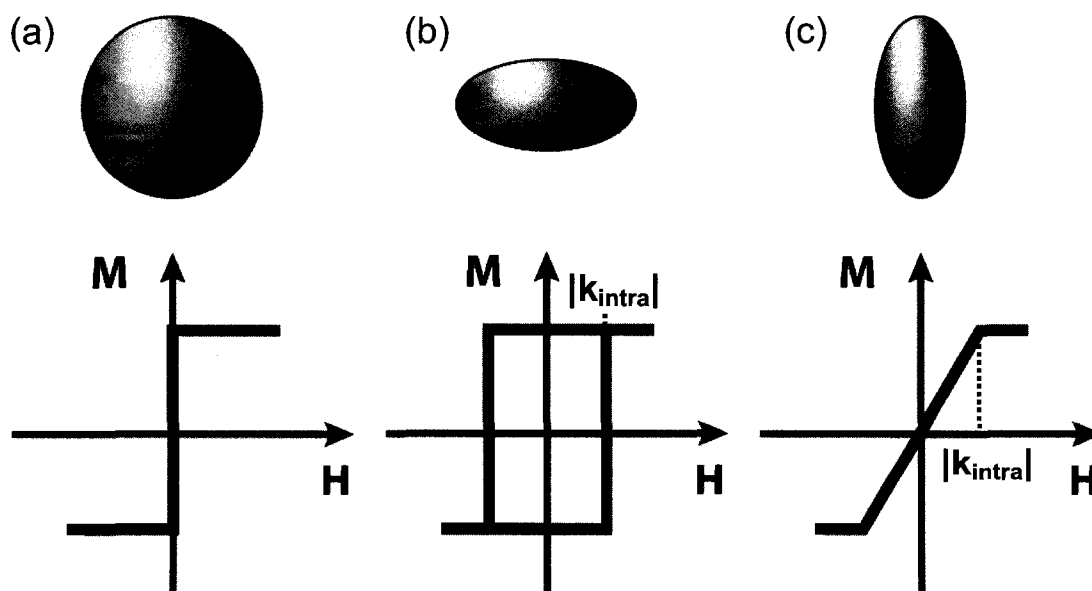


Figure 3.1 : Formes des entités magnétiques et hystérons de base associés.
 (a) Vertical réversible (hystéron fondamental) (b) Vertical irréversible (hystéron facile)
 (c) Linéaire (hystéron difficile)

Ces trois types d'hystérons constituent les hystérons dits de base du modèle d'analyse physique, puisqu'ils sont soit complètement réversibles soit complètement irréversibles. Les hystérons donnés par les directions intermédiaires dans le modèle de Stoner-Wohlfarth (hystérons Stoner-Wohlfarth) seront étudiés à la section 3.3.1.3. Pour faciliter le traitement, l'aimantation de chaque hystéron est normalisée.

Chaque hystéron de base est caractérisé par le paramètre k_{intra} , dont la norme égale la valeur du champ de saturation, en référence à un champ d'interaction moyen intra-entité. Les hystérons faciles ont une valeur de k_{intra} positive, tandis qu'elle est négative pour les hystérons difficiles. Par mesure de simplicité, les hystérons n'ont pas de localisation dans l'espace. Ainsi, l'interaction entre les particules n'est pas définie via les interactions dipolaires, ce qui nécessiterait la connaissance de l'endroit où se trouve chaque particule. Un champ d'interaction moyen, i.e. identique sur toutes les particules, a plutôt été employé pour les simulations présentées ici. Sa valeur est proportionnelle à l'aimantation globale, selon le paramètre k_{inter} . Un champ d'interaction anti-parallèle s'oppose à l'aimantation et est caractérisé par une valeur négative de k_{inter} [figure 3.2 (a)]. De la même manière, une valeur positive de k_{inter} rend compte d'un champ d'interaction parallèle, i.e. dans la même direction que l'aimantation [figure 3.2 (b)].

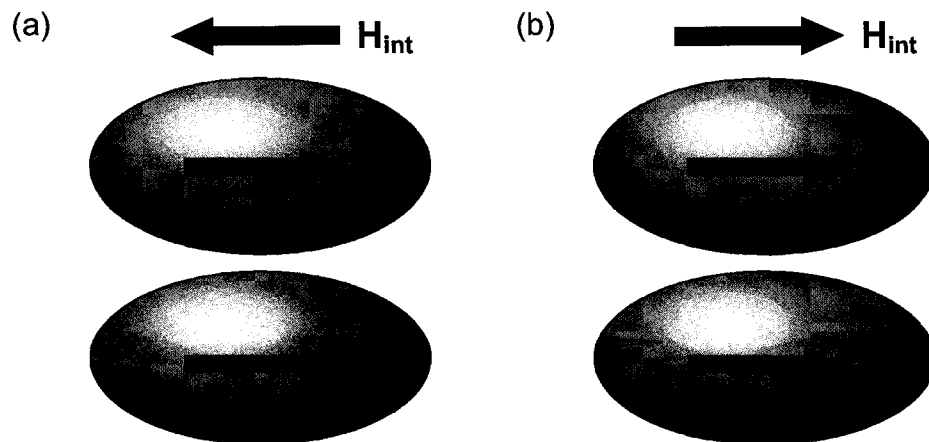


Figure 3.2 : Représentation schématique d'un champ d'interaction moyen.
(a) Anti-parallèle ($k_{inter} < 0$) (b) Parallèle ($k_{inter} > 0$)

3.2 Simulation

Les paramètres à définir dans le modèle d'analyse physique sont le nombre total d'hystérons (typiquement 1000), la valeur de k_{intra} de chaque hystéron, la valeur du coefficient du champ d'interaction k_{inter} , et finalement, la proportion de chaque type d'hystéron. On peut ainsi simuler la présence d'hystérons réversibles avec des hystérons irréversibles.

L'aimantation et l'état (branche supérieure ou inférieure de la courbe d'hystérésis) sont gardés en mémoire pour chaque hystéron. L'aimantation normalisée du système (M) est calculée de manière quasi-statique, i.e. pour des petits incréments de champ appliqué (typiquement chaque unité de champ), par un procédé itératif. Pour chaque champ appliqué H_{appl} , le champ total H_{tot} perçu par les hystérons est premièrement calculé :

$$H_{tot} = H_{appl} + k_{inter} \times M \quad (3.1)$$

Puis, dans l'éventualité où ce champ total serait assez élevé pour inverser l'état de certains hystérons, un hystéron parmi ceux-ci est choisi au hasard et change d'état. La nouvelle valeur de champ total est alors calculée et ainsi de suite jusqu'à ce qu'il n'y ait plus d'hystéron pouvant changer d'état. Parmi les hystérons dont la valeur de l'aimantation conservée en mémoire ne correspond pas à l'aimantation sur leur courbe d'hystérésis pour le champ total, la moitié (choisie au hasard) corrige alors ce fait en modifiant leur aimantation. Le champ total est ensuite recalculé et les étapes précédentes sont répétées jusqu'à parvenir à un point d'équilibre. Le script employé pour effectuer les simulations du comportement magnétique est retranscrit à l'annexe B.

3.3 Résultats

Dans un premier temps, des résultats FORC simulés à l'aide d'hystérons identiques sont présentés, puis l'influence d'une distribution de valeur de k_{intra} . Ils sont discutés en fonction des paramètres H_c^{FORC} et de ΔH_u . L'influence sur la coercivité de la courbe d'hystérésis (champ où l'aimantation est nulle) et la réversibilité extraite des courbes de renversement du premier ordre sont ensuite abordées.

3.3.1 Hystérons identiques

3.3.1.1 Hystérons de base

Pour chaque type d'hystéron de base, les courbes de renversement du premier ordre ont été simulées avec des champs d'interaction nul, anti-parallèle et parallèle. La figure 3.3 montre le comportement des hystérons fondamentaux, mis en évidence par les flèches tiretées. De manière générale, il change drastiquement selon le signe de l'interaction, passant d'une extension réversible à un pic de Dirac sur l'axe de coercivité.

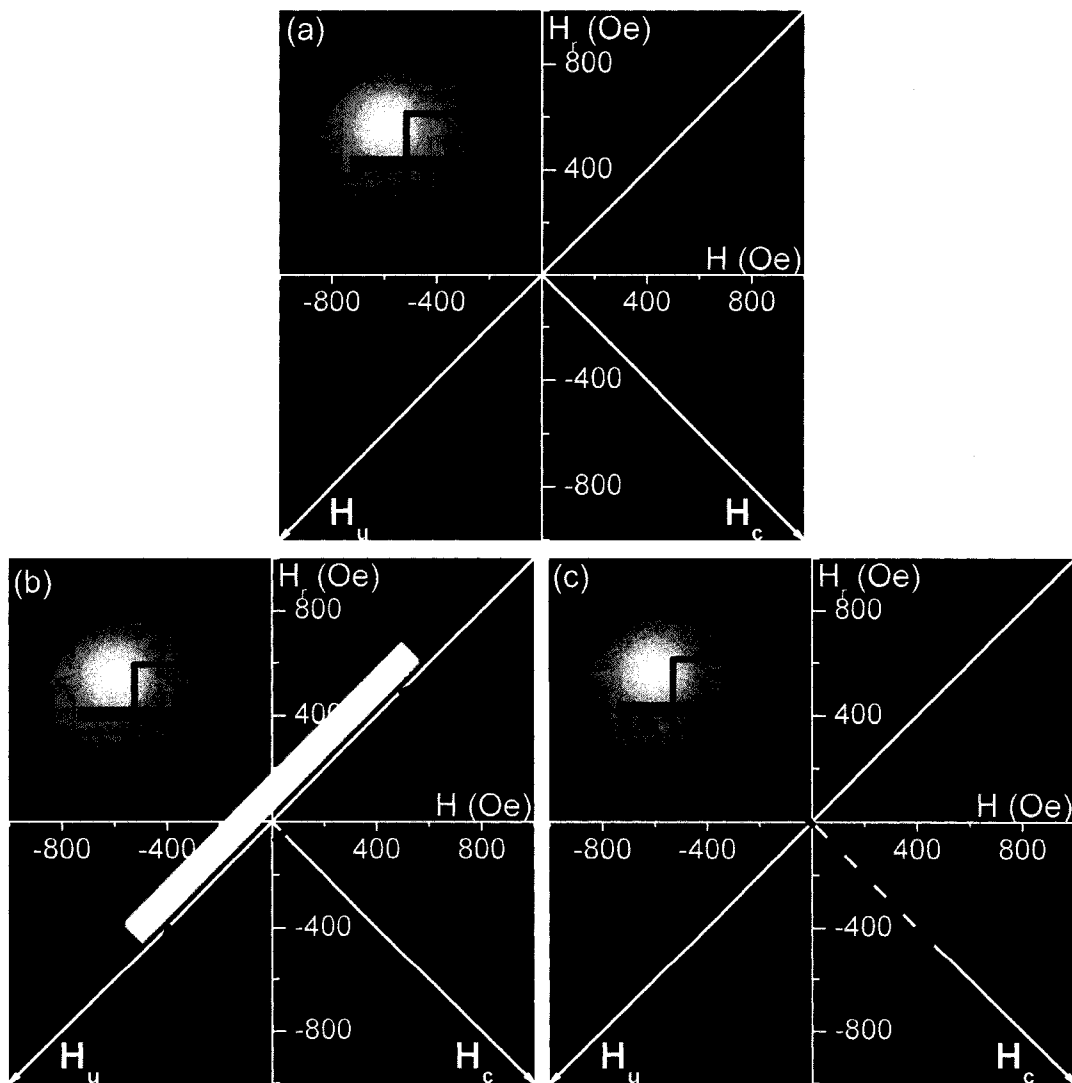


Figure 3.3 : Résultats FORC simulés pour des hystérons fondamentaux soumis à un champ d'interaction externe.

(a) $k_{inter} = 0$ Oe (b) $k_{inter} = -500$ Oe et (c) $k_{inter} = 500$ Oe

En l'absence de champ d'interaction, le résultat FORC est conforme à la distribution statistique des hystérons, présentant un pic de Dirac à l'origine [figure 3.3 (a)]. L'interprétation correspondant à un système physique est que l'ensemble des particules se renverse en même temps à champ nul. Sous l'influence d'un champ anti-parallèle, la partie réversible s'étend le long de l'axe d'interaction, selon les relations suivantes [figure 3.3 (b)]:

$$\begin{aligned} H_c^{FORC} &= 0 \\ \Delta H_u &= -k_{inter} \end{aligned} \quad (k_{inter} \leq 0) \quad (3.2)$$

Cette élongation provient du fait que les particules se renversent successivement les unes après les autres, lorsque chacune perçoit un champ nul localement. Le renversement est ainsi distribué, puisque le renversement d'une particule modifie le champ d'interaction, et donc le champ perçu par chaque particule. En conséquence, le résultat FORC peut être considéré comme une représentation globale du renversement de l'aimantation selon le champ appliqué, plutôt que comme la distribution statistique des propriétés magnétostatiques des particules constituant un système.

À l'inverse, sous l'action d'un champ d'interaction parallèle, le pic de Dirac est translaté sur l'axe de coercivité, ce qui conduit à un comportement globalement irréversible [figure 3.3 (c)]. En effet, l'interaction positive entre les particules repousse à un champ plus élevé le moment pour lequel une particule perçoit un champ nul et donc se renverse. Encore une fois, le renversement d'une particule change le champ perçu par les autres particules. Cependant, dans ce cas, la diminution du champ d'interaction force les autres particules à se renverser elles aussi. Finalement, l'ensemble des particules se renverse pour la même valeur de champ appliqué. La translation sur le résultat FORC peut être quantifiée par :

$$\begin{aligned} H_c^{FORC} &= k_{inter} \\ \Delta H_u &= 0 \end{aligned} \quad (k_{inter} \geq 0) \quad (3.3)$$

Les résultats pour des hystérons faciles identiques ($k_{intra} = 250$ Oe) sont présentés à la figure 3.4. Le comportement général suit la même tendance que pour les hystérons fondamentaux, mais avec une translation de k_{intra} selon l'axe de coercivité de la partie irréversible.

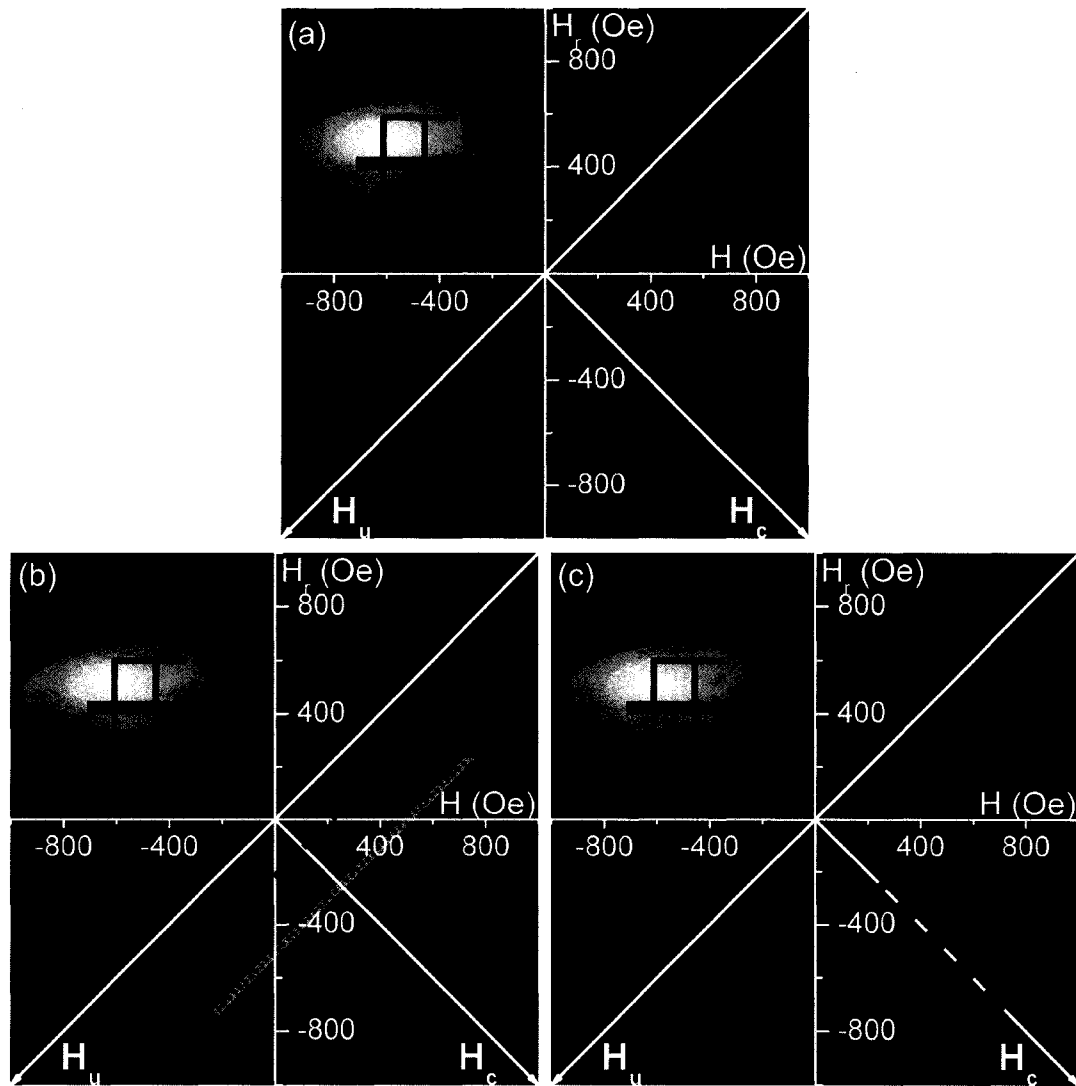


Figure 3.4 : Résultats FORC simulés pour des hystérons faciles identiques ($k_{intra} = 250$ Oe) soumis à un champ d'interaction externe.

(a) $k_{inter} = 0$ Oe (b) $k_{inter} = -500$ Oe et (c) $k_{inter} = 500$ Oe

En effet, sans champ d'interaction, le résultat FORC présente un pic de Dirac en $H_c = k_{intra}$, ce qui correspond effectivement à la coercivité des hystérons mathématiques (un hystéron facile étant de même forme qu'un hystéron mathématique) [figure 3.4 (a)]. Un champ d'interaction anti-parallèle va déformer cette distribution irréversible, en l'allongeant selon l'axe d'interaction [figure 3.4 (b)] :

$$\begin{aligned} H_c^{FORC} &= k_{intra} \\ \Delta H_u &= -k_{inter} \end{aligned} \quad (k_{inter} \leq 0), \quad (3.4)$$

tandis qu'un champ d'interaction parallèle va avoir pour effet de repousser plus loin le pic de Dirac sur l'axe de coercivité [figure 3.4 (c)] :

$$\begin{aligned} H_c^{FORC} &= k_{inter} + k_{intra} \\ \Delta H_u &= 0 \end{aligned} \quad (k_{inter} \geq 0) \quad (3.5)$$

Les interprétations en termes du comportement physique des particules restent identiques à celles énoncées plus haut à propos des hystérons fondamentaux. La seule différence est que sous l'influence d'un champ d'interaction anti-parallèle, le renversement successif des particules sphériques (hystérons fondamentaux) est réversible, tandis qu'il est irréversible pour les particules anisotropiques (hystérons faciles).

Le champ d'interaction utilisé dans ces simulations étant de type moyen, l'élongation de la partie irréversible selon l'axe H_u ($k_{inter} < 0$, figure 3.4 (b)) présente une hauteur uniforme (valeur de la fonction de distribution p_{FORC} identique). Ceci est attribuable au fait que, chaque hystéron étant soumis à la même valeur de champ d'interaction, la même quantité d'hystérons se renverse en même temps. Une non-uniformité dans cette hauteur proviendrait d'une distribution dans la valeur de champ d'interaction perçue par les hystérons.

Finalement, pour les résultats FORC d'hystérons difficiles identiques ($k_{intra} = -250$ Oe), k_{intra} se trouve à être additionné au champ d'interaction externe (figure 3.5).

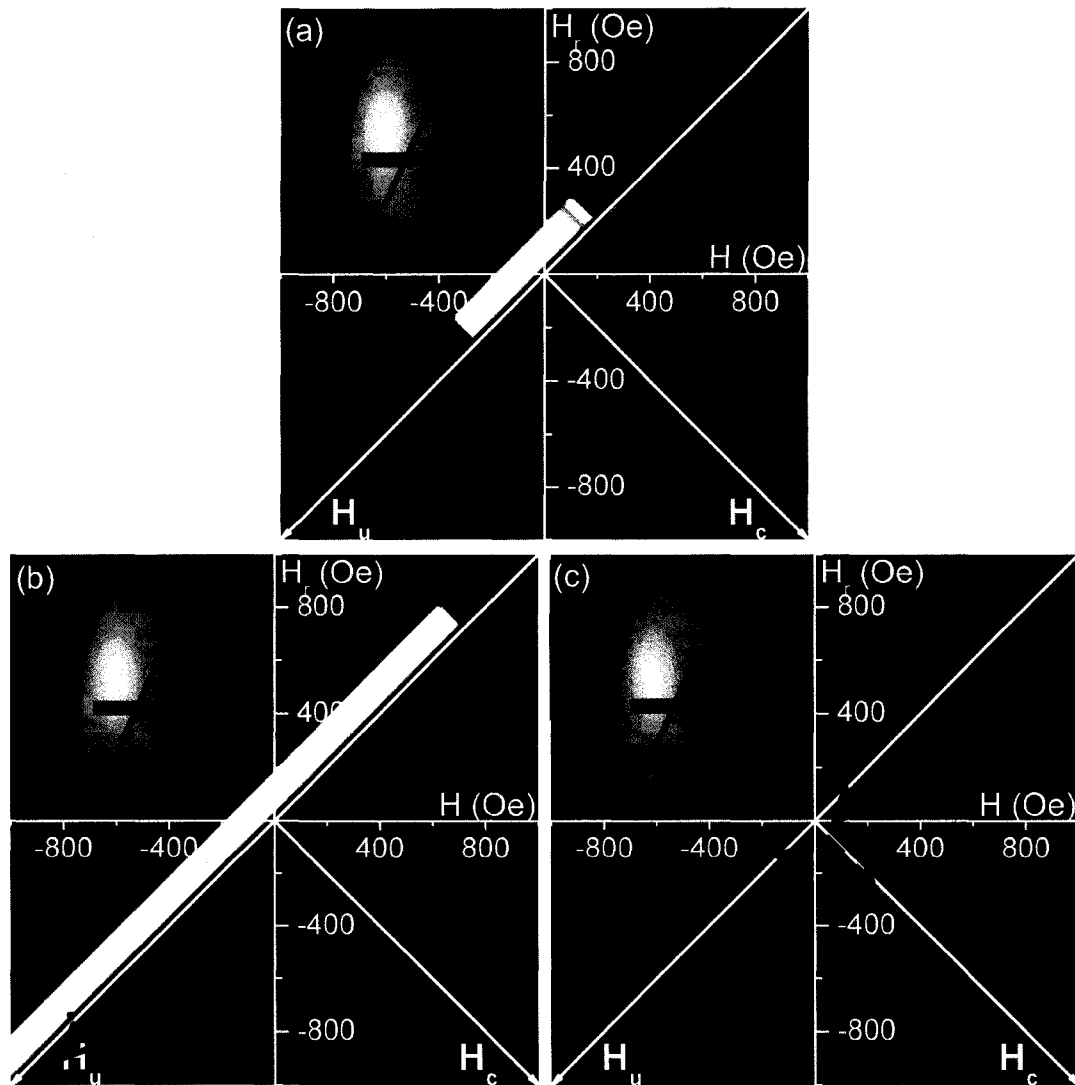


Figure 3.5 : Résultats FORC simulés pour des hystérons difficiles identiques ($k_{intra} = -250$ Oe) soumis à un champ d'interaction externe.

(a) $k_{inter} = 0$ Oe (b) $k_{inter} = -500$ Oe et (c) $k_{inter} = 500$ Oe

La transition entre un comportement réversible et irréversible ne s'effectue donc plus lorsque le champ d'interaction change de signe, mais plutôt lorsqu'il est compensé par le champ de saturation des hystérons difficiles. Les deux situations possibles sont ainsi quantitativement décrites par :

$$\begin{aligned} H_c^{FORC} &= 0 \\ \Delta H_u &= -(k_{inter} + k_{intra}) \end{aligned} \quad (k_{inter} \leq -k_{intra}) \quad (3.6)$$

pour un comportement global réversible, et

$$\begin{aligned} H_c^{FORC} &= k_{inter} + k_{intra} \\ \Delta H_u &= 0 \end{aligned} \quad (k_{inter} \geq -k_{intra}) \quad (3.7)$$

pour un comportement global irréversible.

Il est à noter que la partie réversible visible sur les figures 3.5 (a) et (b) indique que le seul renversement s'effectuant pour une valeur de champ de renversement donné est totalement réversible, i.e. qu'il n'y a pas de processus irréversible. L'indicateur de réversibilité ne donne pas une mesure de la proportion globale des hystérons qui se renversent à ce champ ou de la quantité d'aimantation renversée. En effet, dans le cas des hystérons difficiles, ils ne se renversent généralement pas complètement instantanément.

Les figures 3.3 (b) et 3.5 (a) et (b) montrent chacune un comportement semblable, soit uniquement réversible, bien qu'elles représentent des systèmes différents. De la même manière, les figures 3.3 (c), 3.4 (a) et (c), ainsi que 3.5 (c), sont toutes constituées d'un comportement irréversible très localisé. Ainsi, un résultat FORC exhibant l'un ou l'autre de ces comportements ne correspond pas à une seule situation physique. La technique FORC ne peut donc pas être utilisée toute seule afin de caractériser le système en question, d'autres techniques de caractérisation complémentaires sont nécessaires afin de discriminer les différents systèmes possibles.

La seule figure montrant un comportement unique est la figure 3.4 (b), soit des hystérons faciles soumis à un champ d'interaction anti-parallèle. Dans ce cas-ci, il est possible de déduire les caractéristiques du système, puisque le résultat FORC obtenu correspond de manière unique à une situation physique particulière.

3.3.1.2 Super-hystérons

Puisqu'il n'est pas rare qu'un échantillon contienne plus d'une distribution de particules, et donc, d'hystérons de base, des combinaisons linéaires de plusieurs hystérons différents (appelées « super-hystérons ») ont été étudiées par simulation. Ces simulations ont permis de montrer que le fait de simuler N hystérons de base, avec une proportion x d'un type A et $(1-x)$ d'un type B, est équivalent, en terme de résultats, à simuler N hystérons, chacun possédant sur x les caractéristiques de l'hystéron A et sur $(1-x)$, celles de B (figure 3.6). Ce résultat est une des conséquences du fait que les hystérons ne sont pas localisés dans l'espace dans les simulations présentées ici. Parmi les cas les plus simples, soit une combinaison linéaire de deux hystérons, seuls les résultats provenant d'un super-hystéron composé d'hystérons faciles et difficiles de même paramètre k_{intra} , en valeur absolue, sont présentés dans cette section. Les conclusions peuvent être extrapolées aux autres cas.

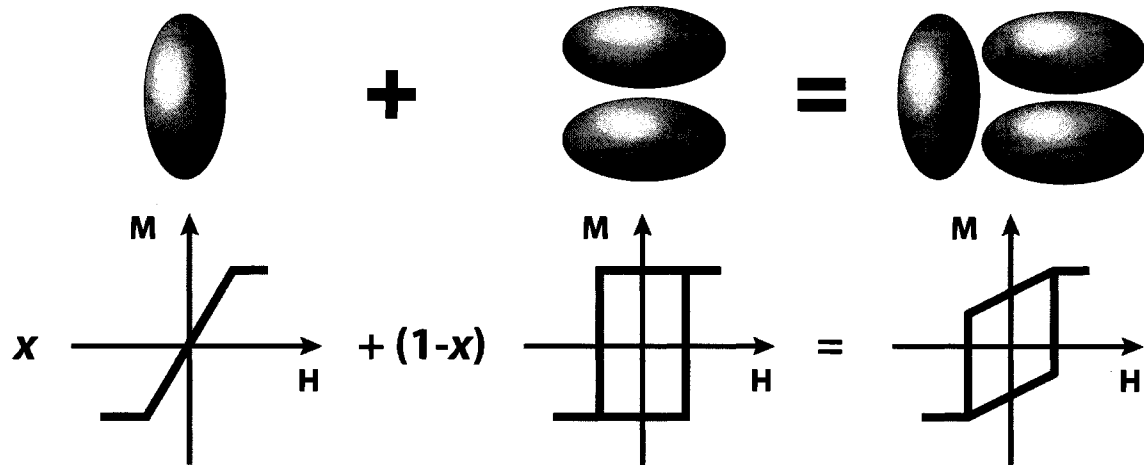


Figure 3.6 : Formation d'un super-hystéron à partir d'hystérons de base difficile et facile.

La figure 3.7 présente les résultats pour des valeurs de champ d'interaction externe nulle, négative et positive pour un super-hystéron composé de 40 % d'hystérons difficiles identiques et de 60 % d'hystérons faciles identiques ($|k_{intra}| = 250$ Oe).

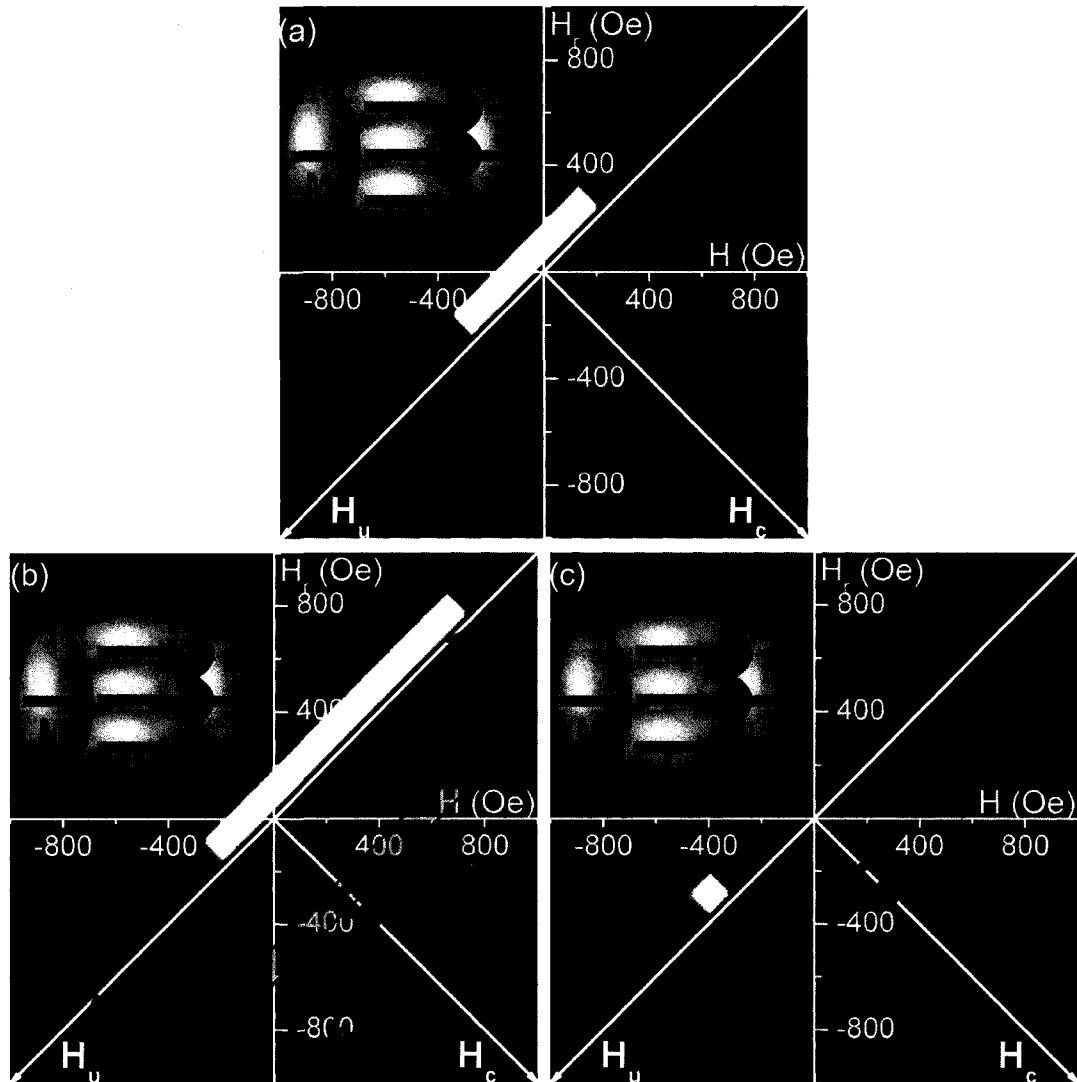


Figure 3.7 : Résultats FORC simulés pour des super-hystérons (40 % difficiles, 60 % faciles, $|k_{intra}| = 250$ Oe) soumis à un champ d'interaction externe.
 (a) $k_{inter} = 0$ Oe (b) $k_{inter} = -500$ Oe et (c) $k_{inter} = 500$ Oe
 La trace de la partie irréversible attendue pour uniquement des hystérons faciles est représentée en (b).

Puisque les super-hystérons considérés sont composés à la fois d'hystérons réversibles (difficiles) et irréversibles (faciles), les résultats FORC attendus devraient présenter deux parties, une réversible et une irréversible, ce qui s'avère exact. Effectivement, le comportement du système demeure identique à celui décrit pour les hystérons de base, la seule différence étant que le renversement réversible des particules s'effectue dans un premier temps, suivi ensuite du renversement irréversible.

Cependant, sous l'influence d'un champ d'interaction, le résultat FORC du super-hystéron ne correspond pas à la combinaison linéaire des résultats FORC des hystérons de base. Pour un champ d'interaction externe négatif ou nul, (et, plus généralement, pour un champ de saturation irréversible inférieur à celui réversible, i.e. $k_{inter} \leq 0$ et $k_{intra}(facile) \leq -k_{intra}(difficile)$), les caractéristiques de la partie réversible sont identiques à celles qui seraient obtenues pour uniquement des hystérons difficiles :

$$\begin{aligned} H_c^{FORC}(rév) &= H_c^{FORC}(difficile) \\ \Delta H_u(rév) &= \Delta H_u(difficile) \end{aligned} \quad (3.8)$$

tandis que celles de la partie irréversible diffèrent de celles qui seraient obtenues pour uniquement des hystérons faciles (avec x_{rev} la proportion d'hystérons difficiles) :

$$\begin{aligned} H_c^{FORC}(irrév) &= H_c^{FORC}(facile) + x_{rev} k_{inter} \frac{k_{intra}(facile)}{k_{intra}(difficile)} \\ \Delta H_u(irrév) &= (1 - x_{rev}) \Delta H_u(facile) \end{aligned} \quad (3.9)$$

Plus précisément, à cause de la présence des hystérons réversibles, la partie irréversible se retrouve à être moins étendue selon l'axe H_u et translatée vers des valeurs de H_c supérieures (figure 3.7 (b), où la partie irréversible attendue pour uniquement des hystérons faciles est représentée en gris). L'explication de ces différences, qui est de nature géométrique, est résumée à l'aide de la figure 3.8. Dans cette situation, la valeur de champ magnétique nécessaire pour passer du point de renversement A à la fin du renversement de l'aimantation (point B, où $\rho_{FORC} > 0$) est plus grande que le double de la coercivité des hystérons faciles. Sachant que la pente de la courbe d'hystérésis majeure est de $-1/k_{inter}$ et que la différence d'aimantation entre A et B est de $2x_{rev}$, le champ supplémentaire pour atteindre le point B est donc de $2x_{rev}k_{inter}$ (si $k_{intra}(facile) = k_{intra}(difficile)$). L'élongation ΔH_u , pour sa part, est réduite d'un facteur x_{rev} puisque H_u correspond, en valeur absolue, à la moyenne entre H_r et H [voir équation (2.9)]. À cause des hystérons difficiles, la valeur maximale de H_u est située à une aimantation égale à $M = 1 - x_{rev}$ et non à $M = 1$.

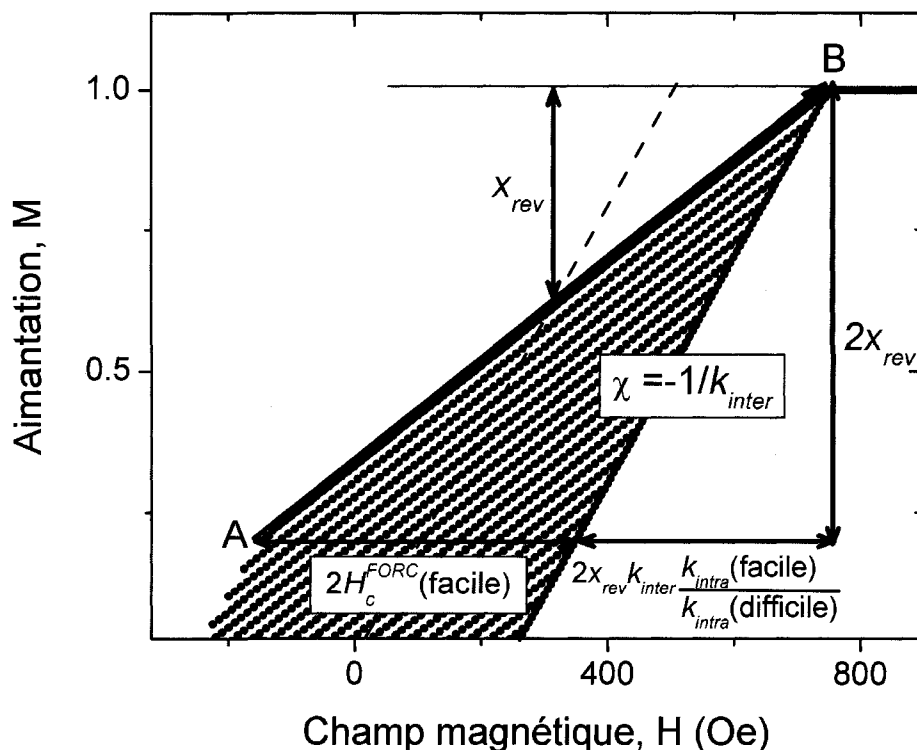


Figure 3.8 : Zoom sur les courbes de renversement du premier ordre, montrant les changements de la partie irréversible induits par les super-hystérons soumis à un champ d'interaction négatif.
 ($x_{rev} = 0,4$, $|k_{intra}| = 250$ Oe, $k_{inter} = -500$ Oe)

Ainsi, plus le système considéré est composé de particules dont les courbes d'hystérésis individuelles s'éloignent de la forme des hystérons mathématiques et qu'il y règne un champ d'interaction, moins la fonction de distribution FORC obtenue représente directement les distributions statistiques des propriétés des particules individuelles. Dans ces cas-ci, il est ainsi d'autant plus important de considérer le résultat FORC dans son ensemble (i.e. les parties réversible et irréversible) comme la représentation du renversement de l'aimantation. Cependant, le nombre de paramètres nécessaire, afin de caractériser un système donné constitué de plusieurs types de particules, fait en sorte que leurs valeurs ne peuvent pas être extraites de manière unique à partir du résultat FORC. Des techniques de caractérisation magnétiques complémentaires, comme la résonance ferromagnétique, s'avèrent donc nécessaires dans ce cas-ci.

3.3.1.3 Hystérons Stoner-Wohlfarth

Le même algorithme de simulation permet aussi de simuler des courbes de renversement du premier ordre à partir d'hystérons modélisés via le modèle de Stoner-Wohlfarth, pour des angles entre l'axe facile et le champ appliqué différents de 0° (axe facile) et 90° (axe difficile). Ce type d'hystérons n'est pas inclus dans les hystérons de base ni dans les super-hystérons. En effet, puisque ce sont les mêmes spins qui exécutent successivement les renversements réversibles et irréversibles, ils ne peuvent pas être considérés comme une combinaison linéaire de renversement réversible et irréversible (figure 3.9).

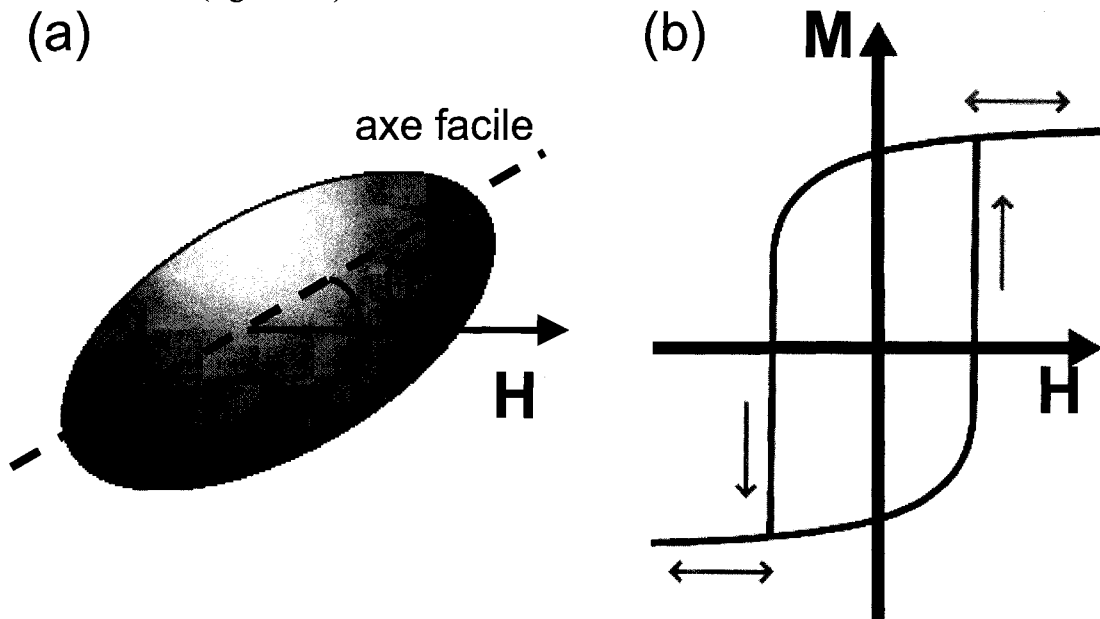


Figure 3.9 : Modèle de Stoner-Wohlfarth.

- (a) Champ magnétique H appliqué selon un angle θ avec l'axe facile d'une particule anisotrope
 (b) Hystéron Stoner-Wohlfarth résultant

Les résultats en fonction du champ d'interaction externe sont présentés ci-dessous pour un angle θ de 30° par rapport à l'axe facile et un champ d'anisotropie H_k de 500 Oe.

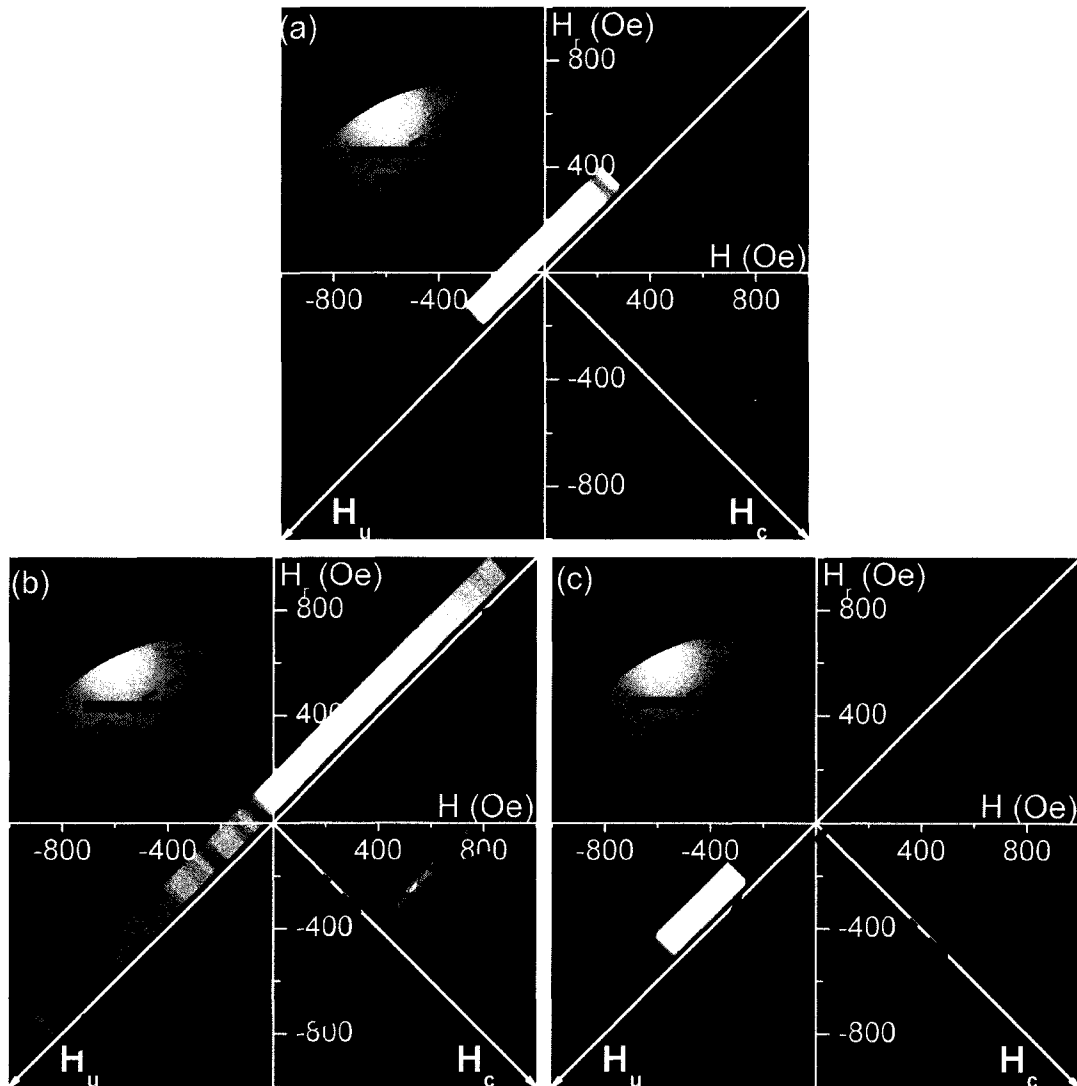


Figure 3.10 : Résultats FORC simulés pour des hystérons Stoner-Wohlfarth ($H_k = 500$ Oe, $\theta = 30^\circ$) soumis à un champ d'interaction externe.

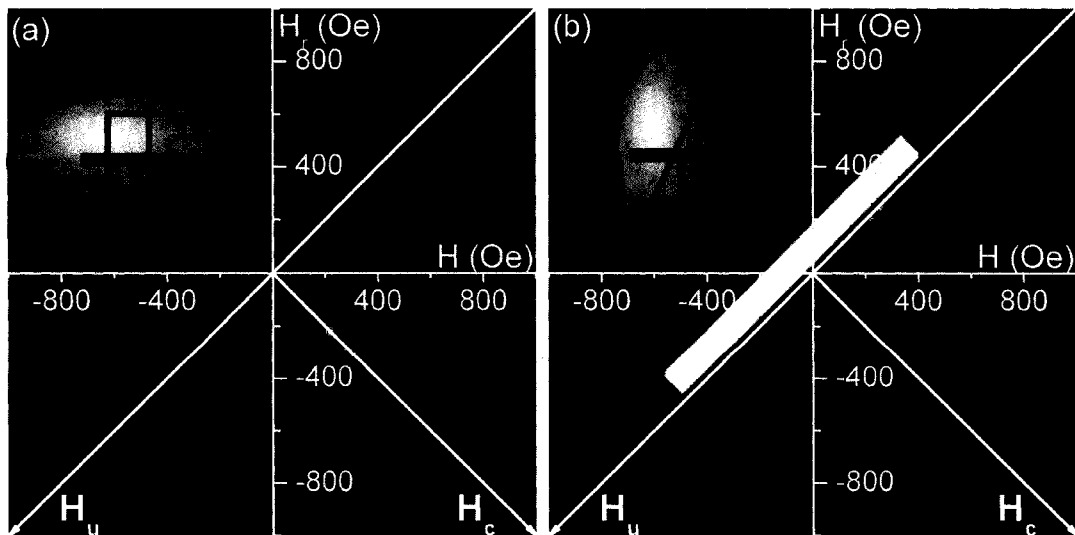
(a) $k_{inter} = 0$ Oe (b) $k_{inter} = -500$ Oe et (c) $k_{inter} = 500$ Oe

Le comportement qualitatif est semblable à celui du super-hystéron étudié dans la section précédente. Ces résultats sont représentatifs d'hystérons Stoner-Wohlfarth, une augmentation de l'angle θ ayant les mêmes conséquences qu'une diminution de la proportion x_{rev} . Néanmoins, étant donné la présence d'une courbure changeant de signe selon la branche parcourue dans la composante réversible, quelques différences ressortent, et ce, plus clairement pour un champ d'interaction négatif [figure 3.10 (b)].

La partie irréversible, au lieu d'être parallèle à l'axe H_u et uniforme en hauteur, présente un pic dans la région $H_u > 0$ et une distribution en H_c dans la région $H_u < 0$. Pour chaque valeur de H_r , l'intégrale sous la courbe selon H est équivalente, ce qui revient à dire que la quantité de processus irréversibles demeure constante selon H_r . Le pic visible sur la partie irréversible provient du fait que c'est la partie réversible de chaque hystéron qui est renversée avant qu'un hystéron ne se renverse complètement ($M = -1$). Sur la courbe de renversement du premier ordre de ce champ de renversement, l'aimantation va d'abord se retourner de manière réversible, via une courbure négative. Pour des valeurs de H_r inférieures, une plus grande quantité d'hystérons se sont renversés complètement ($M = -1$). Sur la courbe de renversement du premier ordre, l'aimantation se retourne aussi en premier de manière réversible, mais via une courbure positive, ce qui résulte en la distribution en H_c visible sur la partie irréversible.

3.3.2 Distribution d'hystérons

L'influence d'une distribution de valeurs de k_{intra} est présentée ci-dessous pour les hystérons faciles et difficiles. Les conclusions demeurent valables pour les super-hystérons et les hystérons Stoner-Wohlfarth. Les distributions sont gaussiennes, centrées en $|k_{intra}|$ et avec une variance de 75 Oe.



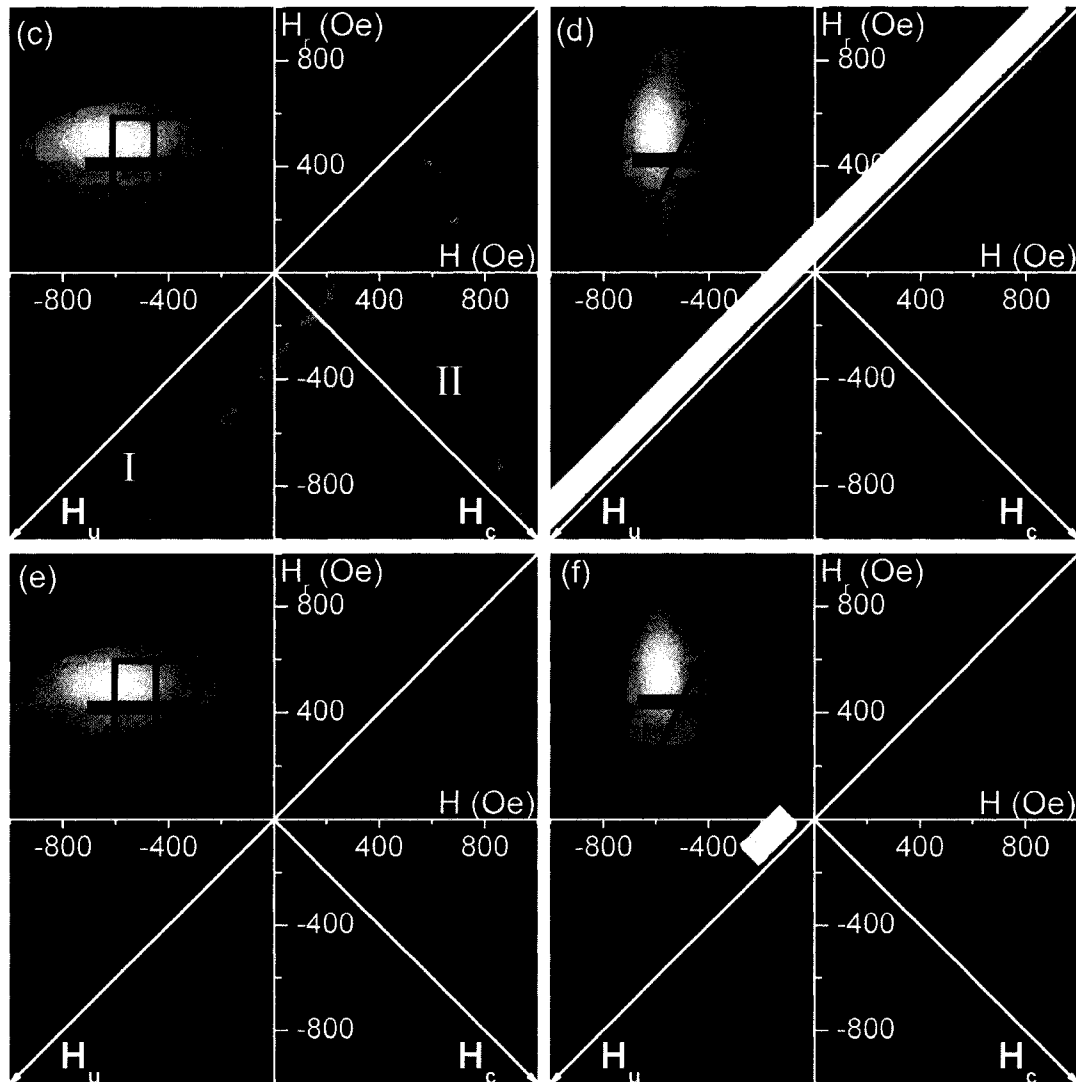


Figure 3.11 : Résultats FORC simulés pour des hystérons ayant une distribution gaussienne de champ de saturation ($\mu = 250$ Oe, $\sigma = 75$ Oe) et soumis à un champ d'interaction externe.

$k_{inter} = 0$ Oe : (a) hystérons faciles (b) hystérons difficiles
 $k_{inter} = -500$ Oe : (c) hystérons faciles (d) hystérons difficiles
 $k_{inter} = 500$ Oe : (e) hystérons faciles (f) hystérons difficiles

Les effets engendrés par une distribution des valeurs de k_{intra} diffèrent selon la partie observée. Dans tous les cas simulés ci-dessus, la distribution allonge légèrement la partie réversible, puisque l'ensemble des hystérons ne commencent plus à se renverser pour la même valeur de champ appliqué. Les conséquences d'une distribution sont cependant plus importantes sur la partie irréversible, et ce, peu importe le type d'hystéron utilisé.

En l'absence de champ d'interaction, la partie irréversible créée par des hystérons faciles présente un élargissement selon l'axe H_c [figure 3.11 (a)]. Une coupe en section selon cet axe donne directement la distribution de coercivité des hystérons, puisque la distribution FORC correspond dans ce cas-ci à la distribution statistique d'hystérons mathématiques. Dans un tel système, les particules se renversent les unes à la suite des autres, en commençant par celles possédant la plus faible coercivité.

C'est sous l'influence d'un champ d'interaction anti-parallèle que les changements observables sur le résultat FORC d'hystérons faciles sont les plus marqués. Cependant, le comportement physique des particules n'est pas drastiquement altéré par la distribution de champ de saturation. Les particules de plus faible coercivité se renversent en premier. Ce renversement modifie encore une fois le champ d'interaction, ce qui a pour conséquence d'étaler le renversement de l'ensemble des particules. Sur le résultat FORC, la distribution de valeurs de k_{intra} provoque l'apparition d'une deuxième branche irréversible [figure 3.11 (c)]. La branche I est créée par le commencement du renversement des hystérons, tandis que la fin de leur renversement, survenant avant la fin de l'hystérésis, produit la branche II.¹⁷ Cette dernière est donc un artefact dû à la distribution de coercivité et ne doit pas être considérée dans la suite de l'interprétation du résultat FORC. La branche I est rectiligne mais non parallèle à l'axe H_u . Une étude plus complète de ce type de distribution se trouve à l'annexe A, qui mène aux résultats suivants pour la branche I :

$$\begin{aligned} H_c^{FORC} &< \mu \\ \Delta H_u &> |k_{inter}| \end{aligned} \quad (3.10)$$

Avec un champ d'interaction externe parallèle, forçant l'attraction mutuelle des hystérons jusqu'à un pic de Dirac sur l'axe de coercivité, cette attraction demeure, mais le pic de Dirac est translaté sur H_c selon que le seuil critique pour qu'il y ait renversement de l'ensemble des hystérons se trouve à une valeur inférieure (hystérons faciles) ou supérieure (hystérons difficiles) de $|k_{intra}|$ [figures 3.11 (e) et (f)].

3.3.3 Coercivité de la courbe d'hystérésis majeure

Le modèle d'analyse physique permet de simuler n'importe quelle courbe d'hystérésis, dont la courbe d'hystérésis majeure. Il est ainsi possible de comparer également des valeurs caractéristiques de la courbe d'hystérésis majeure avec les paramètres de simulation. La coercivité sur la courbe d'hystérésis (H_c^{Hyst}) correspond au champ devant être appliqué pour ramener l'aimantation à une valeur nulle.

Lorsque le champ d'interaction externe est nul ou négatif ($k_{inter} \leq 0$), la coercivité sur la courbe d'hystérésis simulée est généralement égale à la coercivité moyenne des hystérons irréversibles utilisés, tant que ceux-ci sont majoritaires dans le système considéré. En effet, lorsqu'il y a davantage de particules se retournant de manière réversible qu'irréversible, le système atteint la situation pour laquelle son aimantation globale est nulle avant que les particules irréversibles ne commencent à se renverser.

Il n'y a qu'une seule autre situation qui résulte en une diminution de H_c^{Hyst} par rapport à la coercivité moyenne des hystérons irréversibles. Pour cela, il faut que le système contienne à la fois des hystérons réversibles et irréversibles, ces derniers présentant une distribution de valeurs de coercivité. Cette situation peut être représentée par des super-hystérons pour lesquels $\sigma(k_{intra}(\text{facile})) \neq 0$. La diminution de coercivité reste indépendante de la valeur du champ d'interaction et d'une possible distribution de valeurs de $k_{intra}(\text{difficile})$. Dans ce cas-ci, lorsque le système global exhibe une aimantation nulle, les particules réversibles et celles irréversibles de faible coercivité se sont renversées. Cependant, ce stade survient pour un champ inférieur au champ moyen nécessaire pour renverser les particules irréversibles. La figure 3.12 présente la différence de coercivité $k_{intra}(\text{facile}) - H_c^{Hyst}$ pour divers super-hystérons, selon la proportion d'hystérons difficiles, x_{rev} , et la variance de la distribution de coercivité des hystérons faciles, $\sigma(k_{intra}(\text{facile}))$.

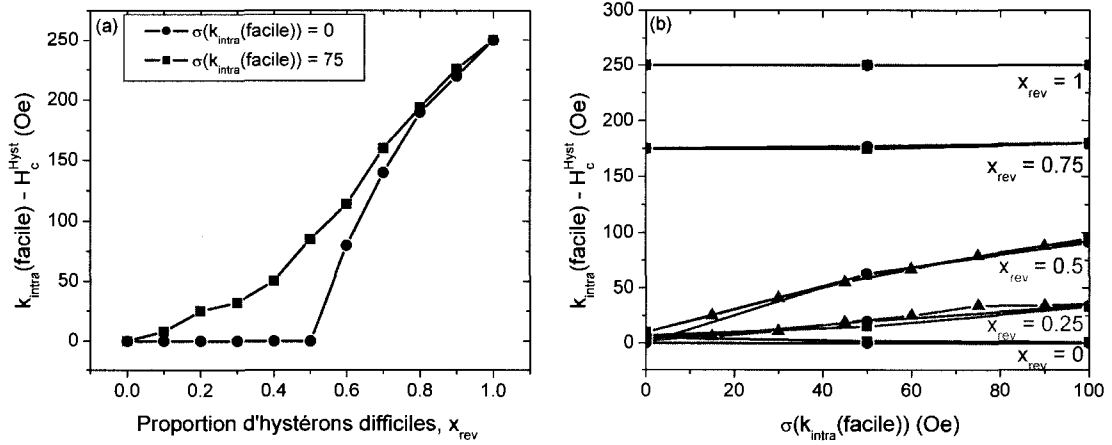


Figure 3.12 : Évolution de la différence $k_{intra}(\text{facile}) - H_c^{Hyst}$ pour un super-hystéron ($|k_{intra}| = 250$ Oe)
 (a) x_{rev} , avec $k_{inter} = -250$ Oe, $\sigma(k_{intra}(\text{difficile})) = 75$ Oe
 (b) $\sigma(k_{intra}(\text{facile}))$ avec $k_{inter} = [0, 0, -250]$ Oe, $\sigma(k_{intra}(\text{difficile})) = [0, 75, 75]$ Oe
 $\Rightarrow$ symbole = [triangle, carré, cercle]

Pour un champ d'interaction positif assez élevé pour provoquer une irréversibilité, H_c^{Hyst} diminue lorsqu'il y a une distribution de k_{intra} , peu importe le type d'hystéron.

3.3.4 Réversibilité

Un dernier point à considérer lors de l'interprétation des résultats FORC est l'intensité de la partie réversible. La figure 3.1.3 rassemble les résultats provenant des simulations présentées précédemment. Pour des raisons de facilité de lecture, ce sont les courbes de la mesure de réversibilité en fonction du champ qui sont présentées. Dans tous les cas, un champ d'interaction externe positif induisant une irréversibilité très localisée dans le système, la mesure de réversibilité est nulle à ce champ. L'indicateur de réversibilité η s'avère adéquat pour caractériser le pourcentage de réversibilité intrinsèque d'un système composé d'hystérons de base, identiques ou non [figure 3.13 (a)]. Pour les super-hystérons, η donne un résultat qualitativement correct, mais il faut prendre le minimum de la courbe du paramètre spécifique de réversibilité η_{SH} pour obtenir la véritable proportion de processus réversibles, tel que mentionné dans la section 2.2.3. Les figures 3.13 (b) et (c) montrent aussi la difficulté d'obtenir x_{rev} lorsqu'il y a une distribution d'hystérons, que ce soit à partir de η ou de η_{SH} .

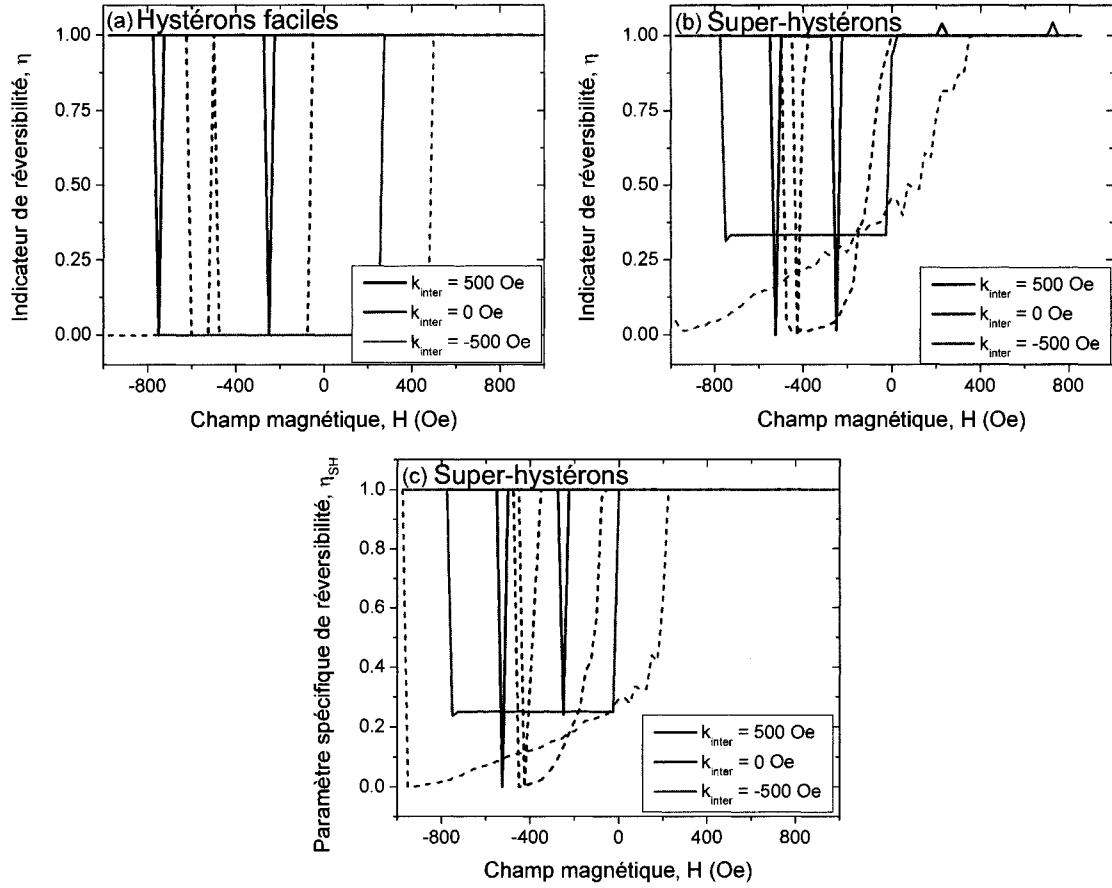


Figure 3.13 : Courbes de réversibilité en fonction du champ pour des hystérons simulés ($|k_{intra}| = 250$ Oe)
 [courbe pleine = hystérons identiques, courbe pointillée = distribution d'hystérons, $\sigma = 75$ Oe]
 (a) η , hystérons faciles (b) η , super-hystérons, $x_{rev} = 0,25$ (c) η_{SH} , super-hystérons, $x_{rev} = 0,25$

3.4 Discussion et récapitulation

Les hystérons faciles étant identiques aux hystérons mathématiques, les résultats obtenus avec le modèle d'analyse physique sont équivalents à ceux simulés avec le modèle mobile de Preisach, présentés à l'annexe A. Il est toutefois préférable d'utiliser le modèle d'analyse physique à des variantes du modèle de Preisach. Les simulations y sont plus rapides et moins bruitées, puisqu'il n'y a pas d'équation implicite à évaluer. Le principal avantage du modèle d'analyse physique est cependant qu'il est beaucoup plus versatile, permettant d'être modifié et complexifié aisément puisque les caractéristiques de chaque hystéron sont contrôlées individuellement. Ceci permet de simuler plusieurs types d'hystérons ensemble, dont des hystérons réversibles. De plus, il est possible

d'assigner une localisation à chaque hystéron, en vue de simuler un champ d'interaction fonction de la distance. La représentation d'un système en termes de caractéristiques physiques est ainsi beaucoup plus directe avec le modèle d'analyse physique qu'avec un modèle de Preisach modifié. Ce point crucial simplifie l'interprétation subséquente d'un résultat FORC expérimental, puisque les paramètres contrôlés dans la simulation correspondent directement à des caractéristiques physiques d'un système.

La figure 3.14 résume le comportement des distributions FORC pour des hystérons de base identiques, où trois zones sont délimitées dans le plan (k_{intra}, k_{inter}) . Ces trois zones sont nommées respectivement H_u , H_c et combinée. Les distributions FORC y subissent soit une extension (réversible ou irréversible) selon l'axe H_u , soit une translation sur l'axe H_c .

Cette figure montre que plusieurs situations physiques différentes peuvent mener au même résultat FORC, ce qui n'est pas avantageux lors de l'interprétation de résultats FORC expérimentaux. C'est seulement dans la zone combinée que le résultat est défini de manière unique, ce qui correspond à des hystérons faciles soumis à un champ d'interaction externe anti-parallèle ($k_{intra} > 0$, $k_{inter} < 0$). Dans les deux autres zones, il y a une sommation des deux paramètres de champ d'interaction, k_{intra} et k_{inter} . Selon le signe de l'interaction totale, les hystérons ont soit tendance à s'attirer (interaction positive) ou à se repousser (interaction négative). Ce comportement général demeure inchangé malgré une distribution de k_{intra} ou la présence de plusieurs types d'hystéron.

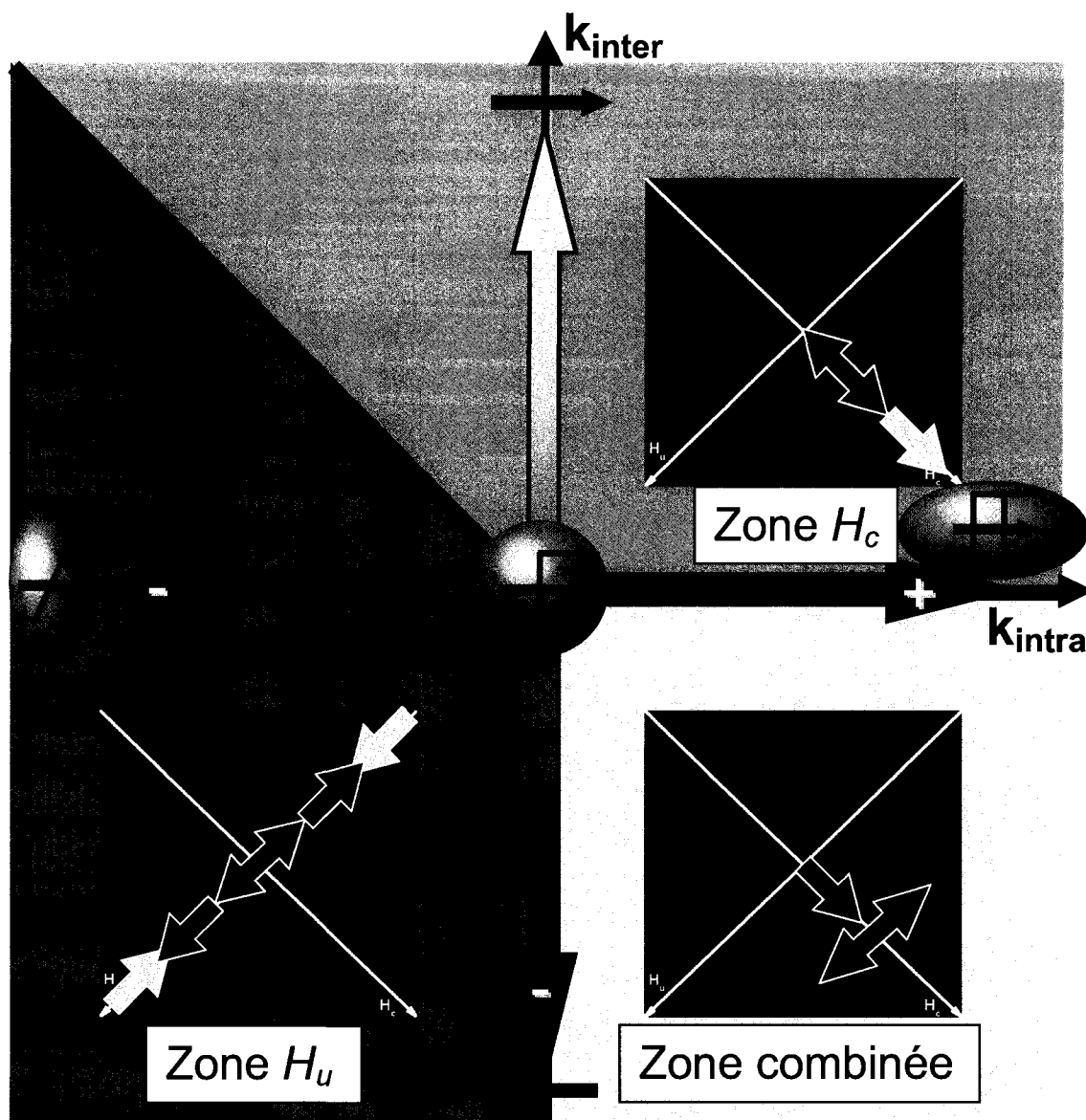


Figure 3.14 : Récapitulation du comportement des distributions FORC selon les paramètres k_{intra} et k_{inter} .

Afin de faire une interprétation correcte d'un résultat FORC, il est impératif d'employer en parallèle d'autres techniques de caractérisation magnétique (résonance ferromagnétique (FMR), microscopie à force magnétique (MFM), magnétométrie vectorielle, etc.) pour valider les hypothèses émises à propos des caractéristiques du système étudié. Ci-dessous se trouve une liste des points importants à regarder sur le résultat FORC.

Tableau 3.1 : Points importants à regarder sur un résultat FORC et leur cause

Observation visuelle	Cause	Information additionnelle
Présence de plusieurs parties	Courbes de renversement du premier ordre saturent avant la courbe inférieure de la boucle d'hystérésis	Branche représentant la fin du retournement des hystérons
	Autant de distributions d'hystérons différents qu'il y a de parties	Pour la partie irréversible, H_c^{FORC} supérieure et ΔH_u inférieur aux valeurs attendues sans partie réversible
Élongation de la partie irréversible selon l'axe H_u	Présence d'un champ d'interaction de type moyen	Hauteur uniforme
	Distribution dans la valeur de champ d'interaction perçue par les hystérons	Hauteur non-uniforme (pic)
Partie irréversible rectiligne mais non parallèle à l'axe H_u	Distribution de coercivité des hystérons avec champ d'interaction de type moyen	Coordonnées H_c de la partie vont de la coercivité minimale des hystérons (extrémité supérieure) à la coercivité moyenne des hystérons (extrémité inférieure)
Partie irréversible non rectiligne	Hystérons réversibles non rectilignes (possédant un changement de signe de courbure)	Diminution de H_c^{Hyst} et de H_c^{FORC} (par rapport à la coercivité moyenne des hystérons irréversibles)
Élargissement de la partie irréversible selon l'axe H_c	Distribution de coercivité des hystérons sans champ d'interaction de type moyen	Distribution de coercivité donnée par la section selon l'axe H_c

Néanmoins, il est primordial de se rappeler que ces interprétations ne sont valables que dans le cas où le système étudié peut être décomposé en hystérons de base ou Stoner-Wohlfarth. Dans le cas contraire, le résultat FORC demeure une représentation des différents processus de renversement de l'aimantation dans le système, mais un modèle adéquat doit être employé afin d'interpréter correctement le résultat FORC.

Ceci complète le premier volet de cette thèse. Mes contributions à la technique de caractérisation des FORC se situent donc à plusieurs niveaux :

- Optimisation de la méthodologie à suivre lors de l'acquisition des courbes pour obtenir un résultat FORC précis dans un temps raisonnable,
- Élaboration d'outils donnant une indication de la proportion de processus réversibles (indicateur de réversibilité η et paramètre spécifique de réversibilité η_{SH}),
- Conception d'une méthode de calcul permettant d'obtenir la représentation complète des processus irréversibles, sans perte d'information dans la région quasi-réversible (diagramme FORC extrapolé),
- Élaboration d'une représentation graphique complète des informations tirées des courbes de renversement du premier ordre (résultat FORC),
- Développement d'un modèle servant de cadre d'interprétation aux résultats FORC provenant de nanostructures (modèle d'analyse physique).

Les trois objectifs spécifiques concernant les courbes de renversement du premier ordre ont ainsi été atteints. Le diagramme FORC extrapolé permet d'obtenir la représentation complète des processus irréversibles, l'indicateur de réversibilité η et le paramètre spécifique de réversibilité η_{SH} donnent une indication de la réversibilité en fonction du champ, tandis que le modèle d'analyse physique permet l'interprétation des résultats FORC selon les caractéristiques d'entités magnétiques de base. Ce travail s'est avéré nécessaire pour être en mesure d'appliquer la technique des FORC sur des réseaux de nanofils et d'en extraire des informations pertinentes, ce qui constitue le prochain volet de cette thèse.

Partie II

Réseaux de nanofils ferromagnétiques

*Religion is a culture of faith;
science is a culture of doubt.*

- Karl Popper

*Je puis douter de la réalité de tout,
mais pas de la réalité de mon doute.*

- André Gide

*Si rien n'est moins sûr que l'incertain,
rien n'est plus certain que ce qui est aussi sûr.*

- Pierre Dac

L'objectif global de cette thèse consiste à caractériser les résultats FORC expérimentaux de réseaux de nanofils, afin d'obtenir des informations quantitatives relatives au renversement de l'aimantation, pour finalement être en mesure de simuler le comportement magnétique des réseaux de nanofils. En ce sens, l'expertise accumulée et développée dans la partie précédente est appliquée à divers réseaux de nanofils, dont une partie avait précédemment été fabriquée pour les besoins de ma maîtrise.

Plus spécifiquement, les objectifs concernant les réseaux de nanofils ferromagnétiques sont de mesurer et calculer les résultats FORC expérimentaux de divers réseaux de nanofils, puis d'interpréter et de caractériser quantitativement les résultats obtenus expérimentalement en termes de phénomènes physiques se produisant lors du renversement de l'aimantation

C'est justement au niveau de l'interprétation physique des résultats FORC et de leur quantification que se situe ma contribution la plus importante dans le domaine des réseaux de nanofils ferromagnétiques. En effet, les autres études utilisant les courbes de renversement du premier ordre présentent toutes une lacune à ce sujet, puisqu'elles ne sont pas fondées sur un modèle d'interprétation physique.

Chapitre 4: Présentation générale

Facts do not cease to exist because they are ignored.
- Aldous Huxley

Afin de tester la technique des courbes de renversement du premier ordre comme outil de caractérisation expérimental, elle a été appliquée à un système nanostructuré. Ce système est composé d'une grande quantité de nanofils ferromagnétiques assemblés en un réseau rigide. Il constitue, de par sa géométrie, un matériau de test et de développement idéal pour la technique en question. Les nanofils peuvent avoir deux structures différentes: uniforme, i.e. l'ensemble du nanofil est composé uniformément du même matériau ferromagnétique, ou multicouche, i.e. le nanofil est composé d'une alternance de disques ferromagnétiques et non-magnétiques. Le présent chapitre expose les avantages pour les intégrer à des dispositifs à haute fréquence, la technique de fabrication et les détails concernant la caractérisation magnétique des réseaux de nanofils ferromagnétiques. Les résultats FORC mesurés parallèlement et perpendiculairement à l'axe des nanofils sont présentés et discutés dans les chapitres suivants, autant pour les réseaux de nanofils uniformes que multicouches.

4.1 Structure

Il est relativement aisé de mesurer expérimentalement les courbes de renversement du premier ordre de n'importe quel système hystérétique. La difficulté réside principalement dans l'interprétation des résultats, tel que démontré dans le chapitre précédent. Deux paramètres sont particulièrement importants afin d'être en mesure d'appliquer le modèle d'analyse physique : la connaissance des cycles d'hystérésis des phénomènes élémentaires et celle des interactions présentes.

En ce sens, les réseaux de nanofils ferromagnétiques constituent un système modèle pour tester et développer expérimentalement la méthode FORC. Premièrement, chaque nanofil correspond à un cylindre magnétique fortement anisotrope [figure 4.1 (a)]. Leur diamètre varie entre 15 et 200 nm, pour des longueurs allant de 1 à 60 μm , mais de manière à conserver un ratio longueur sur diamètre supérieur à 30. Cette anisotropie définit ainsi deux directions principales pour l'application du champ magnétique, soit axiale, parallèle à l'axe du nanofil, et transverse, perpendiculaire à l'axe du nanofil.

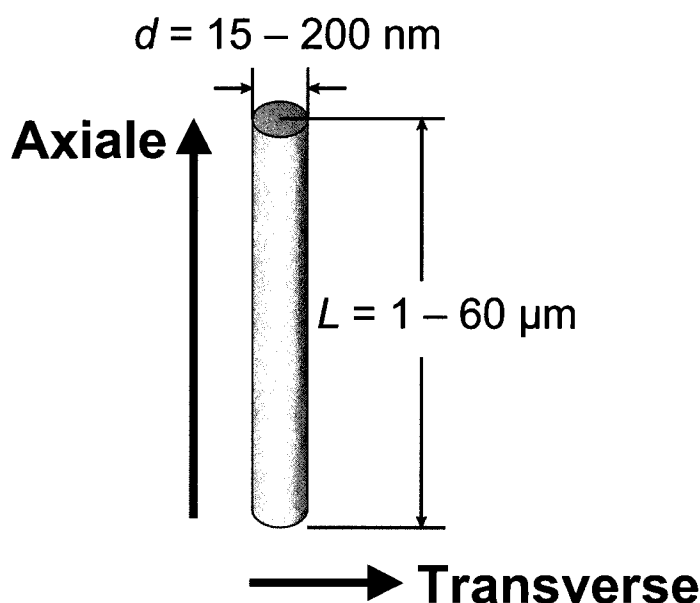


Figure 4.1 : Schéma d'un nanofil.

Les deux hystérons représentant le comportement théorique d'un nanofil individuel selon le modèle de Stoner-Wohlfarth correspondent ainsi aux deux cas limites du modèle, soit les hystérons de base facile et difficile (figure 4.2). En effet, lorsque le champ magnétique est axial, l'aimantation demeure alignée selon l'axe des nanofils jusqu'à l'atteinte de la coercivité. À ce moment, l'ensemble des spins se renverse d'un coup, afin de s'aligner anti-parallèlement à la direction d'origine, ce qui résulte en un comportement irréversible [figure 4.2 (a)]. Dans la direction transverse, le renversement de l'aimantation est plutôt réversible, les spins effectuant une rotation cohérente vers l'axe du nanofil [figure 4.2 (b)].

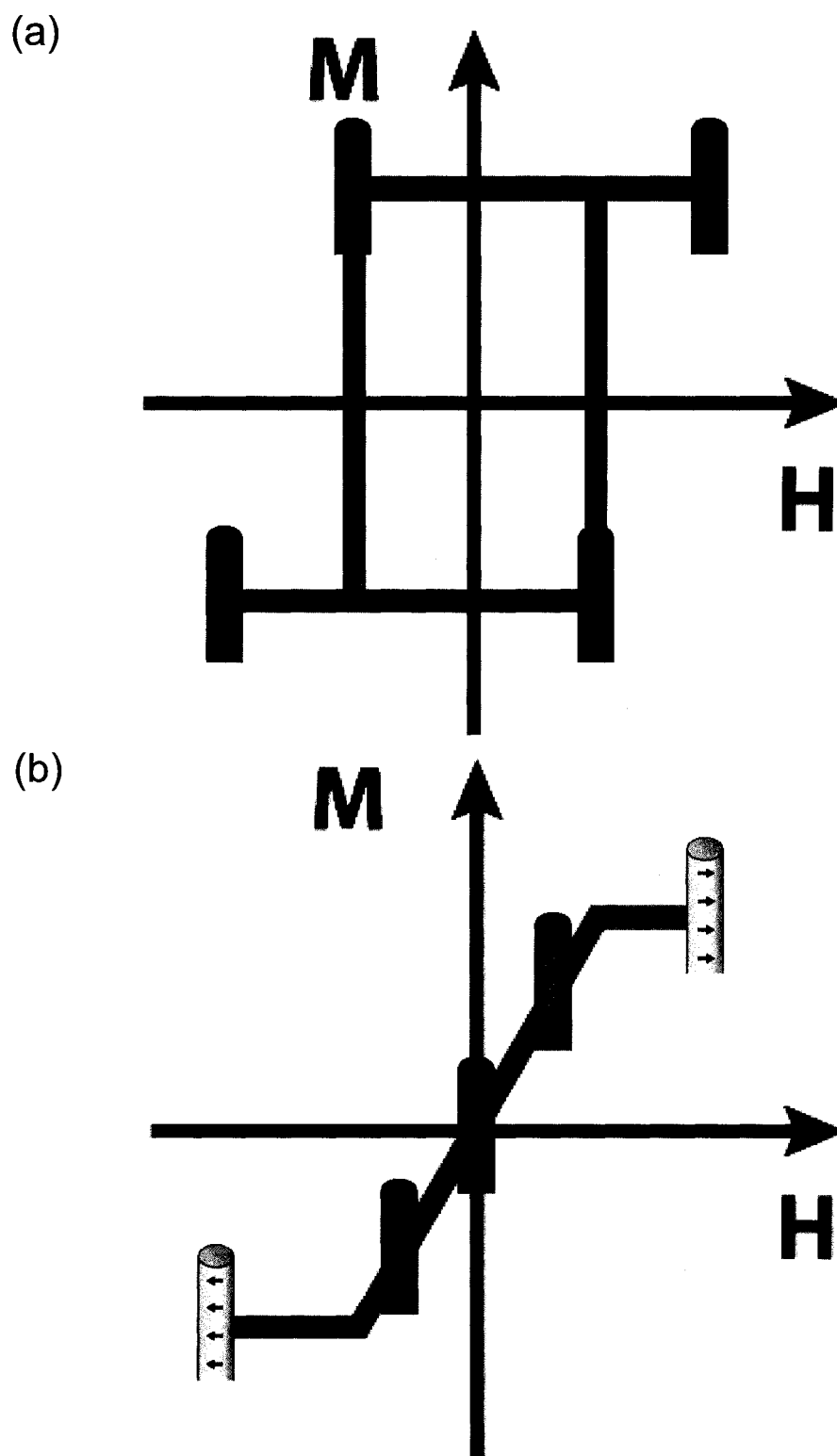


Figure 4.2 : Comportement théorique d'un nanofil individuel, selon la direction d'application du champ.
 (a) Direction axiale (b) Direction transverse

Deuxièmement, ces nanofils sont ordonnés dans un réseau rigide qui les empêche de se déplacer (voir section 4.3 pour plus de détails). Ils sont placés parallèlement les uns aux autres, avec une faible distance centre-à-centre entre proches voisins (de 50 à 300 nm, selon le diamètre) (figure 4.3). À cause des interactions dipolaires entre les nanofils, cette proximité résulte en un champ d'interaction élevé qui peut être modélisé^{6, 56, 57}.

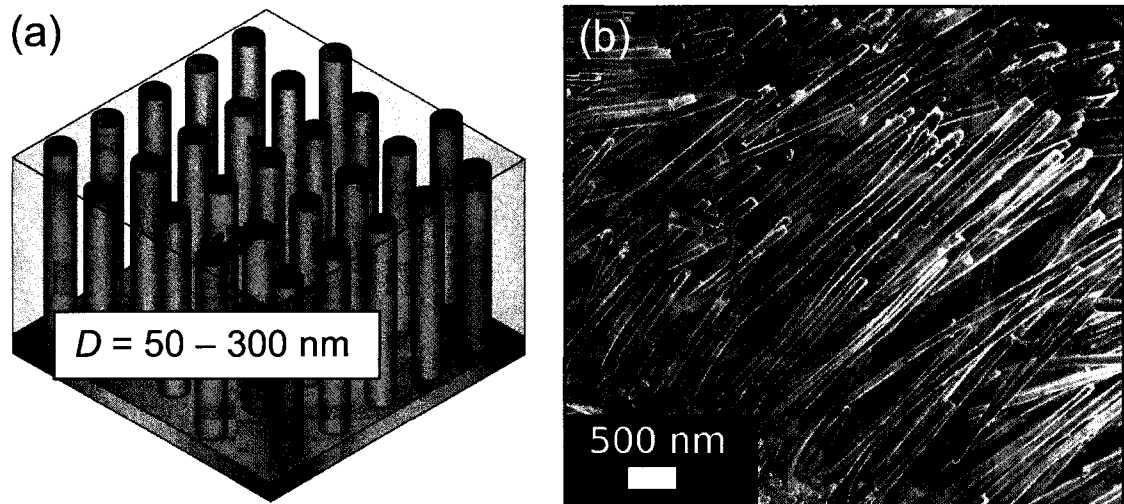


Figure 4.3 : Réseau de nanofils.

(a) Schéma (b) Vue en section d'un réseau après dissolution de la membrane (courtoisie : L.-P. Carignan)

4.2 Dispositifs à haute fréquence

Les réseaux de nanofils ferromagnétiques possèdent des propriétés qui en font des candidats intéressants pour plusieurs applications variées. Cette étude s'inscrit dans le cadre d'un projet de recherche visant à développer des dispositifs novateurs fonctionnant à haute fréquence (dans les gigahertz), puisque la fréquence de résonance des réseaux se situe dans cette gamme. Dans ce cas, les nanofils servent d'inclusions métalliques dans une matrice diélectrique, résultant en un métamatériau. Leur nature magnétique permet de contrôler les propriétés électromagnétiques du matériau et donc la réponse lors de l'application d'une onde électromagnétique. Comparativement aux ferrites actuellement utilisées dans ce genre de dispositifs, les réseaux de nanofils présentent quatre principaux avantages : 1) intégration des nanofils au substrat, 2) réduction de la taille des dispositifs, 3) affranchissement du besoin d'aimants

permanents externes, puisque les réseaux peuvent avoir une aimantation rémanente élevée, et finalement, 4) fréquence d'opération plus élevée, due à une aimantation à saturation élevée. Un circulateur prévient l'interférence entre les modules de transmission et de réception reliés à une antenne (figure 4.4). C'est un des dispositifs couramment employés dans la technologie micro-onde qui pourrait être fabriqué à partir de réseaux de nanofils magnétiques.²

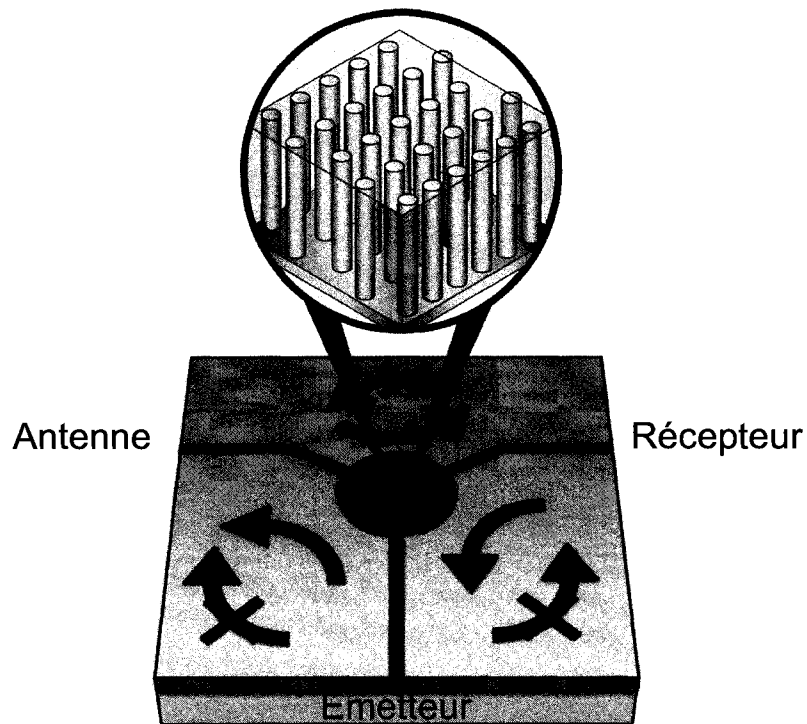


Figure 4.4 : Schéma d'un circulateur à trois ports à base de réseaux de nanofils ferromagnétiques. Les flèches indiquent le sens possible de propagation de l'onde électromagnétique.

4.3 Fabrication des réseaux

Cette section présente un survol de la technique de fabrication des réseaux de nanofils utilisés pour cette étude. Le lecteur intéressé par de plus amples détails est référé au chapitre 3 de la référence [11].

Les réseaux de nanofils ferromagnétiques sont habituellement fabriqués par électrodéposition des ions métalliques dans les pores cylindriques d'une membrane diélectrique, généralement d'alumine (figure 4.5).⁵⁸ Cette méthode possède plusieurs

avantages : elle est économique en termes d'équipement (pas de système à vide requis) et de matériaux, rapide et versatile. En effet, il est aisé de changer le matériau à déposer, que ce soit un alliage ou non, et de contrôler non seulement la longueur finale des nanofils, mais aussi les diverses concentrations de matériaux le long des nanofils. Avec un seul bain électrolytique, il est ainsi possible de fabriquer des réseaux de nanofils multicouches, i.e. composés d'une alternance de disques magnétiques et non-magnétiques.^{59, 60} En ajustant le pH du bain, la cristallinité des nanofils peut être modifiée⁶¹, tandis que les surfactants ajoutés vont jouer sur le taux de remplissage des pores, en contrôlant la formation d'hydrogène gazeux⁶². Finalement, les paramètres de déposition (cycle de travail, densité de courant, etc.) influencent les propriétés magnétiques des réseaux de nanofils obtenus.^{11, 62}

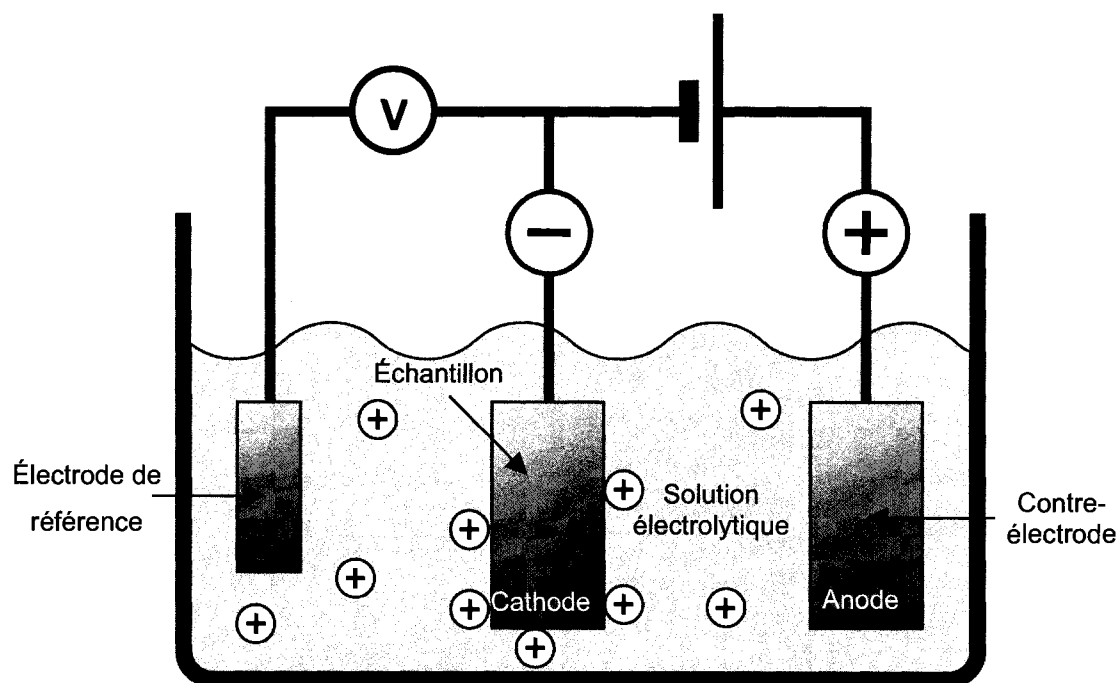


Figure 4.5 : Schéma d'une cellule électrolytique pour l'électrodéposition.

L'appareil de déposition peut être employé soit comme un galvanostat (contrôle du courant) soit comme un potentiostat (contrôle du potentiel). Pour fabriquer des nanofils uniformes exempts de gradients de concentration, l'utilisation de courtes impulsions de courant suivies de temps de repos (électrodéposition par courant pulsé) est

privilégiée [figure 4.6 (a)].⁶³ Dans le cas de nanofils multicouches fabriqués dans un seul bain électrolytique, le potentiel est alterné entre deux valeurs, chaque matériau étant déposé majoritairement pour un des deux potentiels [figure 4.6 (b)].⁶⁴

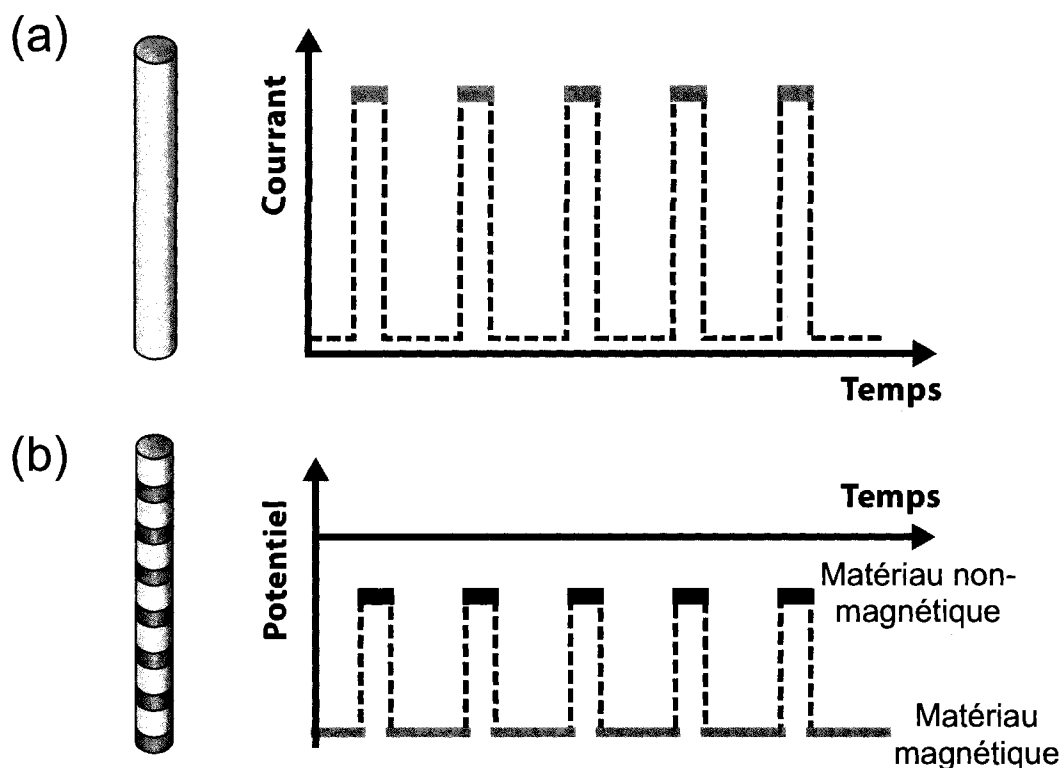


Figure 4.6 : Influx électrique lors de l'électrodéposition. (a) Courant pulsé (b) Potentiel alterné
La déposition des divers matériaux est représentée par les lignes grises.

Des membranes d'alumine commerciales Anodisc™ 0.02 μm du fabricant Whatman Ltd ont été principalement employées lors de la fabrication des échantillons. Des mesures prises au microscope électronique à balayage ont permis de les caractériser géométriquement : épaisseur = 60 μm , diamètre des pores = 175 nm, distance interpore = 300 nm, densité de pores = 10^9 pores/ cm^2 (valeurs moyennes, figure 4.7 (a)). Le diamètre réel des pores diffère grandement du diamètre nominal puisque ces membranes sont destinées initialement à la filtration de fluide. Les pores sont de diamètre constant sur la majorité de l'épaisseur de la membrane, puis se séparent en plusieurs pores de diamètre diminuant jusqu'au diamètre nominal. Ce phénomène se produit sur une épaisseur d'environ 500 à 750 nm, à la base des nanofils [figure 4.7 (b)], et sera référé par l'appellation « zone de filtration ».

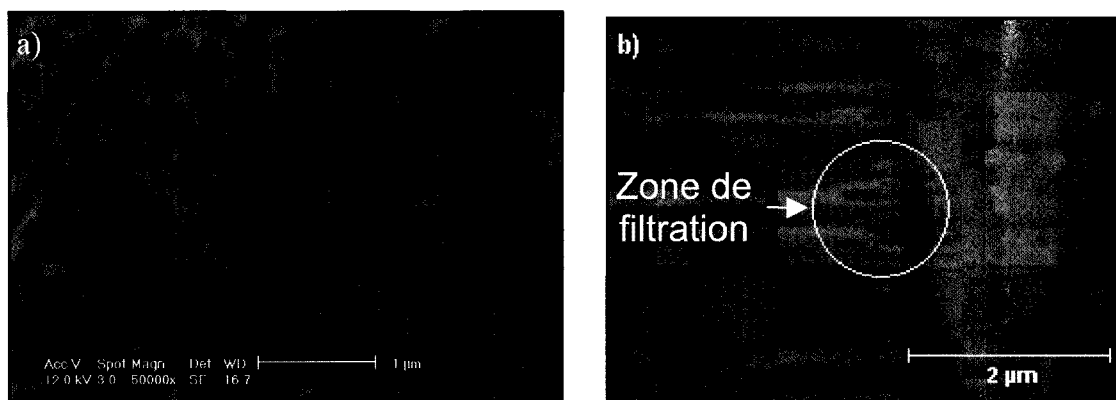


Figure 4.7 : Membrane Anodisc™ 0.02 μm .
(a) Vue du dessus (b) Base des pores (courtoisie : L.-P. Carignan).

4.4 Caractérisation magnétique

La majorité des mesures magnétiques expérimentales effectuées sur les réseaux de nanofils dans le cadre de cette étude ont été faites par magnétométrie, i.e. avec un champ magnétique statique. Ce sont donc les propriétés magnétostatiques qui ont été investiguées, à l'aide d'un magnétomètre à échantillon vibrant. Les courbes d'hystérésis majeures, les courbes de renversement du premier ordre ainsi que les courbes d'hystérésis vectorielles y ont été mesurées. Des spectres de résonance ferromagnétique, une technique de caractérisation de l'aimantation dynamique, ont aussi été acquis par Louis-Philippe Carignan et Christian Lacroix afin de valider certaines hypothèses.

4.4.1 Magnétomètre à échantillon vibrant

Le fonctionnement d'un magnétomètre à échantillon vibrant (VSM) repose sur le principe de l'induction magnétique. Il a été inventé par Foner en 1956.⁶⁵ L'échantillon est placé au centre d'un électroaimant fournissant un champ magnétique externe H [figure 4.8 (a)], ce qui crée un moment magnétique dans l'échantillon dont la grandeur dépend des valeurs actuelles et anciennes de H , ainsi que des propriétés magnétostatiques du matériau. Afin de mesurer le moment magnétique, l'échantillon est placé sur une tige vibrante verticale dont la fréquence est fixe. Ce mouvement vertical modifie le flux magnétique $\Phi(t)$ traversant des bobines de cuivre positionnées de part et

d'autre de l'échantillon et servant de détecteurs. Le changement de $\Phi(t)$ induit une tension $V(t)$, proportionnelle au moment magnétique, dans les détecteurs :

$$V(t) = -\frac{d(\Phi(t))}{dt} \quad (4.1)$$

Ainsi, l'aimantation de l'échantillon en fonction du champ magnétique appliqué peut être mesurée.

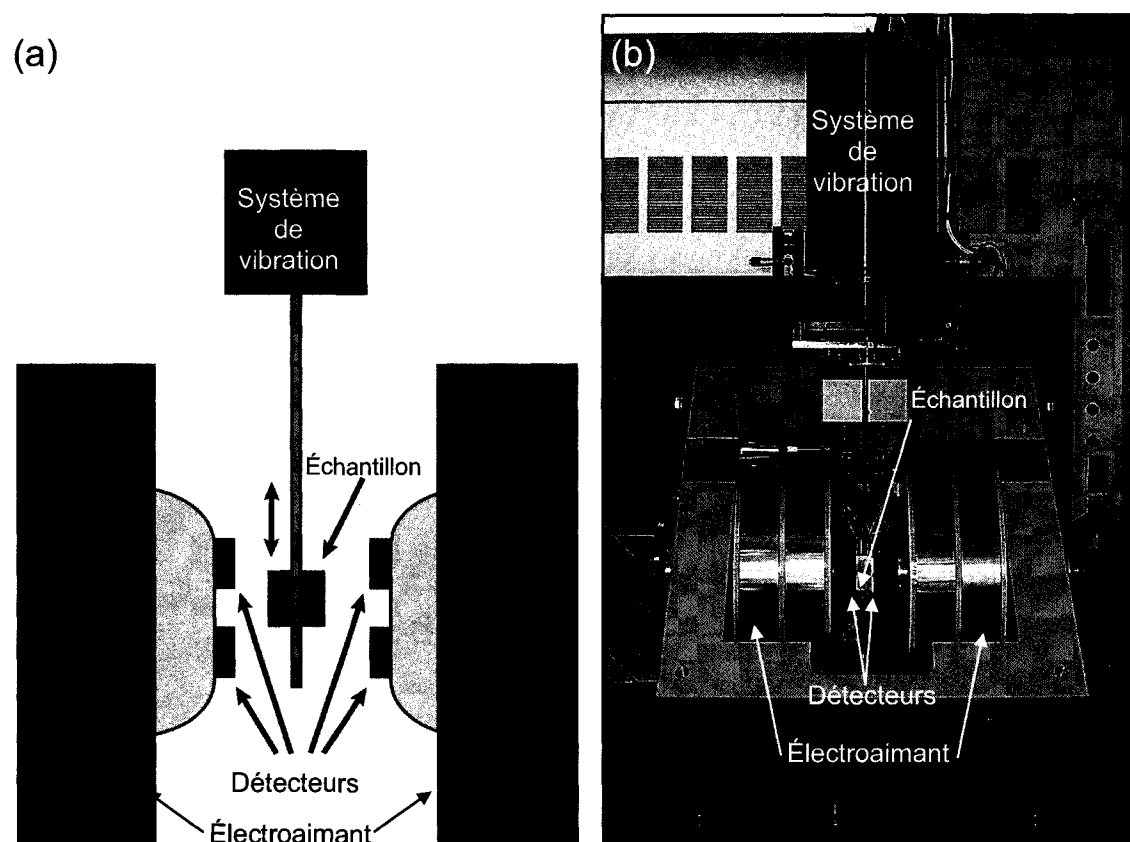


Figure 4.8 : Magnétomètre à échantillon vibrant. (a) Schéma de principe (b) Appareil utilisé

Le magnétomètre employé durant cette étude est un modèle EV9, de ADE Technologies, une filiale de KLA-Tencor, situé dans le Laboratoire de Magnéto-électronique du Prof. David Ménard [figure 4.8 (b)]. Cet appareil permet d'appliquer un champ maximal de 22 500 Oe (2,25 Tesla) et possède une sensibilité inférieure à 1 μ emu. De plus, il est possible d'effectuer des mesures sur un vaste intervalle de températures allant de 100 à 900 K, d'effectuer des rotations jusqu'à 540°

et de mesurer la composante transverse de l'aimantation (voir section suivante). Sauf indication contraire, les mesures d'aimantation ont été effectuées à température ambiante. Son utilisation est entièrement contrôlée par ordinateur. La séquence d'acquisition voulue doit donc être préalablement enregistrée sous la forme d'un fichier de routine interprétable par l'appareil. Un script *MatLab* a été créé afin de facilement et rapidement obtenir la séquence d'acquisition des courbes de renversement du premier ordre, ce type de mesure n'étant pas implanté dans le logiciel de contrôle venant avec l'appareil.

4.4.2 Courbes d'hystérésis vectorielles

Alors que les détecteurs de base d'un magnétomètre à échantillon vibrant permettent de mesurer uniquement le signal provenant de l'aimantation (M_x) dans la direction du champ magnétique appliquée (H_x), des détecteurs vectoriels donnent l'opportunité de mesurer également la composante transverse de l'aimantation (M_y) (figure 4.9).

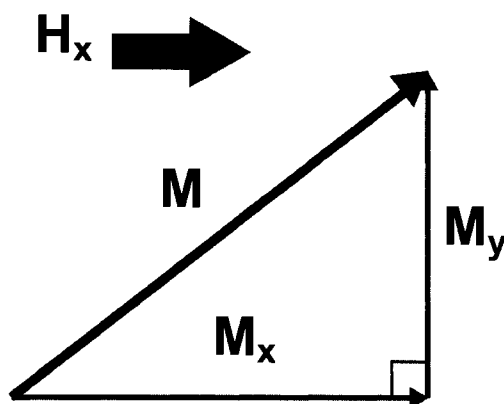


Figure 4.9 : Décomposition du vecteur aimantation M en composantes parallèle (M_x) et transverse (M_y).

Étant donné la géométrie d'un réseau de nanofils, trois configurations différentes existent. En effet, lorsque M_x est axiale, M_y ne peut qu'être transverse [figure 4.10 (a)]. Cependant, lorsque M_x est placée dans la direction transverse, il est possible de placer M_y soit axiale [figure 4.10 (b)], soit transverse elle aussi, mais perpendiculaire à M_x [figure 4.10 (c)].

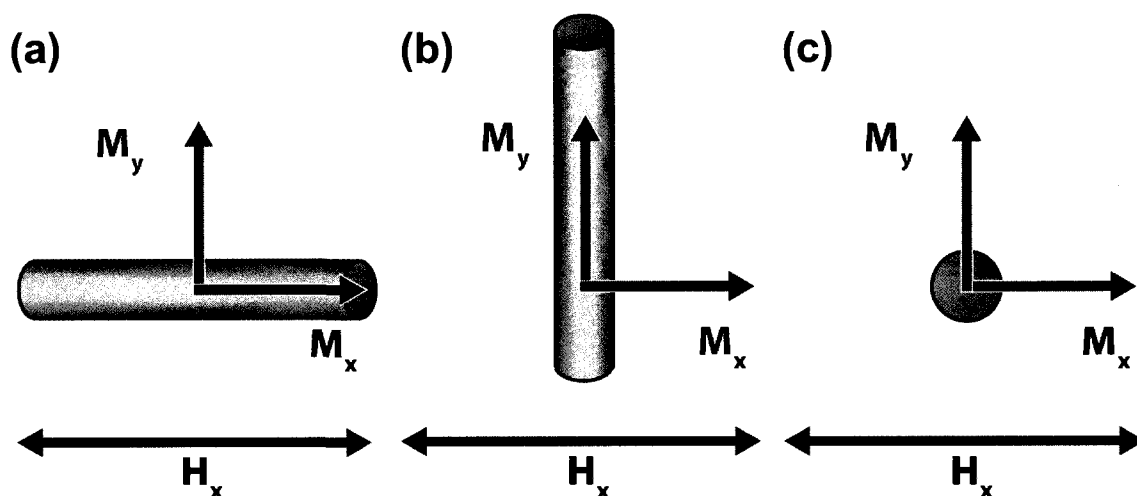


Figure 4.10 : Configurations possibles pour des courbes d'hystérésis vectorielles de réseaux de nanofils.
 (a) M_x : axiale, M_y : transverse (b) M_x : transverse, M_y : axiale et (c) M_x : transverse, M_y : transverse

Les signaux recueillis perpendiculairement au champ pouvant être très faibles, une attention particulière doit être portée lors de la soustraction des signaux engendrés par des agents extérieurs à l'échantillon magnétique. Il faut notamment mentionner qu'un signal linéaire de l'ordre de 120 μemu à 5000 Oe, est mesuré, et ce, en l'absence de porte-échantillon. De plus, l'alignement du champ avec l'échantillon se trouve à être critique dans cette direction à cause de la géométrie, M_x et M_y étant donnés respectivement par les fonctions cosinus et sinus de l'angle entre H_x et l'aimantation. Une faible déviation par rapport à l'angle voulu a donc des conséquences plus importantes sur le signal mesuré en y [figures 4.11 (b) à (d)].

Les courbes d'hystérésis vectorielles des réseaux de nanofils uniformes et multicouches ont été mesurées à température ambiante, dans les trois configurations. Pour tous les échantillons mesurés, le signal net en y est demeuré en deçà de 1 % du signal total, après ajustement de l'angle de mesure (figure 4.11). Dans ces cas, M_y peut donc être considéré comme nul. Ainsi, lors du renversement de l'aimantation, soit il n'y a aucune composante de l'aimantation selon y , soit elle demeure, en moyenne, nulle. L'ensemble du réseau ne se renverse donc pas par rotation cohérente, ce qui n'exclut pas que les nanofils ou les nanodisques puissent se renverser individuellement par rotation cohérente.

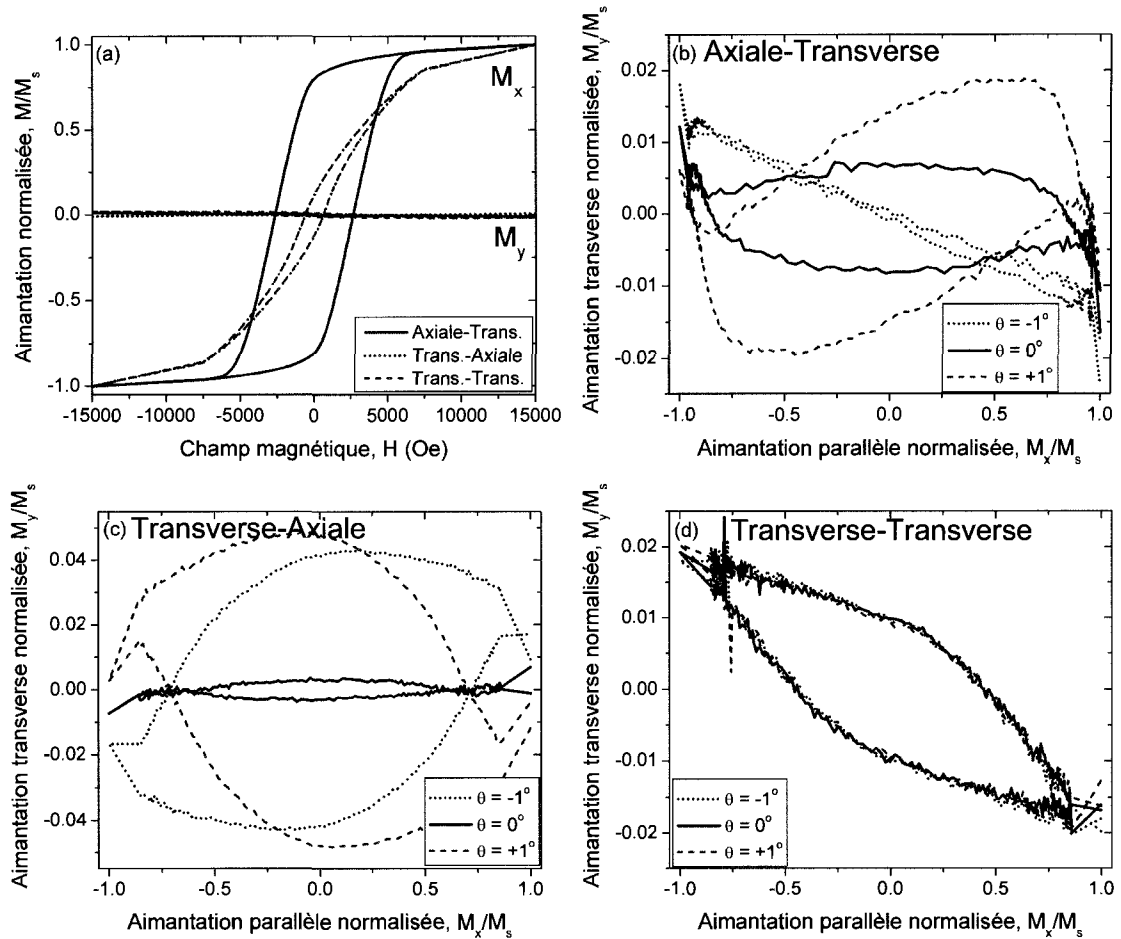


Figure 4.11 : Courbes d'hystérésis vectorielles typiques d'un réseau de nanofils.

(a) En fonction du champ magnétique parallèle H_x

(b) à (d) M_x vs M_y pour les configurations respectivement montrées à la figure 4.10

Le signal M_y mesuré dans la configuration transverse-transverse est présumé être causé par une non-uniformité dans l'épaisseur du substrat ou du porte-échantillon.

(Réseau de nanofils de CoFe, $d = 15$ nm, $D = 55$ nm, $L = 1,6$ μ m)

Ainsi, la géométrie particulière des réseaux de nanofils ferromagnétiques rend cette nanostructure particulièrement intéressante pour tester l'application expérimentale des courbes de renversement du premier ordre. Les réseaux utilisés dans le cadre de cette étude ont été fabriqués par électrodéposition dans des membranes d'alumine, puis caractérisés principalement à l'aide d'un magnétomètre à échantillon vibrant. Les résultats obtenus à l'aide de la technique des FORC sur des réseaux de nanofils uniformes (chapitre 5) et multicouches (chapitre 6) permettront d'aider à la conception de dispositifs à haute fréquence.

Chapitre 5: Réseaux de nanofils uniformes

*Ne me dites pas que ce problème est difficile.
S'il n'était pas difficile, ce ne serait pas un problème.*
- Maréchal Foch

Le comportement théorique des nanofils uniformes individuels suit les courbes d'aimantation décrites par les hystérons de base facile et difficile, selon la direction de la mesure. Les résultats FORC correspondants devraient ainsi se situer dans le plan (k_{intra}, k_{inter}) décrit à la section 3.4, puisque les nanofils sont soumis à un champ d'interaction dû à l'agencement en réseau, soit anti-parallèle (direction axiale) soit parallèle (direction transverse). Les écarts observés par rapport à ce comportement théorique complexifient l'interprétation des résultats FORC expérimentaux, puisque le modèle d'analyse physique correspond à une vision simplifiée de la réalité. La provenance de ces écarts est étudiée, selon le matériau des nanofils et leurs dimensions géométriques, afin de bâtir un modèle complet du comportement magnétique des nanofils ferromagnétiques dans un réseau.

5.1 Revue de littérature

Deux aspects du comportement magnétique des réseaux de nanofils uniformes discutés précédemment dans la littérature sont abordés dans cette section. Il s'agit des interactions dipolaires et des mécanismes de renversement de l'aimantation. Seuls les caractéristiques applicables à des réseaux de nanofils de géométrie semblable à ceux étudiés dans cette étude (ratio longueur sur diamètre supérieur à 30) sont discutées.

5.1.1 Modélisation du champ d'interaction

Plusieurs approches ont été utilisées afin de modéliser le champ d'interaction dans un réseau de nanofils. Le principal problème réside dans la quantité de nanofils devant être prise en compte lors du calcul afin d'obtenir un résultat représentatif d'un réseau réel. Dans la direction axiale, Hertel a effectué des calculs micromagnétiques avec un réseau de 16 nanofils.⁶⁶ Étant donné le faible nombre de nanofils considérés, la valeur de champ d'interaction à la saturation est présumée inférieure à la valeur provenant d'un réseau infini. Le champ d'interaction n'est pas uniforme le long des nanofils, étant plus élevé aux extrémités.

Afin de pouvoir calculer une valeur reflétant un réseau infini, Clime *et al.* ont proposé l'idée de séparer le réseau en deux zones.⁵⁶ Typiquement 50 000 nanofils constituent la zone centrale, où le calcul des interactions est fait de manière discrète et numérique. L'influence du reste du réseau est calculée analytiquement. Ce calcul a mené à l'obtention d'une expression phénoménologique du champ d'interaction à la saturation :⁵⁷

$$H_{\text{int}} = M_s r^2 (a(D) \cdot L + b(D)) \quad (5.1)$$

où $a(D)$ et $b(D)$ sont des fonctions phénoménologiques dépendantes de la distance entre les nanofils (D). Les résultats obtenus montrent un champ d'interaction maximal près des extrémités des nanofils, dans la direction axiale.

Carignan *et al.* ont par après développé un modèle de champ effectif dans des réseaux de nanofils basé sur des expressions des facteurs de désaimantation inter et intra-fils.⁶ Dans la direction axiale, ces calculs suivants ont permis de montrer que la localisation en hauteur de la valeur maximale de champ d'interaction dépendait de la taille du réseau considéré. Lorsque la longueur des nanofils est inférieure au rayon du réseau, le champ d'interaction est maximal près des extrémités des nanofils, tandis qu'il est maximal au centre des nanofils lorsque leur longueur est très supérieure au rayon du réseau (figure 5.1).

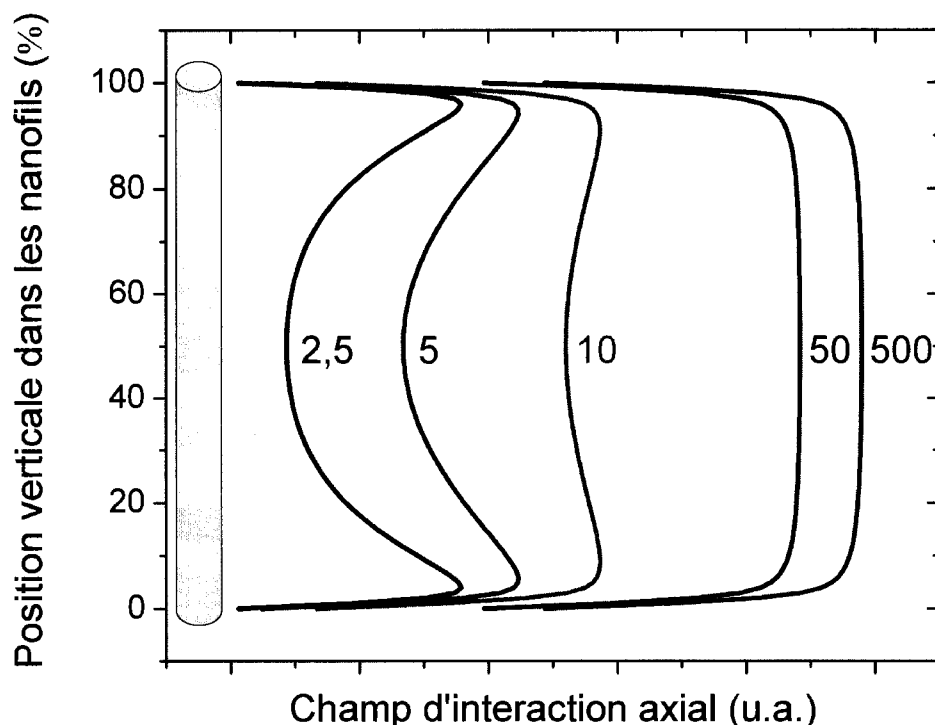


Figure 5.1 : Variation du champ d'interaction à la saturation selon la hauteur dans un nanofil, pour des réseaux de différents rayons (en μm). ($L = 10 \mu\text{m}$, $D = 333 \text{ nm}$, courtoisie : L.-P. Carignan)

5.1.2 Mécanismes de renversement de l'aimantation

5.1.2.1 Direction axiale

Le mécanisme de renversement de l'aimantation axiale d'un nanofil diffère de celui d'un cylindre infini. Wernsdorfer *et al.* ont montré expérimentalement que, pour un nanofil individuel de nickel (ratio longueur sur diamètre entre 60 et 330), le renversement de l'aimantation s'effectuait par nucléation et propagation d'une paroi de domaine (figure 5.2), et non par rotation cohérente.⁶⁷ Hertel est parvenu à la même conclusion pour des réseaux de quelques nanofils de nickel, via des simulations micromagnétiques.⁶⁶ Pour un nanofil individuel, la structure de la paroi de domaine est principalement le résultat de la compétition entre l'énergie d'échange et l'énergie de désaimantation. Ainsi, pour de faibles diamètres, la paroi de domaine est transverse, tandis qu'elle prend la forme d'un vortex pour de plus grands diamètres. Cette transition s'effectue autour de 40 nm de diamètre pour le Ni.⁶⁸

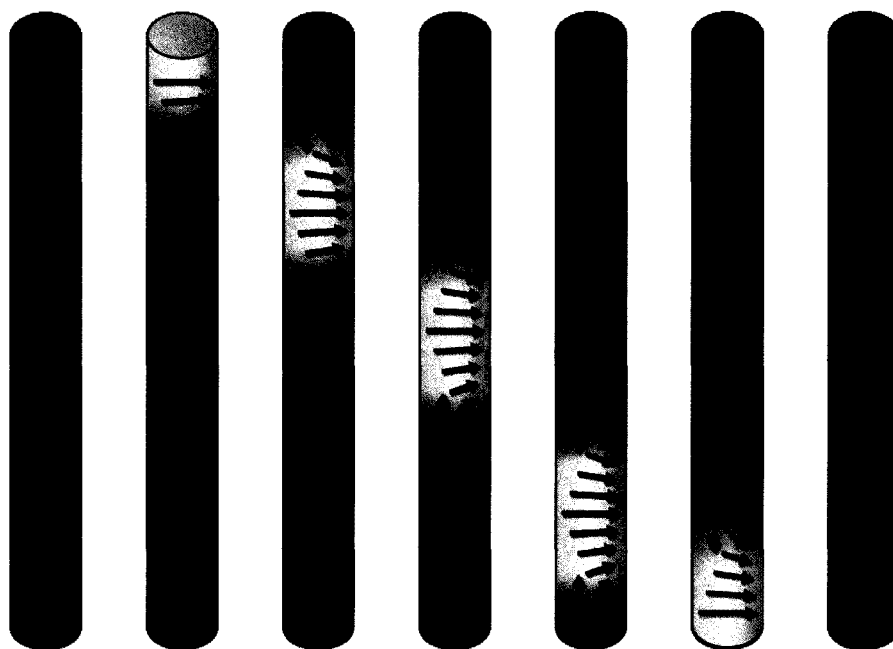


Figure 5.2 : Représentation schématique du renversement de l'aimantation d'un nanofil par nucléation et propagation d'une paroi de domaine.

5.1.2.2 Direction transverse

Beaucoup moins d'études se sont intéressées à la direction transverse. Néanmoins, des études expérimentale⁶⁹ et théorique⁶⁶ ont montré que l'état rémanent d'un nanofil isolé après une saturation transverse diffère de la prédiction pour une particule obéissant au modèle de Stoner-Wohlfarth. L'aimantation, au lieu d'être complètement alignée selon l'axe du nanofil, crée plusieurs domaines de direction anti-parallèle le long du nanofil [figure 5.3 (a)]. Cette division provient du fait que deux régions du nanofil, assez éloignées l'une de l'autre pour être découplées, peuvent donc avoir leur aimantation se renversant en direction d'une extrémité ou de l'autre du nanofil, sans préférence. Une paroi de domaine est donc uniquement créée lorsque deux régions consécutives se renversent en des directions opposées. Henry *et al.* attribuent à ce mécanisme aléatoire le fait que le nombre et la longueur des domaines créés à la rémanence ne demeurent pas constants pour le même nanofil.⁶⁹

Hertel a montré par simulation micromagnétique que, autant pour un nanofil isolé que pour un réseau de quelques nanofils, la séparation en domaines mène à la création de parois de domaine à 180° [figure 5.3 (b)]. Ils sont orientés vers la saturation positive, ce qui explique la faible aimantation rémanente. Il attribue la coercivité des courbes d'hystérésis au renversement irréversible de ces parois de domaine.⁶⁶

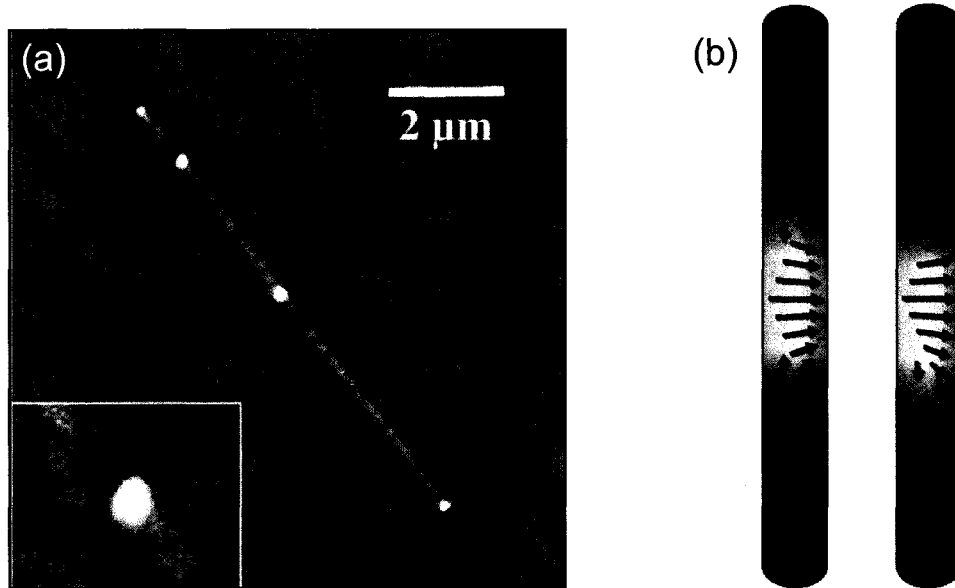


Figure 5.3 : État rémanent transverse d'un nanofil isolé.

(a) Microscopie à force magnétique d'un nanofil de Co (tirée de [66]).

La direction de l'aimantation des différents domaines est indiquée via les flèches rouges et bleues.

(b) Schémas des orientations possibles de l'aimantation dans des parois de domaine à 180°

5.2 Échantillons

Les caractéristiques des séries d'échantillons de réseaux de nanofils uniformes sont regroupées dans le tableau 5.1, où les valeurs données correspondent aux valeurs moyennes. En utilisant des réseaux de nanofils de Ni comme référence, l'influence de la composition et des dimensions géométriques a été étudiée. Sauf indication contraire, les résultats présentés proviennent, pour chaque série, d'un échantillon choisi pour son comportement représentatif de sa série. La longueur de ces nanofils est indiquée entre parenthèses. La direction de l'axe facile influençant fortement le comportement magnétique, tous les échantillons analysés ont leur axe facile dans la direction axiale.

Tableau 5.1 : Caractéristiques des séries d'échantillons de réseaux de nanofils uniformes

Matériau	Cristallinité	Diamètre (d) (nm)	Distance inter-fil (D) (nm)	Longueur (L) (μm)	Aimantation à saturation (M_s) (emu/cm ³)
Ni	cristallin	175	300	5 - 60 (19)	490
Co ₉₄ Fe ₅ B ₁	amorphe	175	300	5 - 60 (25)	1500 $\pm$ 300 ⁶²
Co ₄₅ Fe ₅₅	cristallin (bcc) ⁷⁰	15	55	0,5 - 1,6 (1,6)	1923 ⁷¹

Les échantillons de Ni et de CoFeB ont été fabriqués dans des membranes Anodiscs™ 0.02 μm via électrodéposition par courant pulsé. La zone de filtration, qui provoque la formation de nanofils plus minces sur une courte plage, a été conservée lors des mesures magnétiques, à moins d'indication contraire. L'alliage de CoFeB a précédemment été développé pour ses propriétés magnétiques douces et son aimantation à saturation élevée.⁶² Les détails de fabrication sont exposés dans [11].

La série d'échantillons de diamètre plus faible renfermant du CoFe a été fabriquée dans des membranes d'alumine faites par anodisation en laboratoire par le groupe du Prof. Tsoi, à la Wayne State University.^{70, 72} Les dimensions géométriques mentionnées sont approximatives étant donné qu'il n'y a pas eu de microscopie électronique effectuée dessus.

Aucun de ces échantillons ne devrait exhiber d'anisotropie magnétocristalline importante. En effet, le CoFeB est amorphe⁶², tandis que l'anisotropie magnétocristalline massique du Ni et du CoFe⁷³ est faible.

5.3 Comportement axial

La plupart des études concernant les propriétés magnétiques des réseaux de nanofils se concentrent sur le comportement magnétique lorsque le champ est appliqué parallèlement aux nanofils. Des résultats préliminaires ont ainsi été présentés et analysés dans le cadre de mon projet de maîtrise.¹¹ Les résultats présentés ici visent donc à finaliser l'interprétation du comportement axial des réseaux de nanofils, en mettant l'accent sur les différences présentes comparativement aux résultats théoriques.

La figure 5.4 rassemble un résultat FORC typique de chaque série d'échantillon. La forme générale de la distribution irréversible (allongée selon l'axe H_u) est caractéristique de la zone combinée du plan (k_{intra} , k_{inter}), ce qui est consistant avec la forme de l'hystéron associé à un nanofil mesuré axialement (hystéron facile, voir figure 4.2 (a)) et un champ d'interaction anti-parallèle à l'aimantation, tel que prédit par la modélisation des interactions dipolaires.

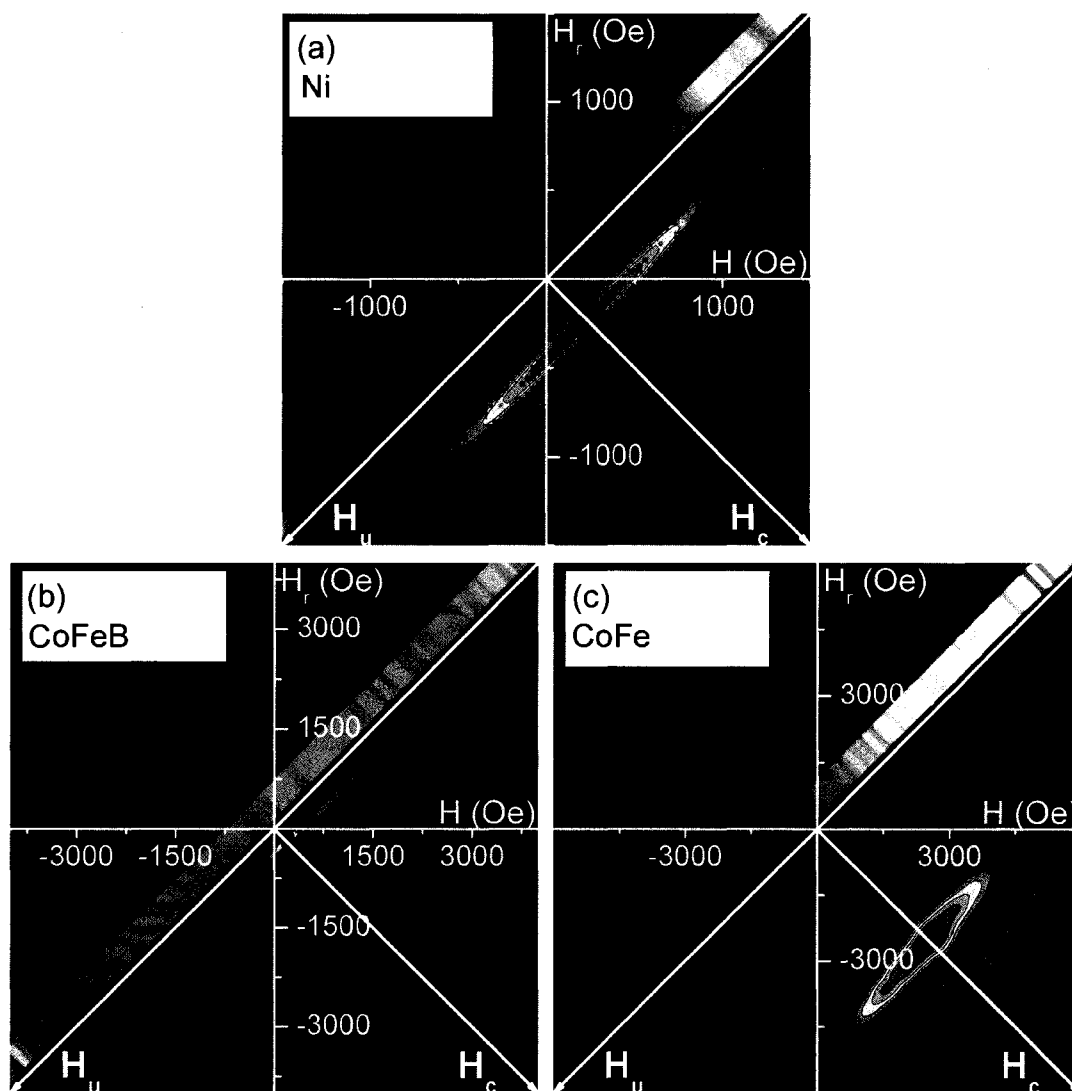


Figure 5.4 : Résultat FORC axial typique de chaque série d'échantillons. (a) Ni (b) CoFeB (c) CoFe
 Les raies visibles sur la bande de l'indicateur de réversibilité constituent des artefacts dus au bruit présent dans les mesures expérimentales.

5.3.1 Mécanismes réversibles

Une des principales différences des résultats FORC expérimentaux de la figure 5.4 avec ceux de la zone combinée du plan (k_{intra} , k_{inter}) est que l'indicateur de réversibilité η n'est pas nul (bande sur l'axe H_u pas complètement noire) [figure 5.5 (a)]. Ceci indique que les nanofils ne peuvent pas être uniquement associés à un hystéron facile, puisqu'il y a des processus réversibles se produisant lors du renversement de l'aimantation [figure 5.5 (b)]. Tel que discuté dans la section 5.1.2.1 ci-haut, l'aimantation des nanofils ne se renverse donc pas par rotation cohérente. Ce résultat est consistant avec leur faible coercivité (entre 150 et 2500 Oe) comparativement au champ d'anisotropie de forme (entre 5000 et 20000 Oe). Ces deux valeurs seraient égales s'il se produisait une rotation cohérente des nanofils individuels.

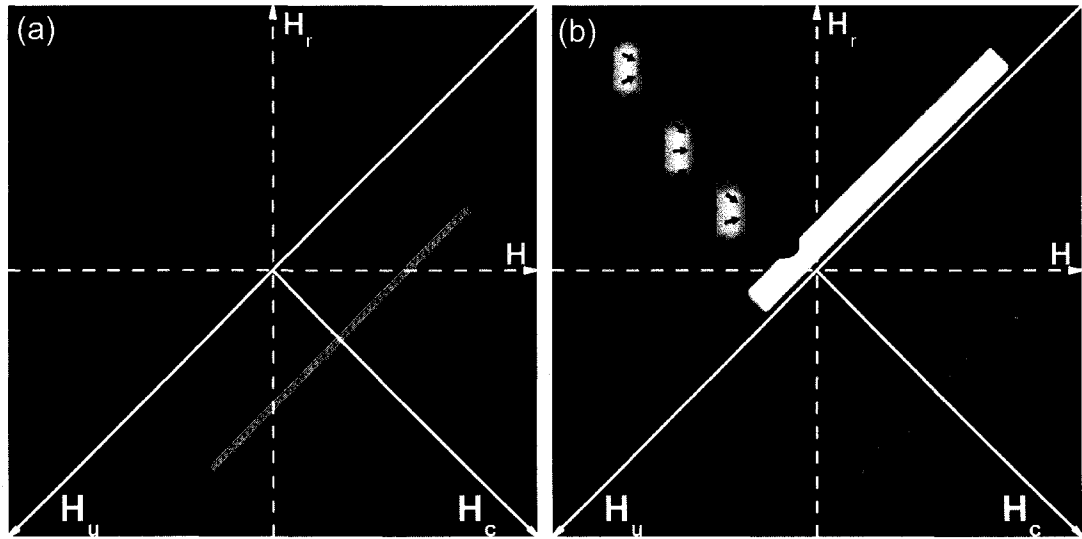


Figure 5.5 : Comparaison des résultats FORC obtenus par le modèle d'analyse physique concernant le mécanisme de renversement de l'aimantation axiale.

(a) Renversement cohérent (b) Renversement non-cohérent

Les différents stades du renversement de l'aimantation en fonction du temps sont représentés en encadré.

Dans le but de mieux comprendre la provenance de cette partie réversible, la séparation en courbes d'hystérésis purement réversible et irréversible, à partir des courbes de renversement du premier ordre, a été effectuée (technique expliquée à la section 2.2.2). Les résultats sont présentés ci-dessous.

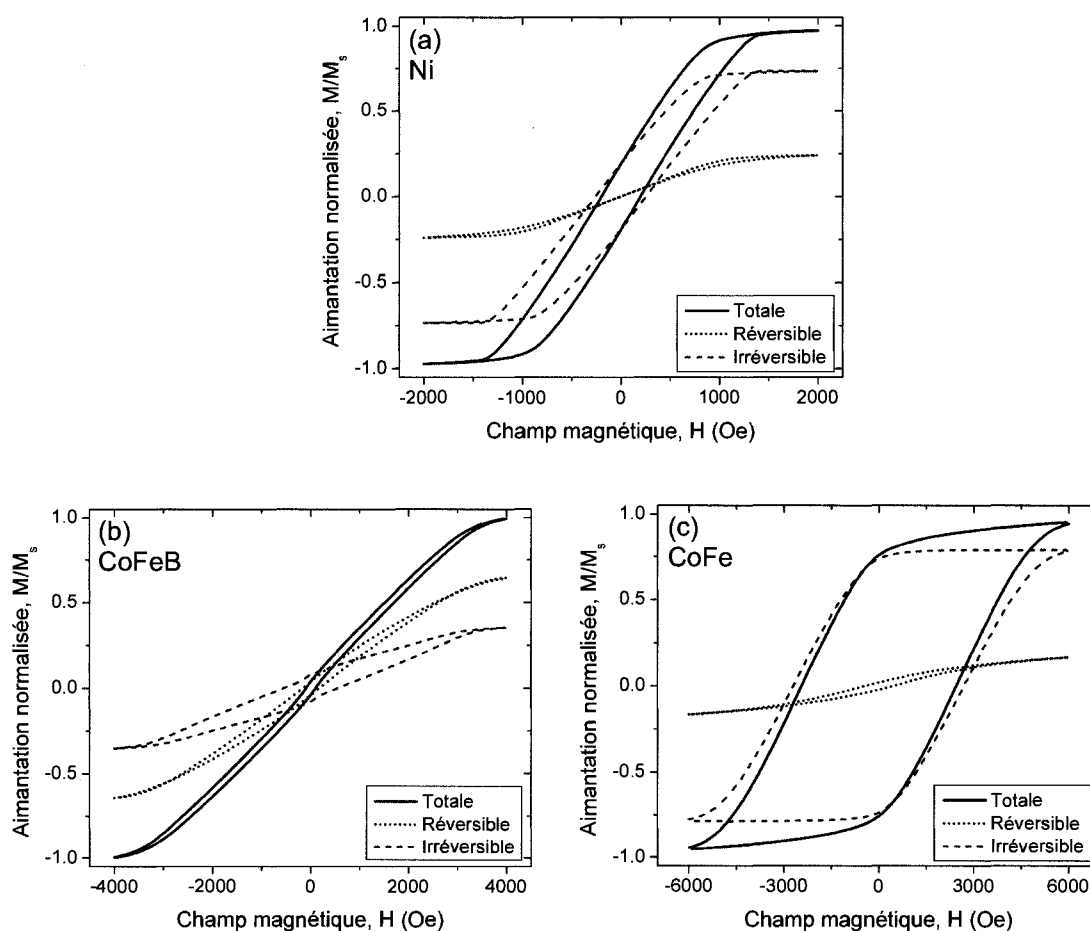


Figure 5.6 : Séparation de la courbe d'hystérésis totale en courbes purement réversible et irréversible.
(a) Ni (b) CoFeB (c) CoFe

Le résultat obtenu pour le CoFeB [figure 5.6 (b)] doit être utilisé avec prudence, à cause de la présence d'une grande hystérésis dans la courbe réversible. L'absence d'hystérésis importante dans les résultats du Ni et du CoFe [figures 5.6 (a) et (c)] signifie que, soit le renversement réversible s'effectue sans être soumis à un champ d'interaction, soit il correspond à des hystérons fondamentaux soumis à un champ d'interaction anti-parallèle. Dans le cas présent, cette deuxième explication semble plus plausible, les courbes purement réversibles saturant aux environs de la valeur maximale du champ d'interaction (ΔH_u).

Les échantillons de Ni et de CoFe présentent sensiblement la même proportion de processus réversibles, soit moins de 25 %, tandis que ce pourcentage semble dépasser les 50 % dans le cas du CoFeB, ce qui est qualitativement en accord avec les valeurs calculées de l'indicateur de réversibilité η . Pour sa part, la valeur réelle de pourcentage pour le CoFe devrait être supérieure à celle lue sur le graphique, car la courbe réversible n'est pas saturée à 6000 Oe.

Plusieurs phénomènes peuvent expliquer la présence de processus réversibles : mauvais alignement du champ avec l'échantillon, température, déplacement de parois de domaine, rotation de l'aimantation, etc. L'alignement des échantillons étant fait à l'œil, la direction du champ magnétique diverge d'un certain angle par rapport à l'axe des nanofils. Il est possible de corriger la situation en tournant l'échantillon jusqu'à obtenir un signal nul pour l'aimantation transverse M_y . Cette procédure n'est cependant pas effectuée de manière courante puisque 1) elle requiert la mesure de plusieurs courbes d'hystérésis de faibles signaux desquelles il faut soustraire le signal ne provenant pas de l'échantillon, ce qui est long et fastidieux et 2) l'angle de divergence trouvé par cette méthode est inférieur à 5° , ce qui a une influence négligeable sur les courbes d'hystérésis parallèles à l'aimantation, plus précisément sur leur réversibilité [figure 5.7 (a)]. L'alignement visuel des échantillons a donc été préconisé. L'effet de la température s'est avéré lui aussi négligeable du point de vue de la réversibilité [figure 5.7 (b)], résultat attendu étant donné le volume relativement important des nanofils.

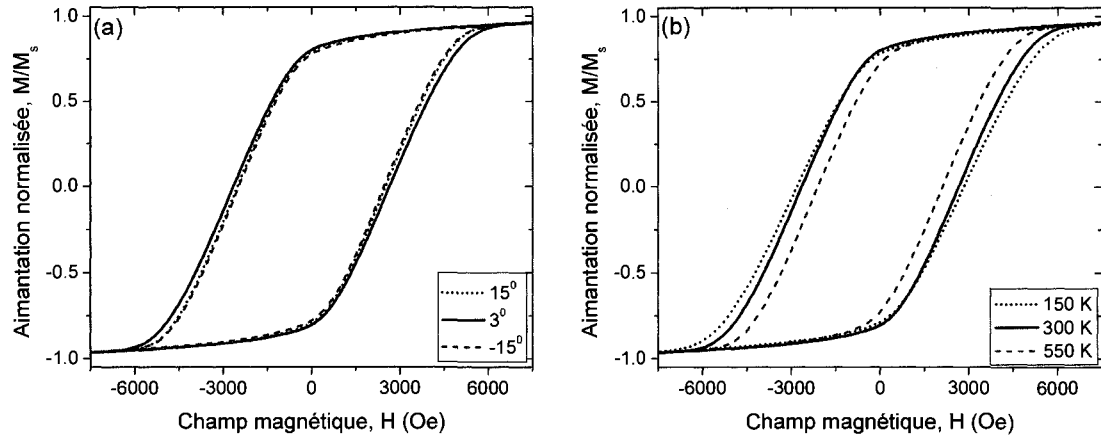


Figure 5.7 : Tests de l'influence de divers paramètres sur la proportion de réversibilité.

(a) Alignement entre le champ magnétique appliqué et l'axe des nanofils

(3° correspondant à un alignement parfait)

(b) Température de la mesure

(CoFe, $L = 1,6 \mu\text{m}$, direction axiale)

Comme mentionné dans la section 5.1.2.1, selon l'hypothèse la plus répandue, le renversement de l'aimantation des nanofils se fait par nucléation-propagation. Dans ce cas, un déplacement de paroi de domaine le long des nanofils va induire une pente positive au début des courbes de renversement du premier ordre, d'où une augmentation de l'indicateur de réversibilité η . Tous les nanofils non saturés dans lesquels un domaine d'aimantation opposée a été nucléé vont voir la direction de propagation de leur paroi s'inverser après le point de renversement. Cette hypothèse ne peut cependant expliquer la baisse réversible d'aimantation se produisant avant la nucléation dans les nanofils, plus importante dans le cas du CoFe. Elle est présumée provenir d'une rotation de l'aimantation aux endroits où le champ d'interaction est maximal, mais que le champ total demeure inférieur au champ de nucléation. La figure 5.8 résume ces hypothèses.

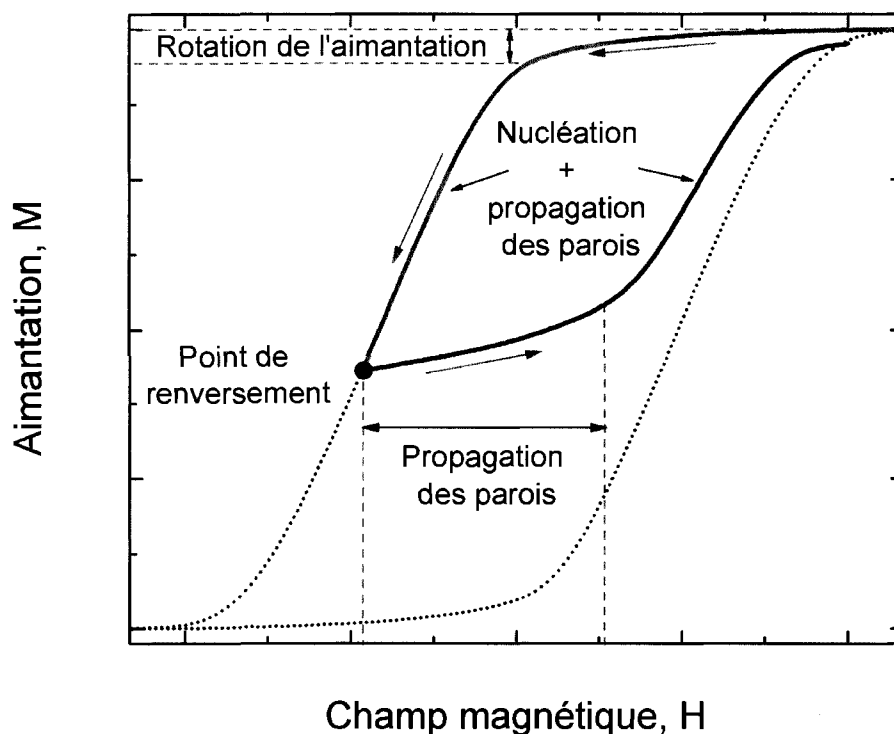


Figure 5.8 : Mécanismes réversibles possibles de renversement de l'aimantation

Une grande partie de la réversibilité mesurée pour le CoFeB pourrait être une réversibilité effective, étant donné la faible coercivité des nanofils (< 100 Oe) et le champ d'interaction élevé (3100 Oe). Une déviation locale du champ d'interaction de l'ordre de 200 Oe créerait une situation propice au retournement instantané de certains nanofils dès la création du point de renversement. Le fait que la valeur de η mesurée pour le CoFeB soit plutôt constante, comparativement aux autres échantillons, est en accord avec cette hypothèse [figure 5.4 (b)].

5.3.2 Mécanismes irréversibles

5.3.2.1 Élongation selon l'axe H_u

Les sections transversales de la distribution irréversible prises parallèlement à l'axe H_u présentent des extrémités abruptes, telles que montrées à la figure 5.9. Cependant, toutes les sections montrent un pic central, plus défini dans le cas du CoFeB.

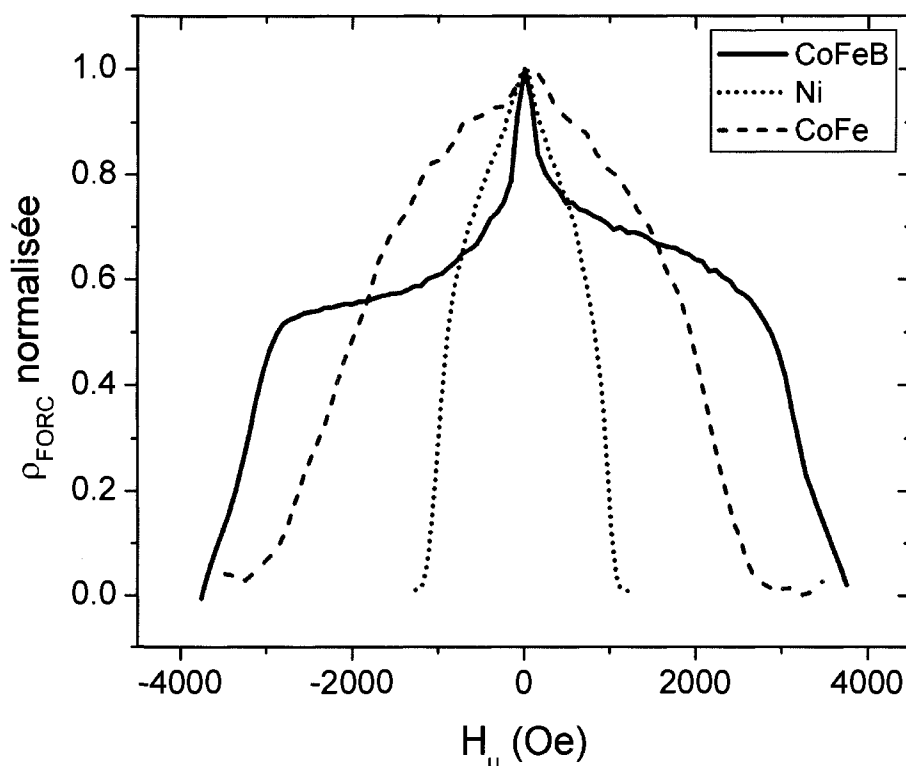


Figure 5.9 : Sections transversales de la distribution irréversible parallèle à l'axe H_u .

Cette caractéristique signifie que la somme des interactions dipolaires entre chaque nanofil (qui, elles, diminuent selon l'inverse de la distance au cube) ne peut pas être uniquement représentée, en terme de conséquence, par un champ d'interaction de type moyen négatif, i.e. uniforme [figure 5.10 (a)]. Selon l'hypothèse que le champ d'interaction dans un réseau infini s'apparente à un champ moyen, une interprétation possible est que les pics centraux soient causés par les nanofils situés aux extrémités des échantillons. En effet, le champ d'interaction y est inférieur comparativement au centre de l'échantillon, les nanofils ayant moins de voisins. Ainsi, une quantité supérieure de nanofils se renversent sous l'influence d'un faible champ d'interaction, ce qui se traduit par un pic au centre des sections transversales selon H_u [figure 5.10 (b)]. Cette hypothèse est renforcée par la variabilité observée de la forme de ce pic pour différentes mesures de morceaux provenant du même échantillon.

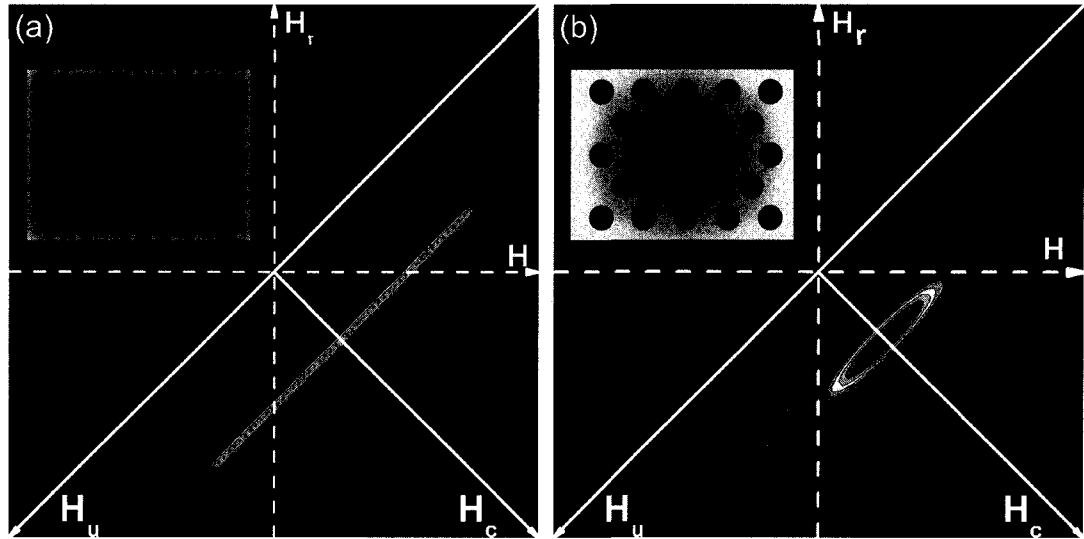


Figure 5.10 : Comparaison des résultats FORC obtenus par le modèle d'analyse physique concernant la distribution spatiale de champ d'interaction (représentée en mauve) dans le réseau de nanofils.
(a) Distribution uniforme (b) Distribution non-uniforme

L'accord entre les valeurs quantitatives du champ d'interaction global (ΔH_u) extraites des résultats FORC de CoFeB et de Ni et celles données par un modèle phénoménologique [équation (5.1)] a précédemment été montré durant ma maîtrise.¹¹

5.3.2.2 Position selon l'axe H_c

Comme visible sur la figure 5.4 et mis en évidence sur la figure 5.11, les distributions irréversibles des réseaux de nanofils peuvent ne pas être parallèles à l'axe H_u . Ce phénomène est plus proéminent dans le cas du CoFeB.

La variation du maximum de la distribution irréversible est pratiquement nulle dans le cas du Ni, elle peut donc être considérée comme étant parallèle à l'axe H_u . De même, la coercivité des nanofils peut être considérée comme uniforme. Cette variation du maximum augmente linéairement avec H_u pour le CoFe, le comportement normalement attendu lorsqu'il y a une distribution de coercivité pour les nanofils.

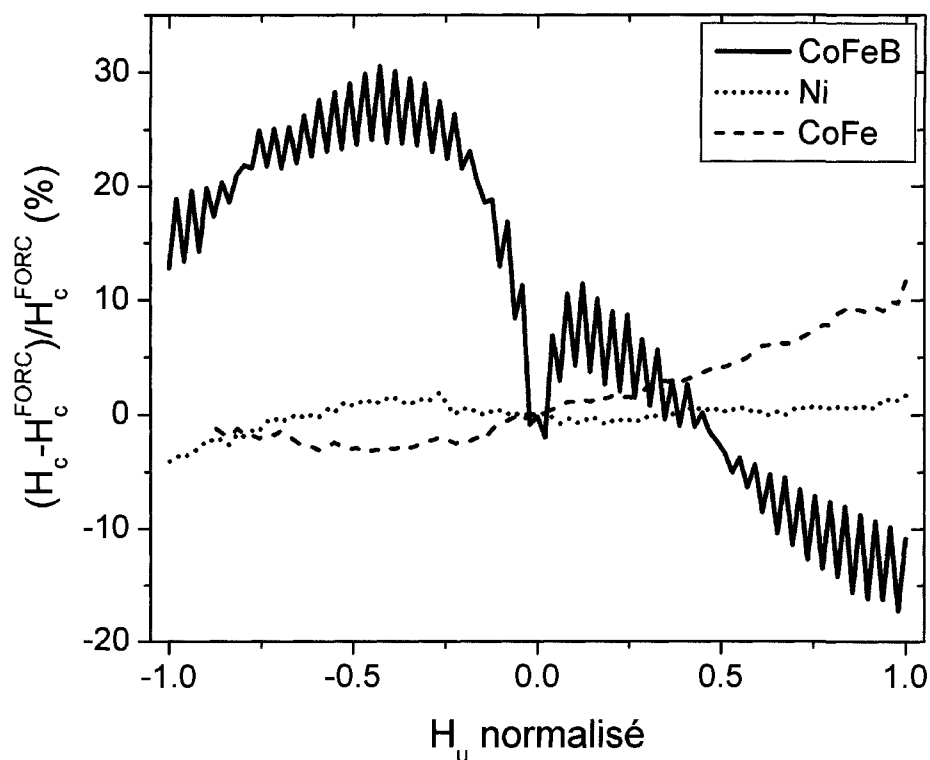


Figure 5.11 : Variation de la position en H_c du maximum de la distribution irréversible par rapport à H_c^{FORC} , en fonction de H_u .
 L'échelle selon H_u est normalisée afin de pouvoir comparer adéquatement les différentes courbes.
 Les oscillations visibles dans la courbe du CoFeB sont causées par la faible largeur de la distribution irréversible dans ce cas.

Dans le cas du CoFeB, la variation augmente puis diminue fortement lorsque H_u augmente. L'explication avancée repose sur le fait que le champ d'interaction dû aux interactions dipolaires entre les nanofils n'est pas uniforme selon la hauteur dans les nanofils (voir figure 5.1). Lorsque l'aimantation est positive, le champ d'interaction est parallèle à l'aimantation des nanofils devant être renversés pour retourner à la saturation positive. Le renversement s'effectue donc à l'endroit du nanofil où la valeur de champ d'interaction est minimale, en valeur absolue. À l'inverse, lorsque l'aimantation est négative, le champ d'interaction est anti-parallèle. Le renversement débute donc là où la valeur absolue de champ d'interaction est maximale.

Cette distribution de valeurs de champ d'interaction le long des nanofils va induire une non-linéarité dans la distribution irréversible. La figure 5.12 (b) ci-dessous présente le résultat simulé d'hystérons faciles « soumis » à deux valeurs légèrement différentes de champ d'interaction moyen, ce qui brise le parallélisme observé à la figure 5.12 (a).

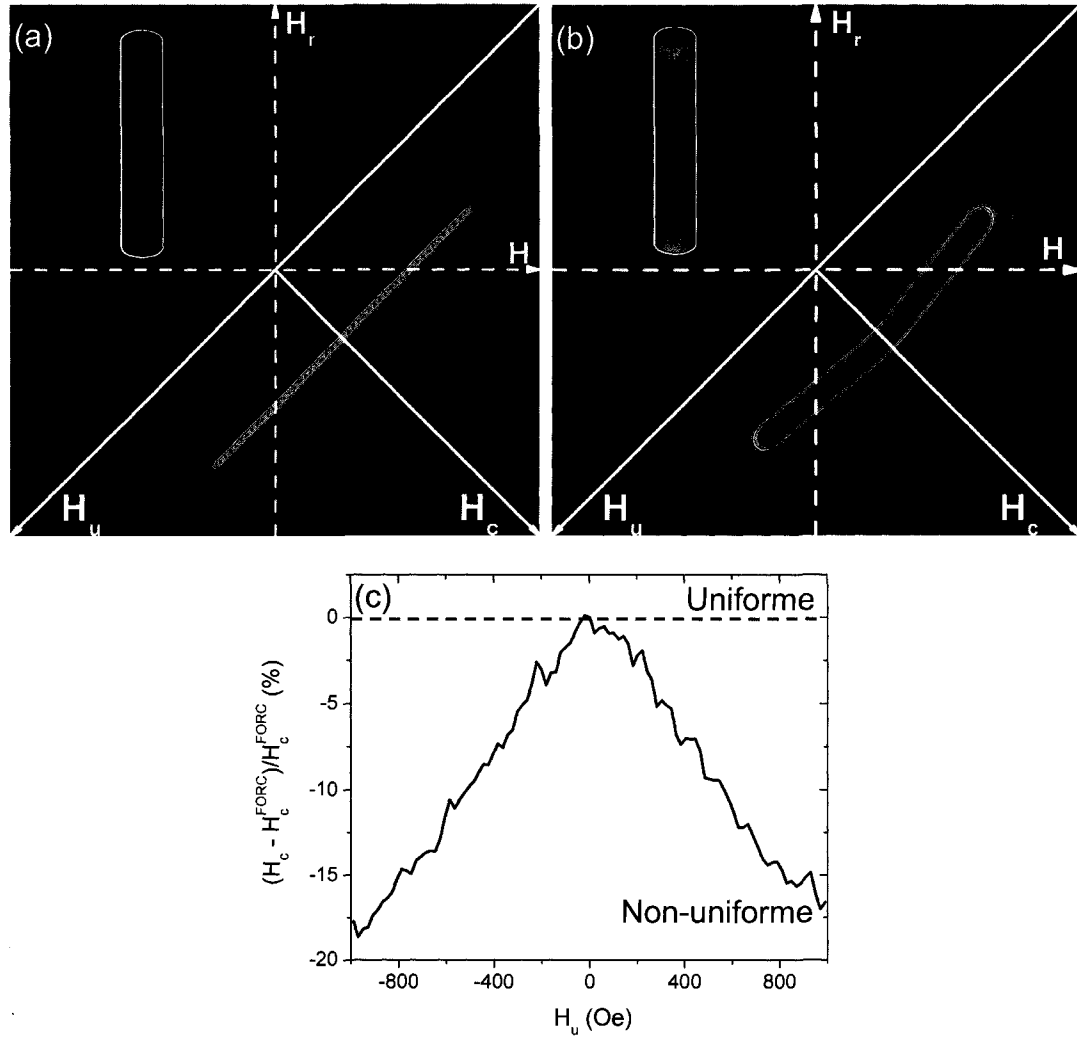


Figure 5.12 : Comparaison des résultats FORC obtenus par le modèle d'analyse physique concernant la distribution spatiale de champ d'interaction (représentée en mauve) le long des nanofils.

- (a) Distribution uniforme
- (b) Distribution non-uniforme (deux champs d'interaction moyen différents)
- (c) Variation de la position en H_c du maximum de la distribution irréversible par rapport à H_c^{FORC} en fonction de H_u .

Les résultats expérimentaux présentés à la figure 5.9 sont plus complexes à simuler entièrement, puisqu'ils découlent à la fois d'une distribution de coercivité et de champ d'interaction le long des nanofils. Une valeur précise de la coercivité moyenne des nanofils situés dans un réseau est donc très difficile à obtenir. Le tableau ci-dessous résume les différentes valeurs de coercivité.

Tableau 5.2 : Valeurs de coercivité extraites selon différentes méthodes

Série	Longueur (μm)	H_c^{Hyst} (± 2 Oe) (courbe totale)	H_c^{FORC} (± 10 Oe)	H_c^{Hyst} (± 2 Oe) (courbe irréversible)
Ni	19	198	210	254
CoFeB	25	98	170	-
CoFe	1,6	2442	2500	2688

Selon le modèle d'analyse physique développé au chapitre 3, puisqu'il y a une partie réversible, une distribution de coercivité des mécanismes irréversibles et un champ d'interaction anti-parallèle, la valeur réelle de la coercivité moyenne des nanofils devrait se situer entre H_c^{Hyst} , la coercivité globale du réseau mesurée sur la courbe d'hystérésis totale, et H_c^{FORC} . Cependant, étant donnée la variation de la position selon l'axe H_c de la distribution irréversible, la valeur obtenue pour H_c^{FORC} n'est pas identique à celle considérée dans le modèle d'analyse physique. Ceci explique peut-être pourquoi la valeur de la coercivité de la courbe purement irréversible est supérieure à H_c^{FORC} , alors qu'elle donne la coercivité moyenne dans le cadre du modèle d'analyse physique.

5.3.2.3 Distribution irréversible additionnelle

Tous les résultats FORC expérimentaux de réseaux de nanofils présentent une distribution irréversible additionnelle (figure 5.13). Elle est localisée près de la saturation, sans extension selon l'axe H_u .

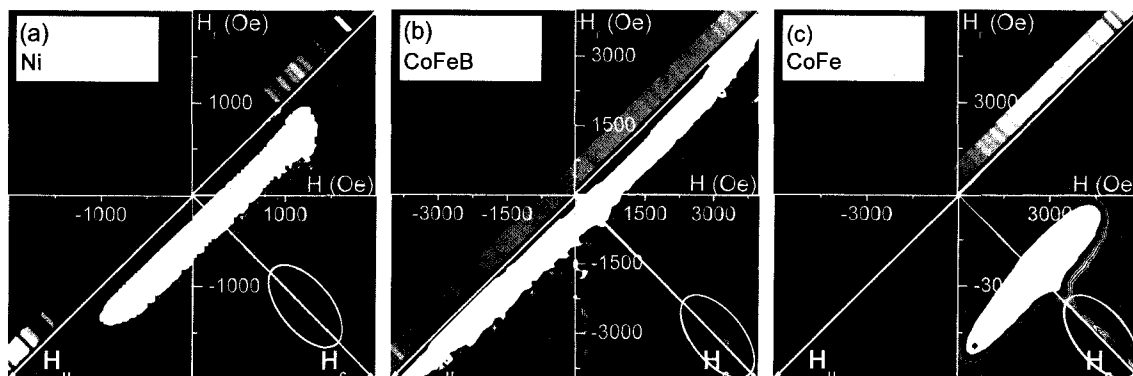


Figure 5.13 : Résultat FORC axial dont l'échelle de p_{FORC} a été ajustée afin de mettre en évidence la distribution irréversible additionnelle (entourée). Les valeurs supérieures au maximum de l'échelle apparaissent en blanc. (a) Ni (b) CoFeB (c) CoFe

Plusieurs hypothèses ont été émises pour expliquer la présence de cette distribution et se sont avérées fausses après vérification expérimentale. Ainsi, la distribution irréversible additionnelle n'est pas causée par la zone de filtration située à la base des pores, ni par la distribution de longueur des nanofils, de l'ordre de 20 %, observée habituellement. Ces deux hypothèses ont été testées en enlevant la partie non-uniforme des nanofils par polissage de l'échantillon. Sa position constamment située près du champ de saturation de l'échantillon rend peu probable la présence de particules ou de défauts de coercivité supérieure à celle des nanofils, mais égale au champ de saturation.

Comme observable sur la figure 5.13 et constaté sur d'autres échantillons ([figures 6.6 (a) et 6.7 de [11], [15]]), cette distribution est prépondérante dans le cas de nanofils de faibles diamètres. Elle s'avère aussi posséder une plus grande distribution selon l'axe H_c dans ces cas-là. Selon l'hypothèse formulée précédemment selon laquelle l'aimantation des nanofils se renverse par nucléation-propagation, elle pourrait être causée par l'annihilation des parois de domaine. Le champ nécessaire pour complètement saturer un nanofil peut être identique pour chaque nanofil. Cependant, ce champ sera atteint pour des

valeurs différentes de champ appliqué, puisque le champ d'interaction dû aux interactions dipolaires augmente lorsque l'échantillon approche de la saturation. La distribution additionnelle est donc vue comme une distribution de champ d'interaction positif, puisque le champ d'interaction favorise le maintien de l'aimantation lors de l'approche à la saturation.

En considérant deux courbes de renversement du premier ordre commençant avec une aimantation négative, la quantité de nanofils complètement saturés positivement aux champs de renversement diffère. La courbe B ayant plus de nanofils à saturer, i.e. dont il faut annihiler les parois de domaine créées lors du renversement, son approche à la saturation est différente que celle de la courbe A (figure 5.14), ce qui mène à la création d'une distribution irréversible.

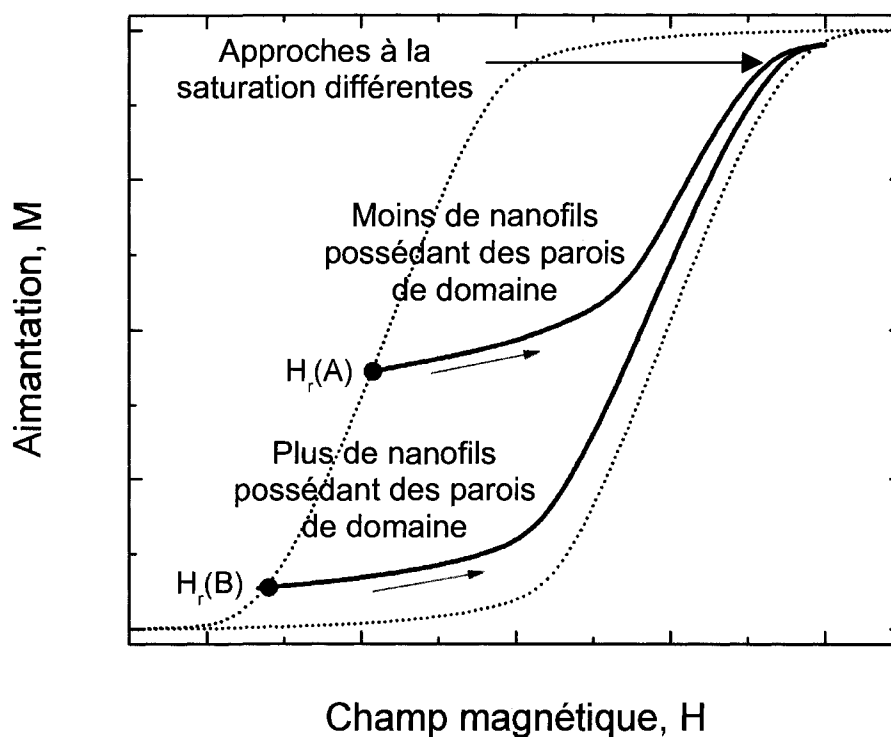


Figure 5.14 : Approches à la saturation dépendantes de la quantité de nanofils contenant des parois de domaine.

Toutes les distributions irréversibles observées se situent autour de $H_c = H_c^{FORC} + \Delta H_u$, ce qui est la localisation attendue pour une distribution d'hystérons faciles soumis à un champ d'interaction moyen parallèle de valeur ΔH_u (voir section 3.3.1.1, zone H_c du plan (k_{intra}, k_{inter})).

5.4 Comportement transverse

5.4.1 Mécanismes irréversibles

Avec un champ magnétique appliqué dans la direction perpendiculaire à l'axe des nanofils, le comportement théorique d'un nanofil correspond à une rotation cohérente et continue de l'aimantation. L'hystéron de base difficile représente adéquatement ce comportement (voir figure 4.2 (b)). Puisqu'il est complètement réversible, la fonction de distribution FORC attendue est nulle en tous points. Les courbes d'hystérésis majeures mesurées des réseaux de nanofils uniformes présentent toutefois une hystérésis (figure 5.15). La présence de cette hystérésis peut devenir un important problème lors de la conception de dispositifs dont un champ magnétique alternatif serait perpendiculaire aux nanofils, puisque cela provoquerait des pertes d'énergie et un dégagement de chaleur. Le comportement expérimental des réseaux diffère donc du comportement théorique et les résultats FORC devraient présenter une partie irréversible.

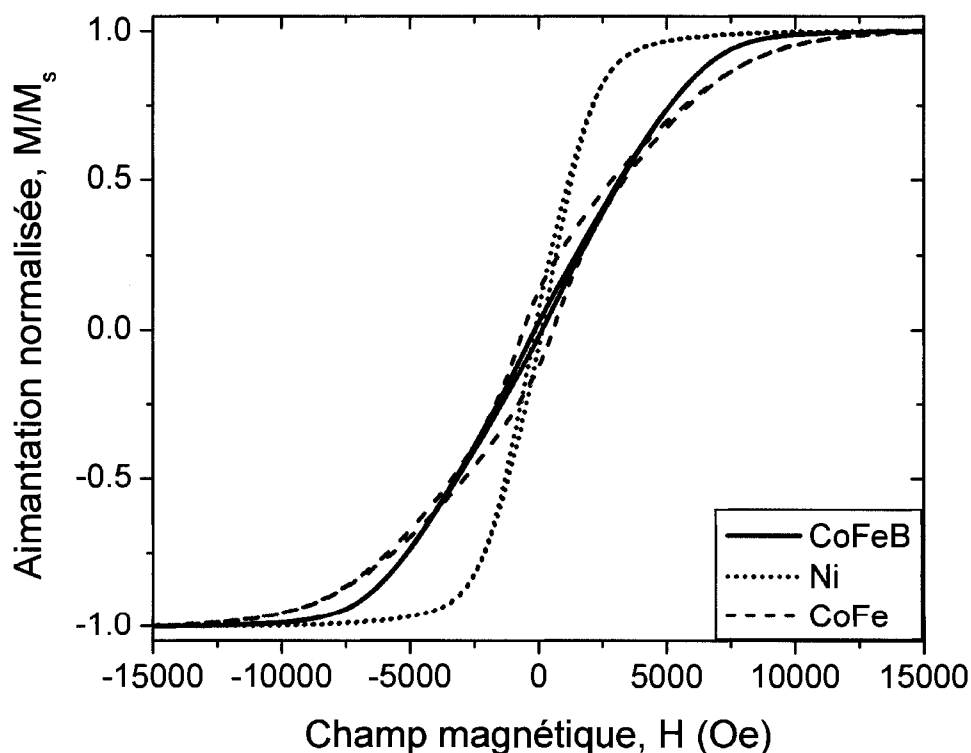


Figure 5.15 : Courbes d'hystérésis majeures transverses typiques des réseaux de nanofils uniformes.

Les résultats FORC correspondants aux courbes d'hystérésis présentées à la figure 5.15 sont montrés à la figure 5.16.

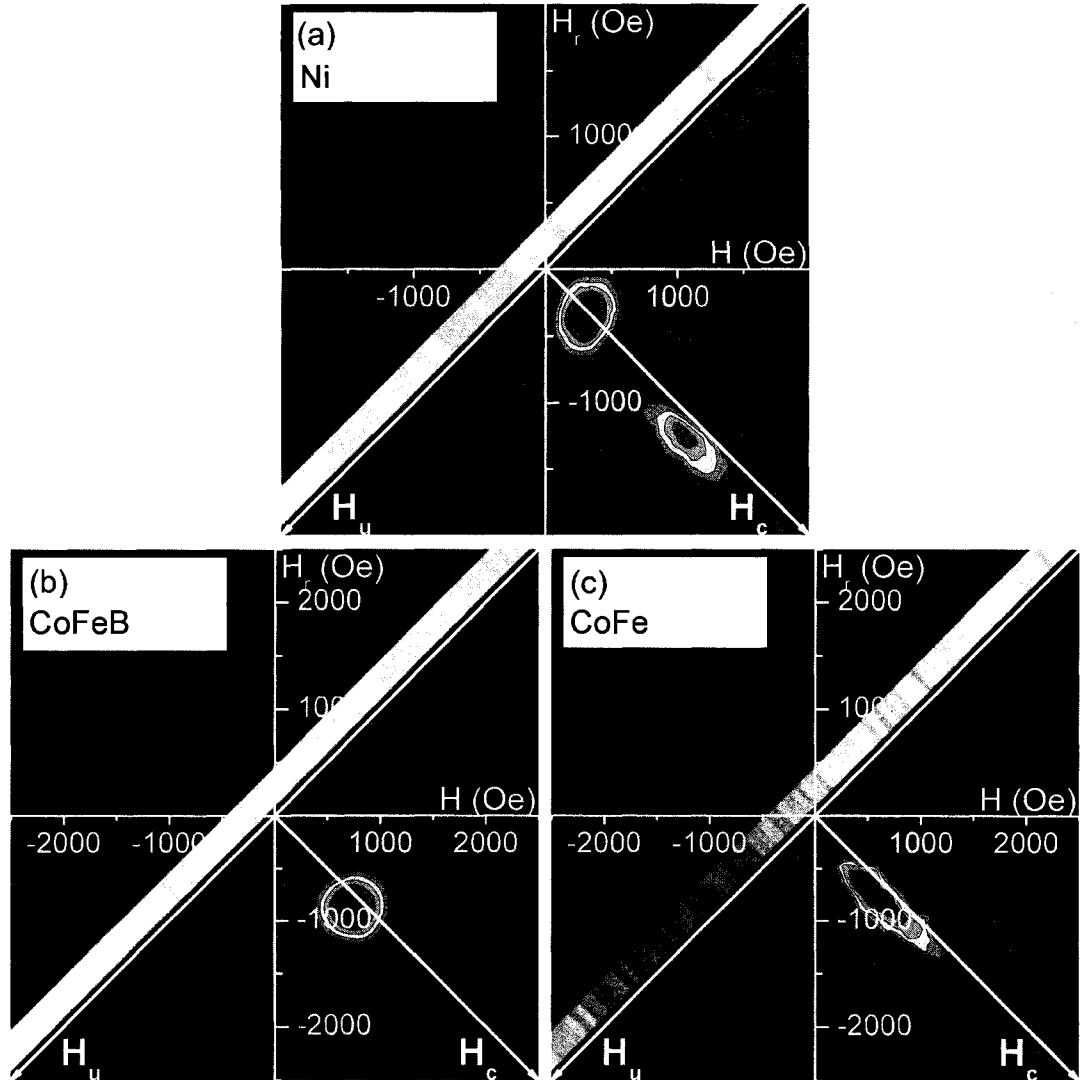


Figure 5.16 : Résultat FORC transverse typique de chaque série d'échantillons (a) Ni (b) CoFeB (c) CoFe

À part le fait que leur réversibilité soit élevée, telle qu'attendue, les résultats FORC diffèrent beaucoup selon la série. Non seulement les formes des distributions irréversibles sont variées, mais leur nombre aussi, l'échantillon de Ni présentant deux parties irréversibles distinctes. Afin d'identifier la provenance du ou des renversements de l'aimantation irréversibles, l'aimantation rémanente (M_r) de chaque échantillon a été extraite à partir des courbes d'hystérésis majeures. La figure 5.17 (a) présente les

résultats en fonction de la longueur des nanofils, tandis que la figure 5.17 (b) les présente en fonction de l'inverse de la longueur.

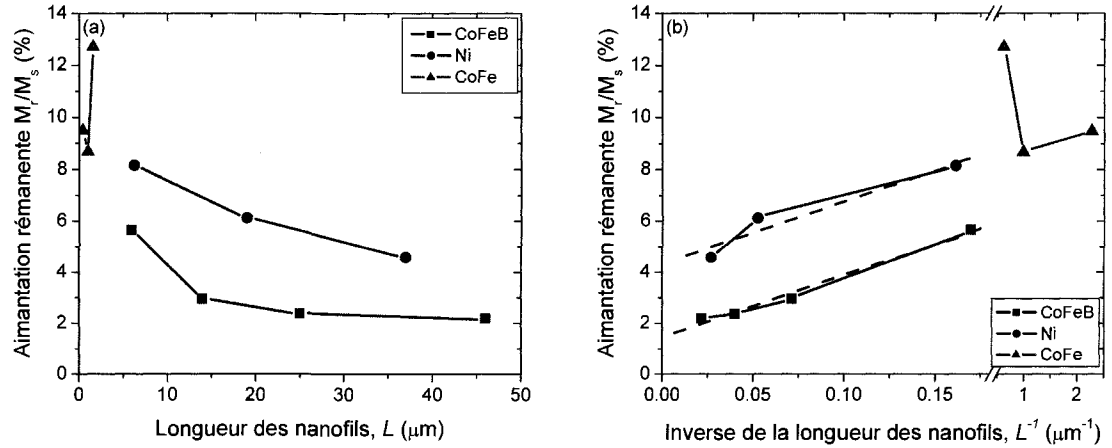


Figure 5.17 : Aimantation rémanente en fonction de (a) longueur et (b) inverse de la longueur. (Les lignes pointillées représentent la régression linéaire.)

Le graphique de l'aimantation rémanente en fonction de l'inverse de la longueur des nanofils est plus intéressant, puisque l'obtention d'une droite renseigne sur la présence de phénomènes se produisant de manière localisée dans les nanofils, par exemple, aux extrémités :

$$\frac{M_r}{M_s} = \frac{A}{L} + B \quad (5.2)$$

La pente A donne directement la longueur dans les nanofils où l'aimantation rémanente demeure fixée dans la direction de la saturation positive, et ce, indépendamment de leur longueur totale. L'ordonnée à l'origine B , pour sa part, représente la fraction d'aimantation rémanente dans le reste des nanofils, quelle que soit leur longueur. Ces concepts sont représentés à l'aide de la figure 5.18.

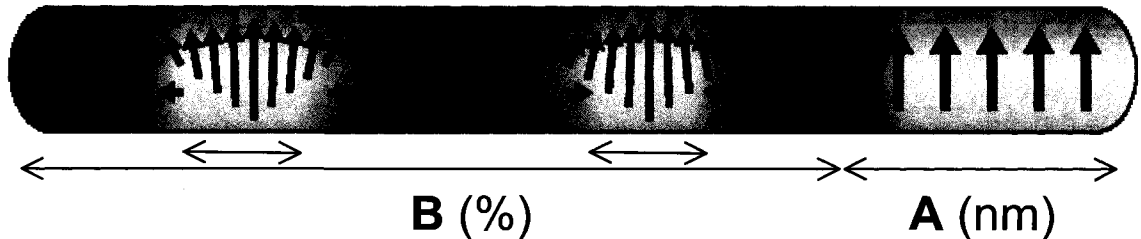


Figure 5.18 : Représentation schématique de la signification physique des paramètres A et B de l'équation (5.2).

Les deux séries d'échantillons fabriquées dans des membranes commerciales présentent un comportement linéaire à la figure 5.17 (b). La pente dans les deux cas est identique : $A = (240 \pm 20)$ nm pour le CoFeB et $A = (240 \pm 60)$ nm pour le Ni. Ceci indique que, pour tous les échantillons fabriqués dans ces membranes, il y a toujours une épaisseur d'environ 240 nm où l'aimantation est bloquée. Le faible nombre de points expérimentaux ne permet pas d'obtenir une valeur précise de cette épaisseur, mais c'est le comportement linéaire qui représente le résultat important. L'hypothèse proposée est que ce serait la fin de la zone de filtration des membranes commerciales, laquelle fait entre 500 et 750 nm environ, qui causerait ce blocage, à cause des ramifications.

La zone de filtration de deux échantillons, un de Ni et un de CoFeB, a donc été enlevée par polissage avant de refaire les mesures magnétiques. La figure 5.19 montre une image prise au microscope électronique à balayage de la base des nanofils après le polissage. La zone de filtration a complètement été enlevée, le diamètre des nanofils étant en moyenne de 175 nm et ceux-ci apparaissent dispersés et non en petits groupes.

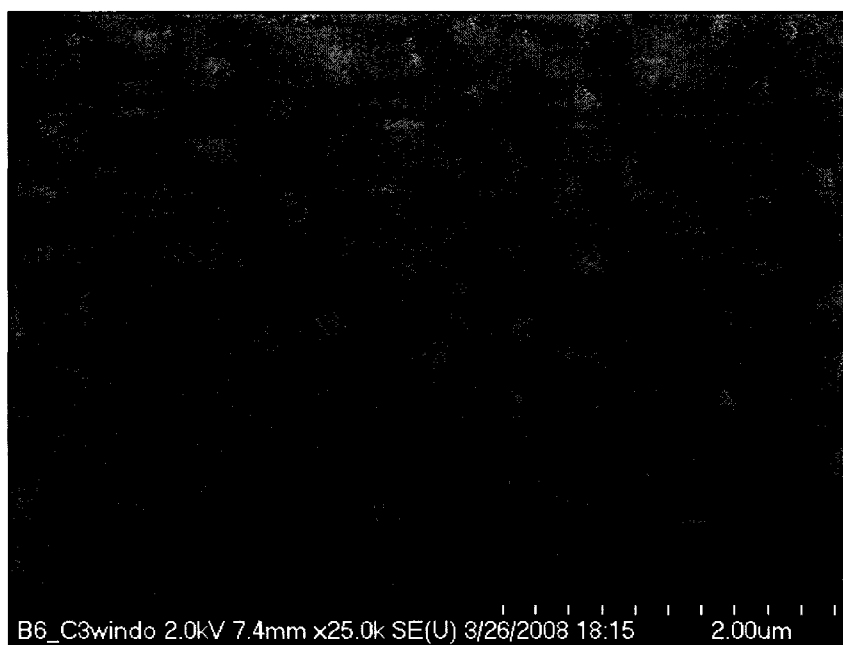


Figure 5.19 : Vue de dessous d'une membrane commerciale d'alumine contenant des nanofils de Ni dont la zone de filtration a été complètement enlevée par polissage.

La différence engendrée au niveau des courbes d'hystérésis majeures est montrée à la figure 5.20. La conséquence principale est la diminution de l'aimantation rémanente jusqu'à la valeur de B , ce qui s'accompagne d'une diminution de la coercivité. Les valeurs sont regroupées dans le tableau 5.3.

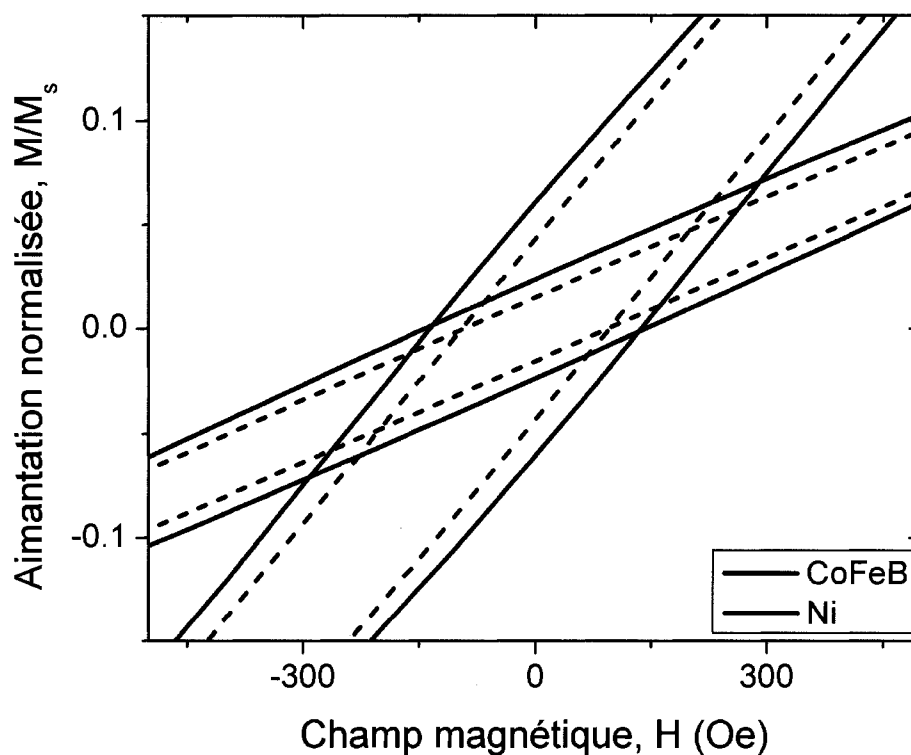


Figure 5.20 : Zoom des courbes d'hystérésis majeures transverses mesurées avec (ligne pleine) et sans (ligne pointillée) la zone de filtration.

Tableau 5.3 : Influence de la zone de filtration sur les valeurs d'aimantation rémanente et de coercivité dans la direction transverse

Matériau	Aimantation rémanente (M_r/M_s) (%)			Coercivité (H_c^{Hyst}) (Oe)	
	Avec zone de filtration	Sans zone de filtration	B	Avec zone de filtration	Sans zone de filtration
Ni	$6,07 \pm 0,05$	$4,29 \pm 0,05$	$4,3 \pm 0,6$	136 ± 2	94 ± 2
CoFeB	$2,36 \pm 0,05$	$1,46 \pm 0,05$	$1,4 \pm 0,2$	142 ± 2	91 ± 2

Dans les deux cas, les valeurs d'aimantation rémanente obtenues concordent avec la valeur prédite (B). L'hypothèse que la zone de filtration des membranes commerciales bloque l'aimantation vers la saturation transverse positive, ce qui fait augmenter la coercivité, est donc vérifiée pour ces deux échantillons. Les mesures magnétiques transverses d'échantillons fabriqués dans ces membranes devraient ainsi toujours être effectuées sans cette zone de filtration. Les résultats FORC obtenus dans cette condition sont présentés ci-dessous.

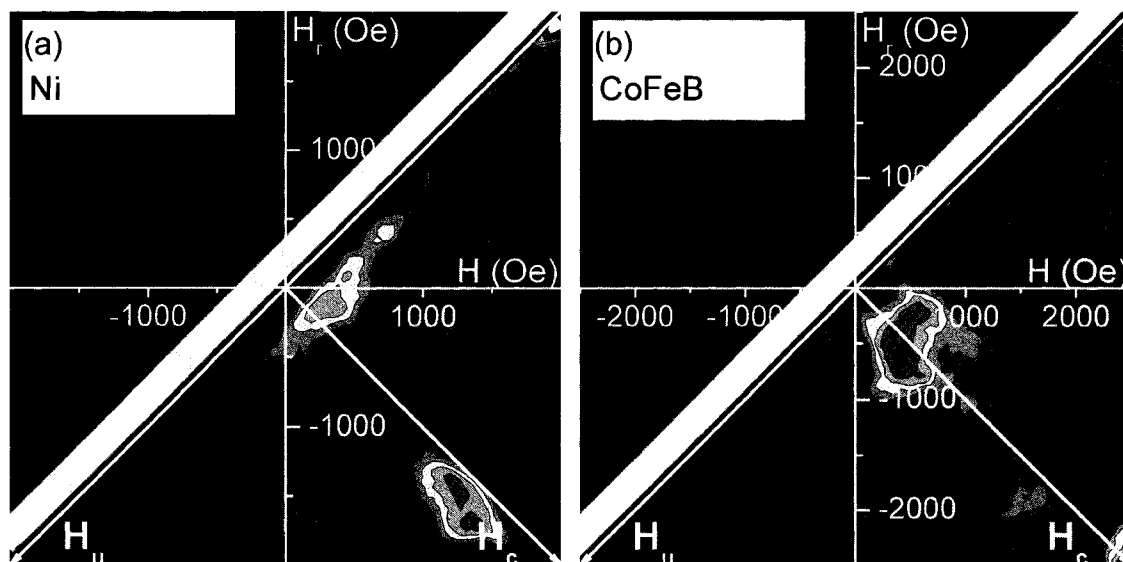


Figure 5.21 : Résultats FORC transverses sans la zone de filtration. (a) Ni (b) CoFeB

La comparaison entre les figures 5.16 et 5.21 montre que les parties irréversibles situées à $H_c = 400$ Oe (Ni) et 850 Oe (CoFeB) sont dues au renversement de l'aimantation bloquée par la zone de filtration. Les diagrammes FORC sans zone de filtration présentent plus de bruit, étant donné qu'ils ne proviennent que de quelques pourcents de l'aimantation totale, ce qui rend leur analyse plus difficile. Une étude plus approfondie, notamment à l'aide de simulations micromagnétiques, est nécessaire avant de pouvoir affirmer que la forme de la distribution irréversible visible sur la figure 5.21 est due au renversement des parois de domaines créées entre les régions dont l'aimantation se renverse de manière cohérente. D'autres phénomènes pourraient aussi être présents et contribuer de manière significative au renversement irréversible, comme des domaines de fermeture aux extrémités des nanofils.

Pour les échantillons de CoFe, leur longueur (entre 0,5 et 1,6 μm) et leur diamètre (15 nm) sont beaucoup plus faibles, mais leur aimantation rémanente plus élevée (entre 8 et 12,5 %). Ces résultats rendent le renversement des parois de domaine moins probable comme mécanisme de renversement irréversible principal. Des tests effectués sur ces échantillons ont néanmoins montré qu'ils avaient une structure multidomaine d'orientations opposées et axiales à l'état de désaimantation.⁷² La forme allongée de la partie irréversible [figure 5.16 (c)] est semblable à celle créée par une distribution de longueur non-uniforme (voir annexe C). Des analyses plus poussées, notamment de microscopie électronique, afin de connaître l'uniformité de la longueur des nanofils et de mesures FORC après uniformisation de la longueur, sont nécessaires avant de pouvoir conclure sur le renversement transverse de ces échantillons. Ces expériences étant partiellement destructives, elles n'ont pu être effectuées sur les échantillons détenus actuellement. Néanmoins, puisque la fabrication de membranes d'alumine nanoporeuse de faible diamètre est en voie d'être maîtrisée au Laboratoire de Magnéto-Électronique, la fabrication d'échantillons spécialement destinés à la vérification de ces hypothèses est maintenant envisageable.

5.4.2 Mécanismes réversibles

Le comportement magnétique des réseaux de nanofils étant principalement une rotation cohérente et réversible de l'aimantation en direction de l'axe des nanofils, une modélisation de la partie réversible de la courbe d'hystérésis est possible.

À la saturation, le champ d'interaction créé par les interactions dipolaires entre les nanofils favorise l'aimantation, mais diminue en intensité au fur et à mesure que l'aimantation totale diminue. Le champ effectif du réseau, qui est la somme du champ d'anisotropie de forme et du champ d'interaction, va ainsi changer légèrement de direction durant la mesure d'une courbe d'hystérésis, ce qui a pour conséquence principale de courber les approches à la saturation (figure 5.22).

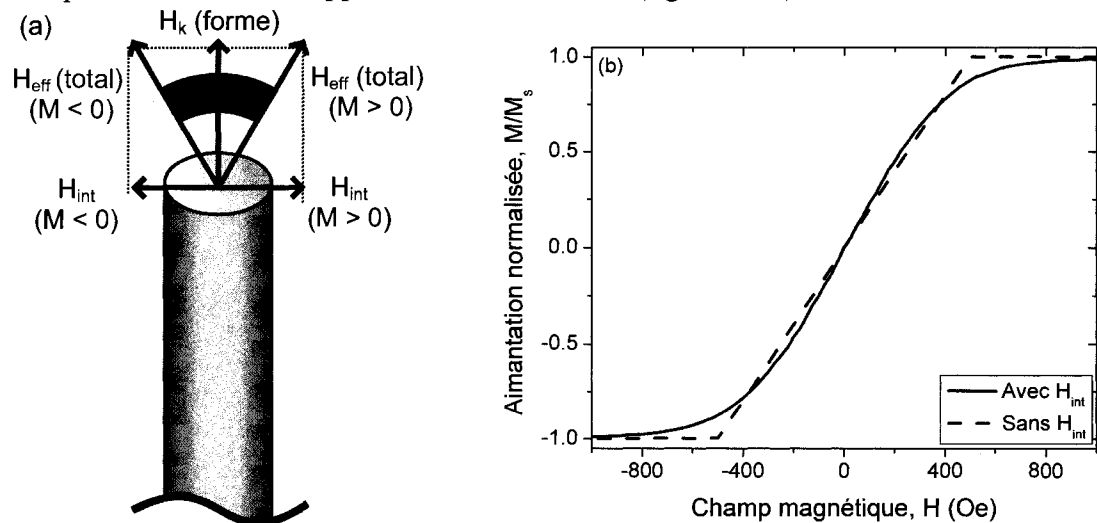


Figure 5.22 : Effet du champ d'interaction positif sur les courbes d'hystérésis transverses.

(a) Schématisation du champ effectif du réseau

(b) Courbes d'hystérésis simulées selon le modèle de Stoner-Wohlfarth

($H_k = 500$ Oe, θ passant de 80° ($M = +1$) à 100° ($M = -1$))

Lors de la simulation, les valeurs élevées de ratio longueur sur diamètre, entre 100 et 150, justifient l'utilisation de l'expression valable du champ d'anisotropie de forme pour un cylindre infini, soit $0,5M_s$ (en Oe). La valeur du champ d'interaction à la saturation a été prise comme étant la moitié du ΔH_u mesuré dans la direction axiale. Les angles de déviation initiale du champ effectif sont ainsi entre 5 et 10° . La comparaison avec les courbes d'hystérésis expérimentales est effectuée à la figure 5.23.

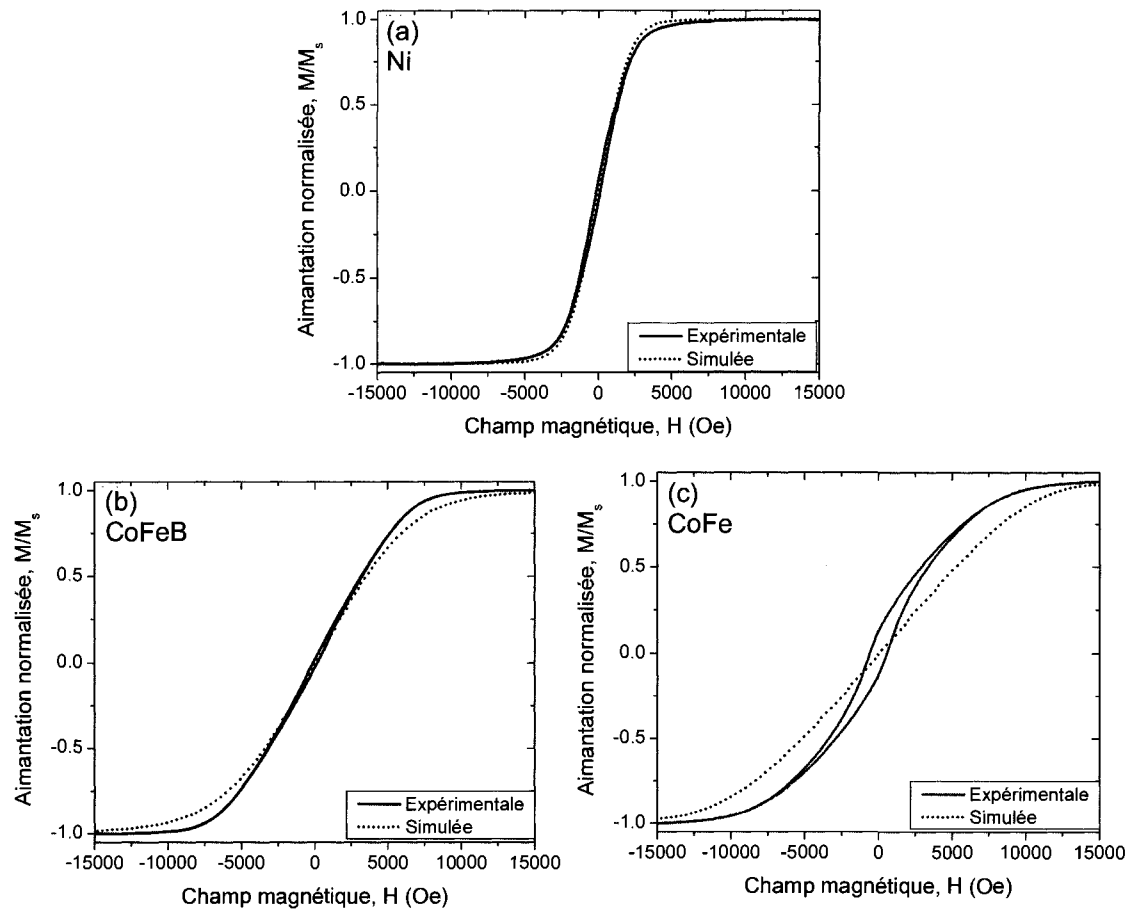


Figure 5.23 : Comparaison entre les courbes d'hystérésis transverses expérimentales et simulées à l'aide d'hystérons Stoner-Wohlfarth.
(a) Ni (b) CoFeB (c) CoFe

La concordance entre les courbes expérimentales et simulées est relativement bonne pour les échantillons de Ni [figure 5.23 (a)] et de CoFeB [figure 5.23 (b)]. Ce résultat renforce l'hypothèse que la quasi-totalité de l'aimantation se renverse de manière cohérente et réversible vers l'axe des nanofils. Dans le cas du CoFe, le champ d'anisotropie utilisé est trop élevé comparativement au résultat expérimental. Une explication possible est que le diamètre réel des nanofils soit supérieur à celui estimé, ce qui réduit rapidement le ratio longueur/diamètre et la valeur de H_k devant être utilisée.

5.5 Synthèse

Les courbes de renversement du premier ordre de trois séries de réseaux de nanofils uniformes (Ni, $d = 175$ nm, CoFeB, $d = 175$ nm et CoFe, $d = 15$ nm), ayant tous un axe facile selon l'axe des nanofils, ont été mesurées. Les résultats ont permis de mettre en évidence les différences entre le comportement magnétique expérimental et celui théorique.

Dans la direction axiale, la présence d'une partie réversible non-négligeable et une coercivité de beaucoup inférieure au champ d'anisotropie de forme sont consistants avec un renversement de l'aimantation des nanofils par nucléation-propagation, tel que rapporté dans la littérature, et non par rotation cohérente. La forme de la distribution FORC suggère que le champ d'interaction anti-parallèle n'est pas uniforme d'un nanofil à l'autre, ni le long d'un nanofil. Cette non-uniformité rend très difficile l'extraction d'une valeur précise de la coercivité moyenne des nanofils. Finalement, une distribution irréversible additionnelle serait créée par la saturation complète des nanofils, effectuée à des valeurs différentes de champ d'interaction parallèle à l'aimantation.

Dans la direction transverse, des mécanismes de renversement irréversibles se produisent en faible proportion. Dans les échantillons fabriqués dans les membranes commerciales, une partie de ces processus est due à de l'aimantation piégée dans la zone de filtration. La majorité de leur comportement magnétique peut être modélisé par un renversement cohérent régi par le champ d'anisotropie de forme et le champ d'interaction parallèle variant en grandeur et direction selon l'aimantation totale.

Chapitre 6: Réseaux de nanofils multicouches

*It doesn't matter how beautiful your theory is,
it doesn't matter how smart you are.
If it doesn't agree with experiment, it's wrong.*
- Richard Feynman

Le fait d'avoir une structure composée d'une alternance de nanodisques magnétiques et non-magnétiques modifie considérablement le comportement magnétique d'un réseau de nanofils. Un des principaux avantages des nanofils multicouches comparativement aux nanofils uniformes est la possibilité de contrôler l'anisotropie magnétique effective du matériau en changeant les différentes épaisseurs des couches.^{6, 74} Cette caractéristique fait que les réseaux de nanofils multicouches sont des candidats intéressants pour des dispositifs à haute fréquence⁷⁵, notamment des circulateurs⁷⁶.

Les résultats obtenus à l'aide des courbes de renversement du premier ordre de réseaux de nanofils multicouches de Ni/Cu sont présentés dans ce chapitre. Les mesures ont été effectuées à la fois dans la direction axiale et transverse. Ces résultats ont fait l'objet d'un article dans la revue *IEEE Transactions on Magnetism*²⁰ et une présentation orale à la *2008 International Magnetism Conference (INTERMAG)*²³.

6.1 Revue de littérature

Les premiers réseaux de nanofils multicouches ont été fabriqués simultanément en 1994 par les groupes de Ansermet⁵⁹ et de Ferain et Legras⁶⁰. Leur motivation était d'obtenir une nanostructure montrant une grande réponse de magnétorésistance géante (GMR), i.e. un changement de la résistance électrique selon l'orientation relative de l'aimantation des couches. Avec des nanofils de (Co,Ni,Fe)/Cu, ils ont obtenu des résultats variant entre 10 et 15 %.

Comparativement à un empilement de couches minces, les nanofils multicouches possèdent l'avantage d'avoir un petit diamètre, ce qui induit une résistance électrique élevée et donc un signal plus facile à obtenir. La grande majorité des études subséquentes faites sur des réseaux de nanofils multicouches a donc été effectuée dans le but de réaliser des dispositifs à magnétorésistance géante.⁷⁷ Les aspects généralement investigués sont ainsi aux niveaux structural (cristallinité des couches⁷⁸, diffusion aux interfaces^{79,80}) et de signal de magnétorésistance géante obtenu⁸¹.

Du côté des divers mécanismes de renversement de l'aimantation des nanodisques ferromagnétiques, Tang *et al.*⁷⁴ ont observé, pour des échantillons de CoNi/Cu, un passage d'un axe facile à un plan facile en augmentant l'épaisseur des couches magnétiques, celle des couches non-magnétiques étant conservée constante. Ils attribuent ce passage à un changement de mécanisme de renversement, passant d'une rotation cohérente à un mélange de rotation cohérente et incohérente (*curling*). De leur côté, Tan et Stadler⁸² ont mesuré les courbes d'aimantation vectorielle de réseaux de Co/Cu dont l'épaisseur de Cu varie entre 0,5 et 5 nm. Cependant, leurs conclusions doivent être considérées avec prudence, puisque la proportion d'aimantation transverse mesurée dans la plupart des cas est faible et qu'aucune discussion à ce sujet ou concernant l'alignement des nanofils avec le champ magnétique n'est faite dans l'article.

6.2 Échantillons

Les échantillons de réseaux de nanofils magnétiques multicouches étudiés sont constitués d'une alternance de nanodisques de nickel et de cuivre (figure 6.1). Ils ont été fabriqués dans des membranes Anodiscs™ 0.02 μm (diamètre = 175 nm, distance interfil = 300 nm) par Louis-Philippe Carignan. L'électrodéposition a été effectuée dans un seul bain électrolytique, où la concentration de cuivre a été gardée faible afin de minimiser la codéposition avec le nickel. La tension appliquée a été variée entre -1 V (dépôt du Ni) et -0,56 V (dépôt du Cu), durant le laps de temps nécessaire pour obtenir les épaisseurs t voulues des nanodisques, afin de faire varier le ratio des épaisseurs de Cu et de Ni. Le tableau 6.1 résume les caractéristiques de chaque échantillon étudié.

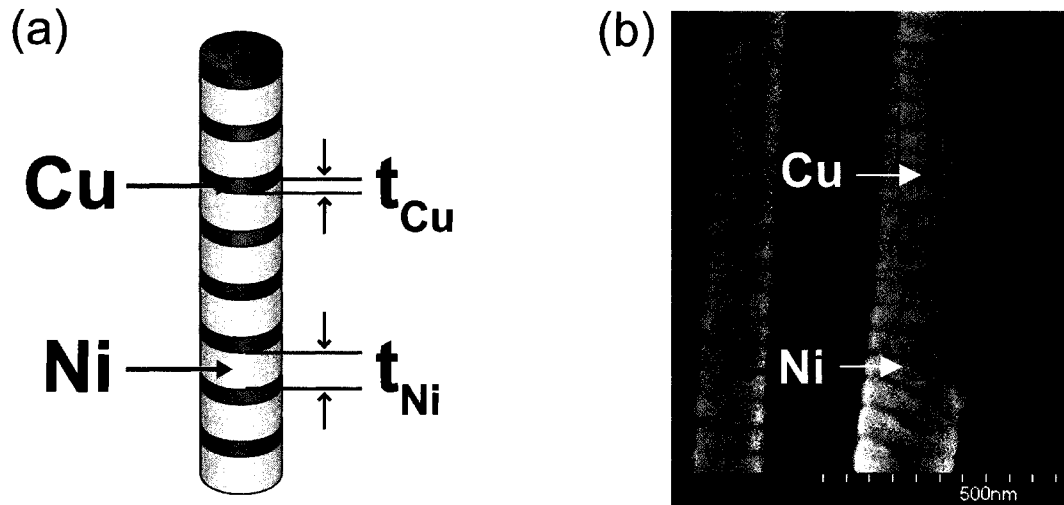


Figure 6.1 : Nanofil multicouche.

(a) Schéma de la structure

(b) Vue en section d'un réseau (Ni20/Cu10, courtoisie : L.-P. Carignan)

Tableau 6.1 : Caractéristiques géométriques des échantillons de réseaux de nanofils multicouches

Nom	Nombre de couches	Épaisseur de Ni (t_{Ni}) (nm)	Épaisseur de Cu (t_{Cu}) (nm)	Ratio t_{Cu}/t_{Ni}	Longueur totale (L) (μm)
Ni50/Cu15	500	50	15	0,3	32,5
Ni20/Cu10	500	20	10	0,5	15
Ni30/Cu35	50	30	35	1,17	3,25

Les mesures des spectres de résonance ferromagnétique selon l'angle entre les directions axiale et transverse et des courbes d'hystérésis majeures, faites précédemment par Louis-Philippe Carignan⁶, ont montré que chaque échantillon présentait une anisotropie uniaxiale effective selon l'axe des nanofils. Les deux premiers (Ni50/Cu15 et Ni20/Cu10) possèdent ainsi un axe facile, tandis que le troisième (Ni30/Cu35) possède plutôt un plan facile. Ce comportement concorde avec les résultats observés par Tang *et al.*⁷⁴

6.3 Anisotropie

6.3.1 Mesure de l'indicateur de réversibilité

Cette caractéristique de la série d'échantillons a été utilisée afin de tester l'utilité de l'indicateur de réversibilité η dans un contexte expérimental. Le minimum des courbes de η en fonction du champ magnétique, dans les directions axiale et transverse [figures 6.2 (a) et (b)], présente une dépendance selon le ratio des épaisseurs des couches [figure 6.2 (c)].

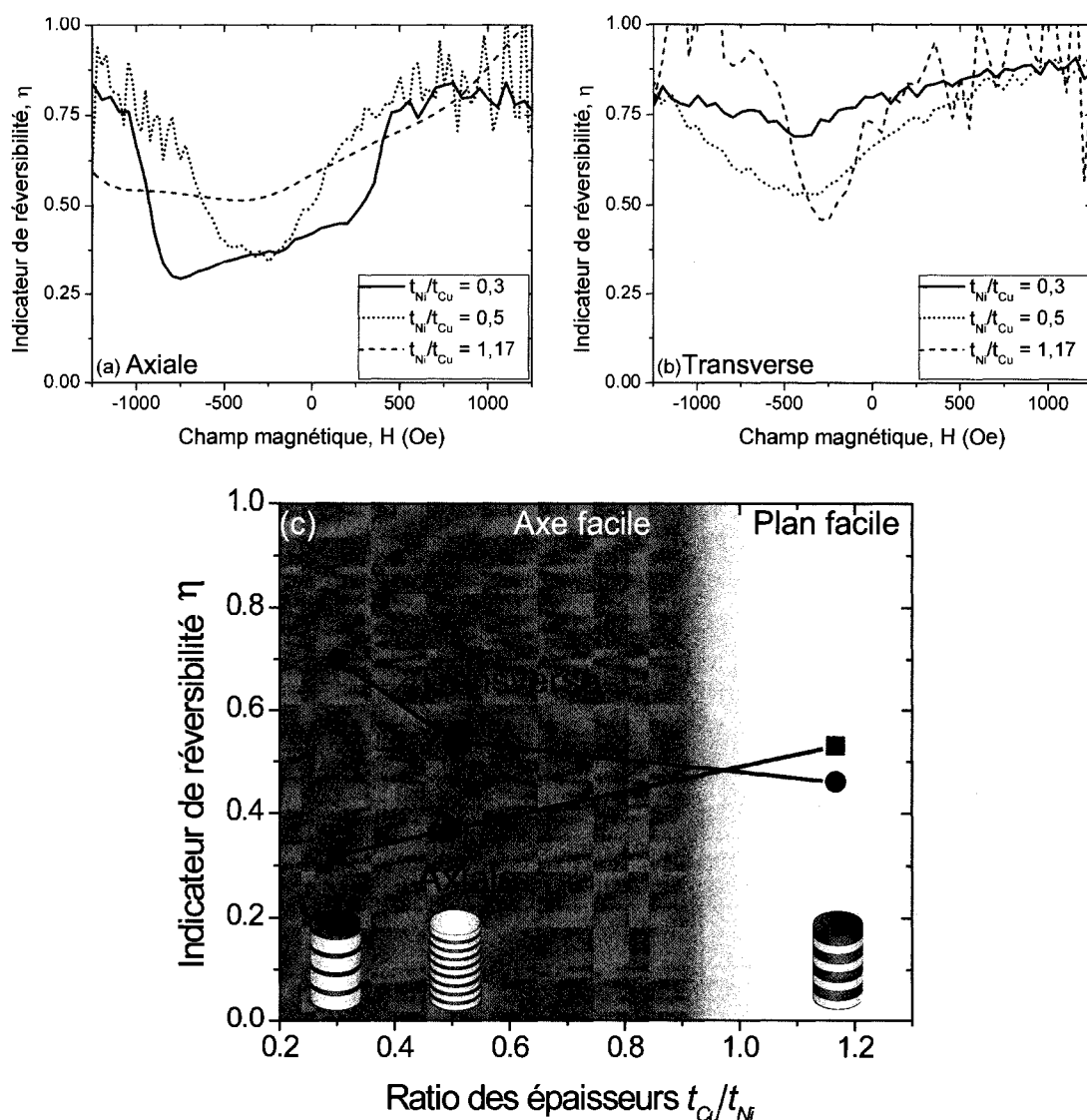


Figure 6.2 : Indicateur de réversibilité η pour les réseaux multicouches. Courbes en fonction du champ magnétique dans la direction (a) axiale (b) transverse (c) Valeur minimum de l'indicateur de réversibilité, mesurée sur (a) et (b), en fonction du ratio des épaisseurs des couches

Le résultat obtenu à la figure 6.2 (c) montre que le minimum de η provenant des mesures axiales et transverses augmente et diminue respectivement avec le ratio t_{Cu}/t_{Ni} . Il se crée ainsi un croisement entre les courbes (autour de $t_{Cu}/t_{Ni} = 1$), dans la zone où a été observé le passage de l'axe facile au plan facile. Un réseau de nanofils multicouches de ce ratio d'épaisseurs devrait ainsi être isotrope (ou presque) du point de vue magnétique. Le minimum des courbes de η semble donc un outil adéquat pour caractériser expérimentalement l'anisotropie. D'autres mesures sur des séries d'échantillons différents doivent cependant être effectuées afin de mieux comprendre dans quel cas c'est un outil applicable ou non.

6.3.2 Modélisation des interactions dipolaires

Dans le but de prédire théoriquement l'anisotropie d'un réseau de nanofils multicouches, une modélisation des interactions dipolaires entre les nanodisques a été effectuée par Louis-Philippe Carignan.⁶ Elle permet d'obtenir l'influence du ratio t_{Cu}/t_{Ni} sur les différents facteurs de désaimantation (inter-fil, intra-fil et de forme) (figure 6.3).

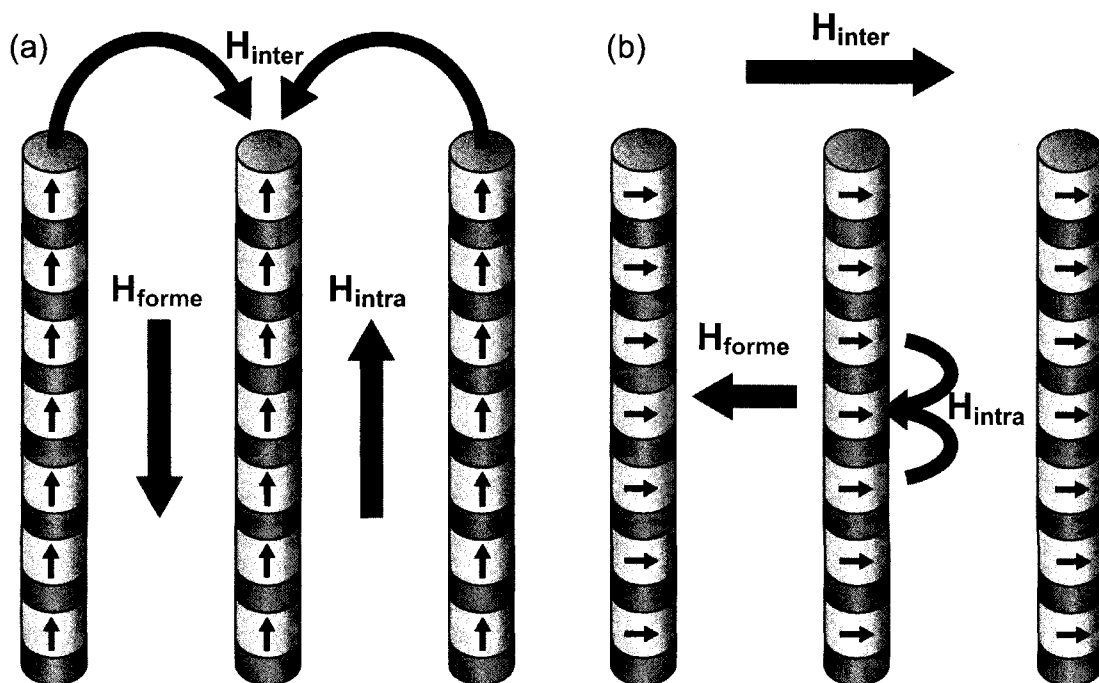


Figure 6.3 : Provenance des champs d'interaction dans les réseaux de nanofils multicouches.
(a) Direction axiale (b) Direction transverse

Les figures 6.4 (a) et (b) montrent que lorsque t_{Cu}/t_{Ni} augmente, le facteur de désaimantation inter-fil diminue, alors que la somme des facteurs de désaimantation intra-fil et de forme augmente. Ceci mène à une diminution du champ effectif [figures 6.4 (c) et (d)] et ainsi au passage d'un axe facile à difficile pour la direction axiale, tel qu'observé expérimentalement.

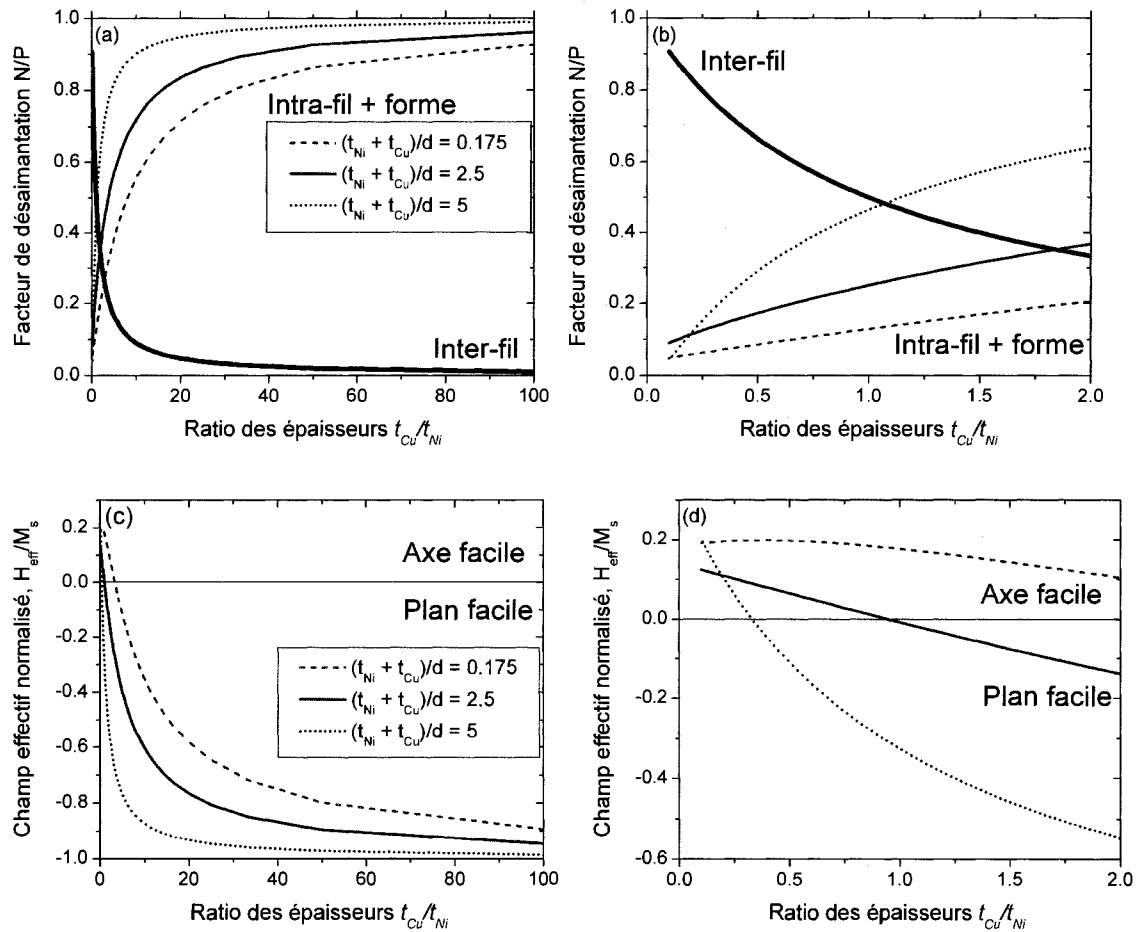


Figure 6.4 : Résultats de la modélisation des interactions dipolaires dans les réseaux de nanofils multicouches en fonction du ratio des épaisseurs.

($d = 170$ nm, $D = 330$ nm, porosité $P = 0,17$)

(a)-(b) Facteurs de désaimantation

(c)-(d) Champ effectif

Le raisonnement précédent assume que les différences entre les échantillons sont dominées par la valeur du ratio t_{Cu}/t_{Ni} et néglige les effets, présumés faibles, de la différence de longueur entre les échantillons.

6.4 Comportement axial

Les résultats FORC mesurés dans la direction axiale sont présentés ci-dessous. Tous exhibent une partie réversible et au moins une irréversible créée sous l'influence d'un champ d'interaction anti-parallèle de type moyen. La forme de la distribution irréversible de Ni50/Cu15 est d'ailleurs caractéristique d'une distribution de coercivité [figure 6.5 (a)]. La flèche sur le graphique indique la branche qui est produite par la fin du renversement de l'aimantation (voir section 3.3.2).

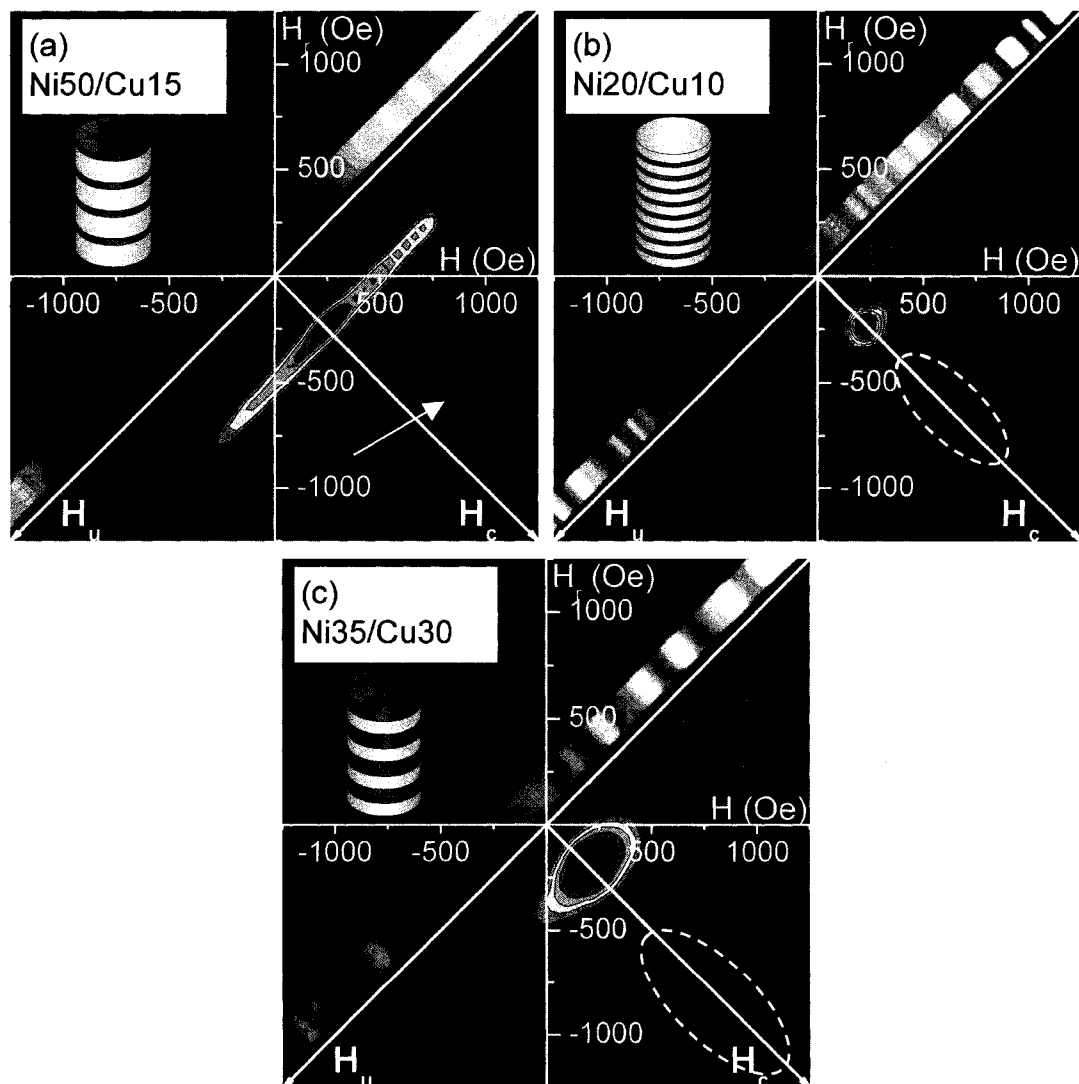


Figure 6.5 : Résultats FORC de réseaux de nanofils multicouches (direction axiale).

La flèche indique la branche créée par la fin du renversement de l'aimantation, tandis que les parties de « queue à H_c élevé » sont encadrées.

(a) Ni50/Cu15 (b) Ni20/Cu10 (c) Ni30/Cu35

6.4.1 Coercivité

La figure 6.6 présente l'évolution de la coercivité des échantillons (H_c^{Hyst}) et de H_c^{FORC} en fonction du ratio t_{Cu}/t_{Ni} . Toutes deux sont décroissantes, ce qui est consistant avec une transition vers un plan facile. Leur différence reste sensiblement constante, soit 70 Oe. La supériorité de H_c^{FORC} par rapport à H_c^{Hyst} est consistante avec la présence d'une partie réversible et d'un champ d'interaction anti-parallèle à l'aimantation.

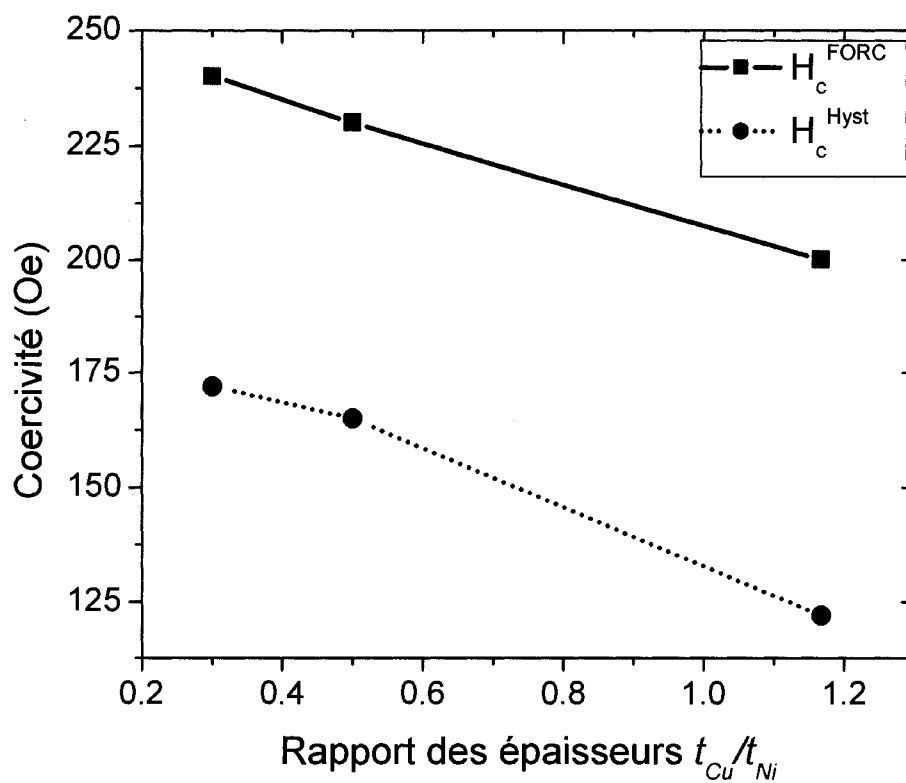


Figure 6.6 : Coercivité en fonction du ratio des épaisseurs (direction axiale).

6.4.2 Champ d'interaction

La valeur du champ d'interaction proportionnel et anti-parallèle à l'aimantation semble dépendre principalement de l'épaisseur des nanodisques de Ni. La figure 6.7 montre que le champ d'interaction global ΔH_u , extrait des résultats FORC, est proportionnel à t_{Ni} . Une explication probable est que, étant donné que les interactions dipolaires sont proportionnelles au volume magnétique, ceci revient à l'épaisseur des couches de Ni puisque les nanofils ont sensiblement le même diamètre.

Comme observé précédemment pour les réseaux de nanofils uniformes, le champ d'interaction semble non-uniforme dans le réseau. En effet, les distributions irréversibles des réseaux de nanofils multicouches présentent, elles aussi, un pic autour de $H_u = 0$.

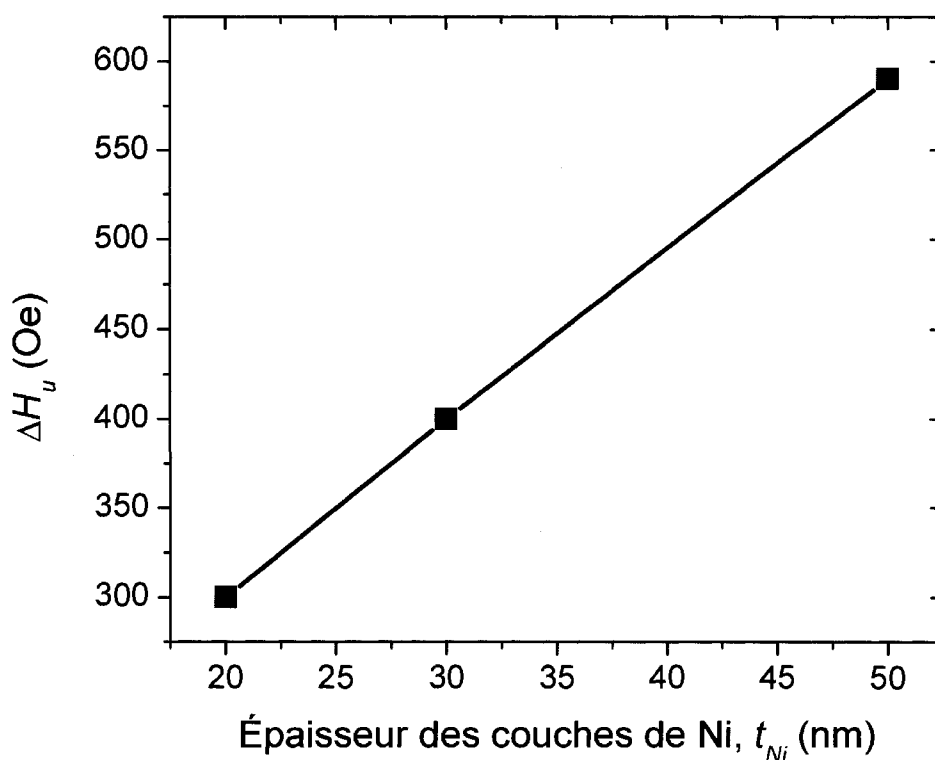


Figure 6.7 : Champ d'interaction global ΔH_u en fonction de l'épaisseur des couches de Ni.

6.4.3 Partie irréversible additionnelle

Les résultats FORC de deux des trois échantillons montrent clairement une partie irréversible additionnelle, entourée sur la figure 6.5. Dans les deux cas, elle se présente comme une excroissance de la partie principale, localisée le long de l'axe H_c et diminuant de hauteur à mesure que H_c augmente, d'où leur nom de « queue à H_c élevé ». Une hypothèse expliquant leur présence serait que le faible volume magnétique des nanodisques conduit à une grande non-uniformité dans le champ d'interaction ressenti par les nanodisques. En effet, ceux situés aux extrémités de l'échantillon et des nanofils possèdent moins de voisins que ceux situés au centre de l'échantillon et sont donc soumis à un champ d'interaction plus faible. Leur comportement magnétique se rapproche plus de celui de nanodisques isolés, i.e. avec une grande coercivité, ce qui se traduit par l'élongation de la partie irréversible sur l'axe H_c .

La séparation en courbes d'hystérésis purement réversibles et irréversibles n'a pu être effectuée sur ces échantillons, car les échantillons ne sont pas saturés à la fin de la plage couverte par les courbes de renversement du premier ordre, ce qui aurait faussé les résultats. Étant donnée la lente approche à la saturation de ces échantillons, des mesures spécifiques, prenant uniquement les premiers points de chaque courbe, devraient être effectuées afin de pouvoir appliquer la technique de séparation des courbes.

6.5 Comportement transverse

Pour la direction transverse, les courbes de renversement du premier ordre et les courbes majeures ont été mesurées sans enlever la zone de filtration. Étant donnée la structure en nanodisques, l'hypothèse que cette zone n'influence pas de manière importante le comportement magnétique des échantillons est avancée. Cependant, seule une étude plus poussée en comparant les résultats avec et sans zone de filtration permettrait de connaître réellement la portée de celle-ci. Les résultats présentés dans cette section doivent donc être considérés avec prudence.

Les résultats FORC transverses des trois échantillons de nanofils multicouches sont présentés à la figure 6.8. L'hypothèse énoncée ci-dessus est confortée par deux observations. Premièrement, il y a une nette différence entre les distributions FORC selon la direction de l'axe facile. Deuxièmement, lorsque l'axe des nanofils est facile, les distributions FORC des réseaux multicouches ressemblent à celles provenant des réseaux uniformes sans la zone de filtration.

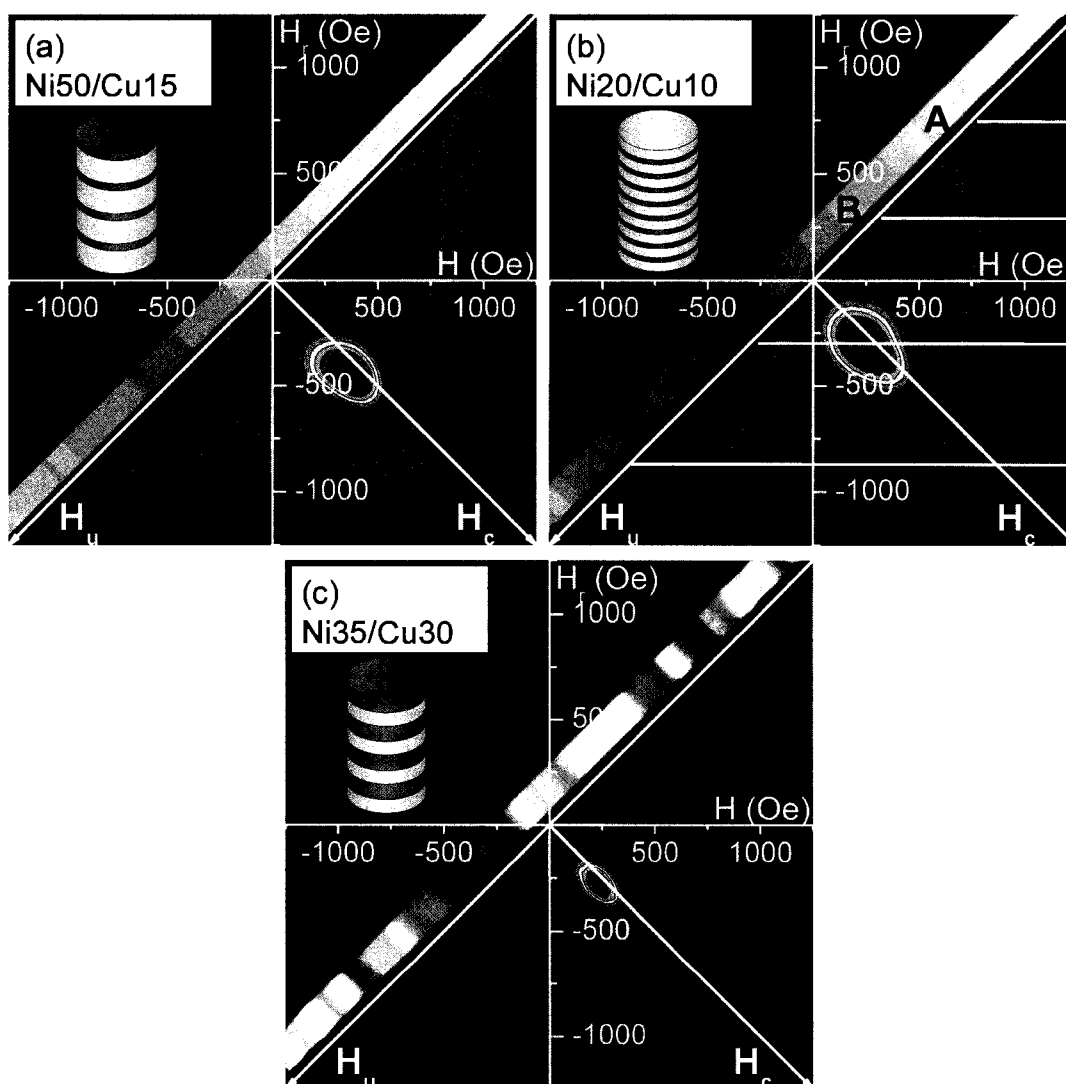


Figure 6.8 : Résultats FORC de réseaux de nanofils multicouches (direction transverse).
(a) Ni50/Cu15 (b) Ni20/Cu10 (c) Ni30/Cu35

6.5.1 Renversement de l'aimantation

Ce changement dans le signe de l'anisotropie modifie le renversement de l'aimantation dans la direction transverse. Les réseaux avec un axe facile parallèle à l'axe des nanofils présentent des résultats FORC avec des « ailes » autour du pic central. Il est possible d'en interpréter le renversement de l'aimantation en prenant des sections horizontales du résultat FORC.

Une des interprétations possibles serait que, près de la saturation, le champ d'interaction intra-fil approche du champ de désaimantation d'un fil homogène, rendant défavorable un renversement dans le plan. Les nanodisques commencent donc à se renverser par rotation cohérente vers l'axe des nanofils, ce qui mène à une valeur élevée de l'indicateur de réversibilité (0,85, voir figure 6.9) et aucune contribution à la distribution FORC (ligne A, figure 6.8 (b)). Cette rotation hors plan réduit assez le champ d'interaction situé dans le plan pour qu'à un moment donné, un alignement de l'aimantation dans le plan devienne possible, menant à un renversement irréversible de l'aimantation de certains nanodisques. Le long de la ligne B, la majorité des nanodisques font une rotation cohérente ($\eta = 0,70$), mais certains se renversent de manière incohérente et irréversible. La quantité d'aimantation renversée de manière incohérente augmente jusqu'à atteindre un maximum (ligne C, $\eta = 0,55$), puis diminue jusqu'à ce que le champ d'interaction situé dans le plan soit assez fort pour rendre de nouveau défavorable un alignement de l'aimantation dans le plan. Ceci ramène à une rotation cohérente des nanodisques (ligne D, $\eta = 0,70$).

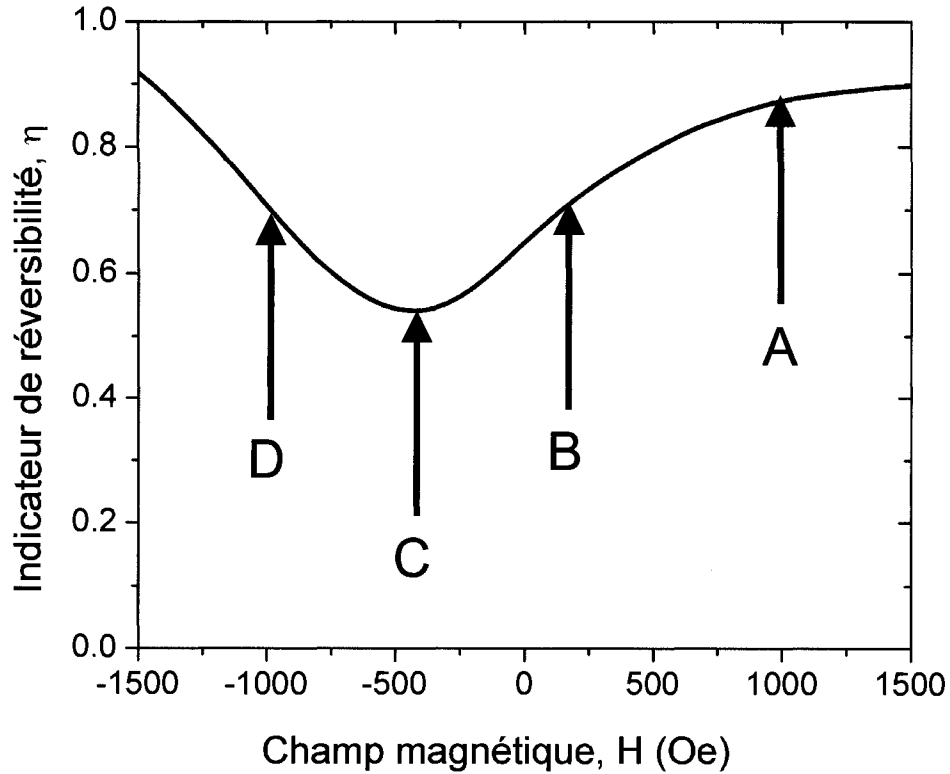


Figure 6.9 : Indicateur de réversibilité en fonction du champ magnétique pour Ni20/Cu10.

Pour sa part, la figure 6.8 (c) montre une distribution FORC beaucoup plus localisée que les deux autres. Le plan facile d'anisotropie favorise un comportement bistable pour les nanodisques, ce qui mène au pic bien défini sur le résultat FORC.

6.5.2 Coercivité

La figure 6.10 présente l'évolution des coercivités en fonction du ratio t_{Cu}/t_{Ni} . Tout comme dans la direction axiale, H_c^{FORC} reste supérieure à la coercivité de la courbe d'hystérésis majeure. Les deux courbes ne semblent pas, au premier abord, reliées. Une partie de l'explication provient du fait que H_c^{FORC} dépend de la somme de la composante dans le plan du champ d'interaction inter-fil, lequel est positif, et de la coercivité des nanodisques. En soustrayant de H_c^{FORC} la valeur de cette composante, prise comme étant la moitié du champ d'interaction à la saturation lorsque le champ est appliqué dans la direction axiale, soit $0,5\Delta H_u$, la courbe obtenue est qualitativement semblable à H_c^{Hyst} .

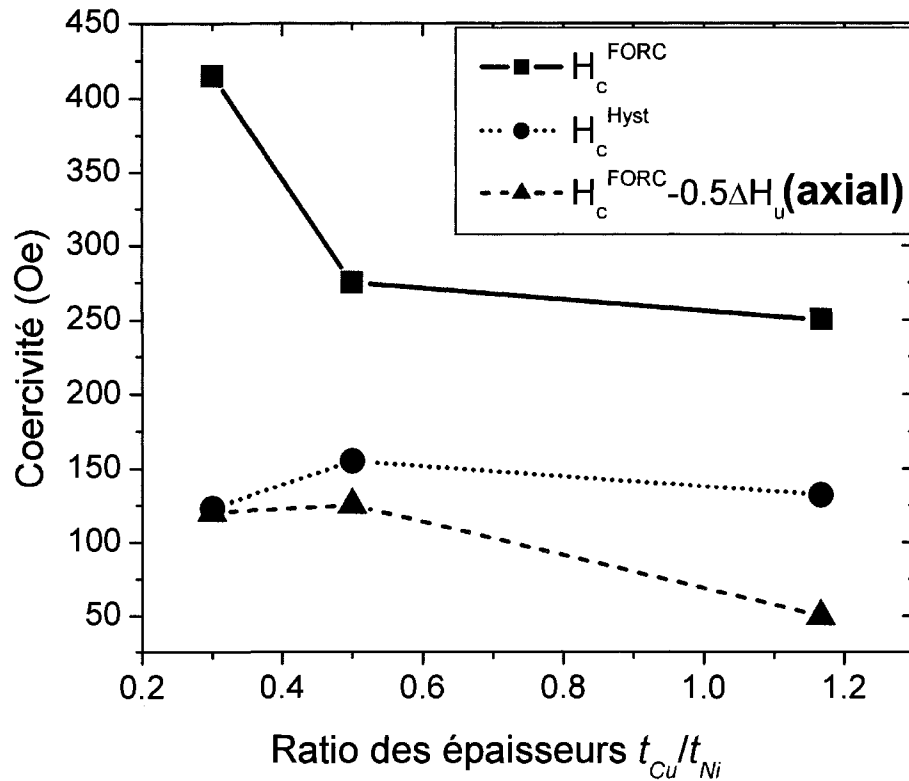


Figure 6.10 : Coercivité en fonction du ratio des épaisseurs (direction transverse).

6.6 Synthèse

Une série de réseaux de nanofils multicouches de Ni/Cu a ainsi été analysée via les courbes de renversement du premier ordre, autant dans la direction axiale que transverse. L'indicateur de réversibilité η s'est avéré un outil adéquat pour observer le changement d'anisotropie avec le ratio des épaisseurs. Les résultats FORC ont permis de caractériser quantitativement la coercivité des nanodisques de Ni et le champ d'interaction (augmentation selon l'épaisseur de Ni). Des informations qualitatives sur le comportement magnétique des réseaux, comme la grande non-uniformité de champ d'interaction dans la direction axiale et le mélange de renversement cohérent et incohérent dans la direction transverse, ont aussi été extraites des résultats FORC.

C'est sur ce que se clôt le deuxième et dernier volet de cette thèse. Le premier objectif spécifique concernant les réseaux de nanofils était de mesurer et calculer les résultats FORC de divers réseaux de nanofils ferromagnétiques. Cet objectif a été atteint avec succès, pour des réseaux de nanofils uniformes et multicouches, à la fois dans la direction axiale et transverse. Le deuxième objectif était d'interpréter les résultats obtenus en termes de phénomènes physiques se produisant lors du renversement de l'aimantation. Les conclusions principales sont résumées ci-dessous.

- Mécanisme de renversement de l'aimantation
 - Nanofils uniformes
 - Direction axiale : renversement non-cohérent, par nucléation et propagation de paroi
 - Direction transverse : rotation cohérente de domaines vers l'axe des nanofils et renversement irréversible des parois formées entre ces domaines
 - Nanofils multicouches
 - Direction transverse : mélange de rotation cohérente et incohérente
- Non-uniformité spatiale du champ d'interaction anti-parallèle (direction axiale)
- Piégeage de l'aimantation dans la zone de filtration des membranes commerciales, influençant fortement les processus irréversibles (nanofils uniformes, direction transverse)
- Passage d'un axe facile à un plan facile selon le ratio des épaisseurs des nanodisques de Cu et de Ni

Finalement, le troisième objectif était de caractériser quantitativement ces phénomènes physiques afin d'être en mesure de simuler le comportement magnétique des réseaux de nanofils. Cet objectif n'a pu qu'être partiellement atteint, étant donné la grande non-uniformité géométrique des réseaux étudiés. Une évaluation précise de la coercivité des nanofils individuels s'est ainsi avérée très complexe. D'autres paramètres ont cependant pu être quantifiés :

- Champ d'interaction à la saturation
- Coercivité approximative des nanofils et nanodisques individuels
- Longueur de la zone de filtration où l'aimantation se retrouve piégée
- Anisotropie effective des réseaux

Conclusion

*No matter how many instances of white swans we may have observed,
this does not justify the conclusion that all swans are white.*

- Karl Popper

Ce projet a contribué à augmenter la compréhension du comportement magnétique des réseaux de nanofils ferromagnétiques, qu'ils soient uniformes ou multicouches. Un cadre d'analyse est maintenant disponible afin d'extraire des informations quantitatives sur les propriétés magnétostatiques des nanofils individuels, à partir des courbes de renversement du premier ordre. Les principales difficultés concernant l'interprétation des résultats FORC, soit la présence d'un champ d'interaction élevé et le fait que les hystérons mathématiques n'aient pas nécessairement de signification physique, ont été levées grâce au développement du modèle d'analyse physique. Cela a principalement permis d'investiguer sur la coercivité des nanofils ou nanodisques individuels, leur réversibilité, ainsi que le champ d'interaction perçu.

Un tel cadre d'analyse est essentiel pour que la technique des courbes de renversement du premier ordre devienne un outil standard de caractérisation des réseaux de nanofils. Les nombreux avantages de cette méthode innovatrice (nécessite seulement un magnétomètre standard, donne à la fois les caractéristiques magnétostatiques des nano-entités individuelles et les interactions entre elles, permet d'obtenir une représentation complète du renversement de l'aimantation, découple les processus réversibles et irréversibles) simplifie la caractérisation et l'étude des mécanismes physiques en jeu dans les réseaux de nanofils. Cela peut entraîner une diminution des coûts liés à la mise au point de réseaux de nanofils montrant des propriétés spécifiques, en vue d'intégration ultérieure dans un dispositif.

Ce projet de recherche s'est déroulé en deux étapes. Il a premièrement fallu mettre au point des outils généraux de calculs, de présentation et d'interprétation des résultats

provenant des courbes de renversement du premier ordre. Ce travail était essentiel avant d'être en mesure de se pencher sur l'analyse des résultats FORC expérimentaux provenant de divers réseaux de nanofils ferromagnétiques uniformes et multicouches.

Les courbes de renversement du premier ordre sont des courbes mineures allant de différents champs de renversement à la saturation. Le principe à l'origine de leur mesure provient du fait qu'elles permettent de retrouver la fonction de pondération des opérateurs, appelés hystérons mathématiques, contenus dans le modèle classique de Preisach. Ces courbes proviennent à la fois des phénomènes de renversement de l'aimantation réversibles et irréversibles. La réversibilité du système influence la susceptibilité au début des courbes, tandis que la représentation des processus irréversibles, dans un plan H_c (champ coercitif) et H_u (champ d'interaction), est accessible via une dérivée seconde de l'aimantation selon les champs appliqué et de renversement. La combinaison des représentations des processus réversibles et irréversibles est appelée résultat FORC.

La plupart des systèmes magnétiques présentent des champs d'interaction élevés et ne rencontrent pas la condition de congruence nécessaire à l'application du modèle classique de Preisach. L'interprétation des résultats FORC doit ainsi être faite via un autre modèle. Partant du principe d'utiliser des hystérons possédant une signification physique, un modèle dit d'analyse physique a été développé. Il comporte trois formes d'hystérons, dits de base, correspondant respectivement aux courbes d'hystérésis d'une sphère ferromagnétique et isotrope, ainsi qu'aux axes facile et difficile lors de l'ajout d'une anisotropie uniaxiale. Les résultats FORC ont été simulés à partir des hystérons de base et de combinaisons linéaires (super-hystérons) avec un champ d'interaction moyen. Ceci a permis d'obtenir des relations entre les caractéristiques des distributions H_c^{FORC} (position sur l'axe H_c) et ΔH_u (demi-largeur de l'élongation selon l'axe H_u) et les caractéristiques des hystérons de base et du champ d'interaction appliqué sur le système. Dès qu'il y a un champ d'interaction, le résultat FORC doit être considéré comme la représentation du renversement de l'aimantation dans le système, plutôt que comme la distribution statistique des propriétés magnétostatiques des particules individuelles.

Les outils développés dans cette section correspondent aux objectifs spécifiques :

- Diagramme FORC extrapolé : représentation complète des processus irréversibles, même dans la région quasi-réversible (coercivité presque nulle).
- Indicateur de réversibilité η et paramètre spécifique de réversibilité η_{SH} : indication de la proportion de processus réversibles se produisant dans le système magnétique à partir de la susceptibilité initiale des courbes de renversement du premier ordre.
- Résultat FORC : représentation graphique des processus réversibles et irréversibles lors du renversement de l'aimantation.
- Modèle d'analyse physique : cadre d'analyse des résultats FORC basé sur des hystérons reliés à des processus physiques.

Ce modèle a mené à l'obtention de plusieurs résultats intéressants et importants concernant le comportement des hystérons dans le plan de Preisach :

- Non-unicité des systèmes physiques possibles pour un résultat FORC donné, sauf dans le cas d'un système composé uniquement d'hystérons faciles soumis à un champ d'interaction anti-parallèle
- Élongation des distributions selon l'axe H_u sous l'influence d'un champ d'interaction anti-parallèle
- Translation des distributions sur l'axe H_c sous l'influence d'un champ d'interaction parallèle
- Différence entre la combinaison linéaire de résultats FORC et le résultat FORC de la combinaison linéaire d'hystérons de différents types
 - Diminution de ΔH_u et augmentation de H_c^{FORC} de la distribution irréversible pour des hystérons faciles et difficiles soumis à un champ d'interaction anti-parallèle
- Diminution de la coercivité sur la courbe d'hystérésis lorsqu'il y a une partie réversible et une distribution de valeur de coercivité

À l'aide de ces résultats, la technique des courbes de renversement du premier ordre a été testée expérimentalement sur des réseaux de nanofils ferromagnétiques. C'est une nanostructure qu'il serait avantageux d'intégrer dans des dispositifs à haute

fréquence. Elle est fabriquée par électrodéposition dans une membrane diélectrique, ce qui permet d'obtenir autant des nanofils uniformes que multicouches. Sa géométrie définit deux directions principales, soit axiale (parallèle aux nanofils) et transverse (perpendiculaire aux nanofils). Le comportement magnétique global des réseaux de nanofils dépend de deux éléments, soit les propriétés magnétostatiques des nanofils individuels lorsqu'ils sont placés dans le réseau, ainsi que le champ d'interaction qu'ils perçoivent. Le but derrière l'application de la technique FORC sur cette nanostructure est d'être en mesure de déterminer simultanément ces deux informations expérimentalement.

Les outils développés précédemment ont été appliqués avec succès sur des réseaux de nanofils uniformes et multicouches, et ce, dans les directions axiale et transverse. Les résultats FORC montrent que tous les réseaux mesurés possèdent une partie réversible et une partie irréversible. La provenance physique de toutes les distributions n'a pas pu être identifiée avec certitude. Cependant, dans chaque cas, une explication plausible et justifiée a pu être apportée. Finalement, le troisième objectif spécifique de cette section, soit la caractérisation quantitative des propriétés magnétiques des réseaux de nanofils à partir des résultats FORC, a été partiellement atteint. La déviation des réseaux expérimentaux utilisés, en comparaison avec des réseaux parfaits (longueur, diamètre et agencement spatial des nanofils uniformes, pas de zone de filtration, pas d'effets de bord du réseau, etc.), a complexifié l'analyse quantitative en induisant des distributions sur les différentes propriétés magnétostatiques individuelles.

La mesure des courbes de renversement du premier ordre de divers réseaux de nanofils ferromagnétiques, en appliquant les outils développés précédemment, a permis d'obtenir plusieurs résultats intéressants concernant leur comportement magnétique. En premier lieu, les mesures expérimentales ont mis en évidence le fait que le comportement réel des nanofils diffère de leur comportement théorique. Notamment, le mécanisme de renversement de l'aimantation des nanofils ou des nanodisques est différent de celui prédit par le modèle de Stoner-Wohlfarth. De plus, les réseaux de nanofils réels sont caractérisés par une distribution spatiale du champ d'interaction.

Plus spécifiquement, lorsque le champ est appliqué parallèlement à l'axe des nanofils (direction axiale), les principaux résultats obtenus sont énumérés ci-dessous. Il est à noter qu'ils demeurent valables peu importe le matériau, la géométrie ou la structure du réseau (dans la limite des situations étudiées dans ce projet).

- Renversement non-cohérent de l'aimantation
 - Le comportement partiellement réversible et la coercivité inférieure au champ d'anisotropie de forme des nanofils uniformes corroborent l'hypothèse du renversement de l'aimantation des nanofils par nucléation et propagation de paroi.
- Champ d'interaction anti-parallèle
 - Il n'est pas uniforme au sein du réseau, ni dans le plan, ni en hauteur.
 - Sa valeur à la saturation peut être extraite des résultats FORC.
 - Elle augmente proportionnellement à l'épaisseur des nanodisques de nickel.
- Coercivité des nanofils ou nanodisques individuels
 - Les échantillons utilisés présentent trop de variation géométrique pour pouvoir faire une évaluation précise.
 - La fin du renversement de l'aimantation des nanofils uniformes créerait une distribution irréversible additionnelle sur le résultat FORC, de manière plus prépondérante pour de petits diamètres. Il ne faut donc pas associer cette distribution apparente à une distribution de champ coercitif physique.

Dans le cas d'un champ magnétique appliqué perpendiculairement aux nanofils (direction transverse), la mesure des courbes de renversement du premier ordre a mené aux conclusions suivantes :

- Renversement de l'aimantation
 - Il est quasi-totalement réversible pour des nanofils uniformes d'un diamètre de 175 nm. Il peut être modélisé par un renversement cohérent régi par le champ d'anisotropie de forme et le champ d'interaction variant en grandeur et direction selon l'aimantation totale.

- Pour des nanofils uniformes ayant un diamètre beaucoup plus faible (15 nm), le mécanisme de renversement semble différent.
- Dans le cas des nanofils multicouches, il s'effectue via un mélange de renversement cohérent et incohérent.
- Champ d'interaction parallèle et coercivité
 - La faible coercivité des nanofils uniformes serait due au renversement des parois présentes entre les domaines se renversant de manière cohérente. Ce résultat est valable uniquement lorsque l'intégralité du nanofil présente un diamètre constant. La présence d'une zone de filtration, comme dans les membranes commerciales, vient piéger une partie de l'aimantation et induire un renversement irréversible.
 - La coercivité FORC des nanofils multicouches représente la somme de la coercivité des nanodisques de nickel et la composante transverse du champ d'interaction parallèle.

Finalement, le modèle d'analyse physique a permis de mettre au point une méthode afin d'extraire les valeurs de trois caractéristiques des réseaux de nanofils, à savoir :

- Champ d'interaction à saturation
 - Donné par ΔH_u , mesuré comme étant la demi-longueur de la distribution irréversible parallèlement à l'axe d'interaction.
- Coercivité moyenne des nanofils
 - Donnée par H_c^{FORC} , mesurée comme étant la position de la distribution irréversible sur l'axe de coercivité. Cette mesure donne cependant une approximation, puisqu'elle n'est pas exacte, étant donnée la présence de phénomènes réversibles et de distributions de champ d'interaction et de coercivité dans les échantillons étudiés.
- Anisotropie
 - Donnée par la valeur minimum de l'indicateur de réversibilité η , mesuré comme étant le ratio des susceptibilités de la courbe de renversement du premier ordre et de la courbe d'hystérésis majeure au champ de renversement.

*Science is always wrong.
It never solves a problem without creating ten more.*
- George Bernard Shaw

Comme l'exprime si justement George Bernard Shaw, aucun projet de recherche ne peut jamais être considéré comme complètement terminé, les réponses accumulées permettant de soulever de nouvelles questions. Ce projet ne fait pas exception à la règle, ayant pavé la voie à plusieurs avenues possibles.

Strictement du point de vue du développement de la technique des courbes de renversement du premier ordre, deux points mériteraient d'être approfondis plus en détail. Premièrement, l'indicateur réversibilité η , tel que présentement défini, donne une appréciation approximative de la proportion de processus de renversement de l'aimantation réversibles. Une procédure permettant d'obtenir la valeur exacte de cette proportion, et ce, peu importe les caractéristiques du système magnétique étudié, serait plus avantageuse car plus précise. Deuxièmement, le modèle d'analyse physique présenté ici doit être considéré comme une ébauche. En effet, seuls des cas simples ont été analysés jusqu'ici. Les conséquences sur le résultat FORC de plusieurs aspects pourraient s'avérer particulièrement utiles, notamment : variation dans l'espace du champ d'interaction dipolaire, combinaison d'hystérons soumis à des champs d'interaction différents, combinaisons linéaires de plus de deux types d'hystérons, etc. Étant donné que le cœur du code de simulation reste inchangé, ces implémentations sont relativement aisées à faire à ce stade-ci, mais permettraient d'obtenir un outil d'analyse beaucoup plus performant et versatile.

Dans le but de mieux comprendre le comportement magnétique des réseaux de nanofils uniformes, certaines expériences sont envisageables afin d'être en mesure de confirmer ou d'infirmer les hypothèses posées présentement. Une manière d'investiguer la structure magnétique lors du renversement de l'aimantation transverse consiste à effectuer de la résonance ferromagnétique en balayant le champ appliqué. Pour certaines configurations de champ, en plus du pic de résonance de la structure saturée, il peut

apparaître un deuxième pic, situé à bas champ. Selon les conditions de résonance de ce pic, il est possible de déduire la structure magnétique non-saturée. Des essais préliminaires avec un réseau de nanofils de CoFeB tendent à confirmer l'hypothèse proposée pour ce type de réseau, soit qu'il y aurait une rotation cohérente de l'aimantation vers l'axe des nanofils.

Afin de savoir si le renversement s'effectue de la même manière lorsque le diamètre est beaucoup plus petit, ce que les résultats obtenus semblent réfuter, la meilleure option est de fabriquer des réseaux de Ni et de CoFeB de faibles diamètres. Cette option est maintenant envisageable, puisque le Laboratoire de Magnéto-Électronique possède maintenant l'expertise et l'équipement nécessaires à la fabrication de membranes de dimensions voulues. De plus, le galvanostat/potentiostat récemment acquis devrait faciliter la fabrication des réseaux de nanofils. En mesurant les courbes de renversement du premier ordre et des spectres de résonance ferromagnétique d'une série d'échantillons dont seul le diamètre change, il sera beaucoup plus aisé de conclure sur l'effet du diamètre dans le mécanisme de renversement de l'aimantation transverse. Des tests préliminaires tendent à montrer que le diamètre des nanofils jouent effectivement un rôle important dans le mécanisme de renversement de l'aimantation.

Ces nouveaux échantillons pourraient aussi s'avérer utiles pour comprendre exactement la provenance de la distribution irréversible additionnelle visible dans la direction axiale, puisqu'elle est prépondérante lorsque le diamètre est faible. L'idéal serait de parvenir à fabriquer des réseaux les plus parfaits possibles, en termes d'uniformité du diamètre et de la longueur des nanofils, ainsi que du pas du réseau. Ceci permettrait de se débarrasser d'effets dus aux différentes distributions, indésirables puisqu'ils complexifient le comportement magnétique du réseau. L'extraction d'une valeur précise de la coercivité des nanofils à partir des résultats FORC serait ainsi également envisageable.

Les mesures effectuées jusqu'ici sur les réseaux de nanofils ont été limitées aux deux directions principales induites par la géométrie des réseaux, soit parallèle et perpendiculaire à l'axe des nanofils. Cependant, des mesures effectuées selon les angles

intermédiaires entre ces deux directions aideraient fortement à la compréhension du comportement magnétique, notamment en permettant de tester les différents modèles élaborés sur une série de résultats expérimentaux. De plus, il est également possible de prendre avantage du fait que la composante perpendiculaire de l'aimantation n'est pas nulle pour ces directions intermédiaires, ce qui augmente l'information accessible via cette mesure. Louis-Philippe Carignan analyse présentement les courbes d'hystérésis majeures angulaires et vectorielles de réseaux de 175 nm de diamètre. Les courbes de renversement du premier ordre angulaires et vectorielles ont également été mesurées. L'analyse préliminaire permet d'affirmer que le comportement des réseaux de 175 nm de diamètre (Ni et CoFeB) est semblable, mais diffère de celui des réseaux de faible diamètre (CoFe). Ceci est basé uniquement sur la composante parallèle de l'aimantation, puisqu'un cadre d'interprétation des résultats FORC provenant de la composante perpendiculaire de l'aimantation doit être développé avant toute analyse possible.

Finalement, la présente étude a été focalisée sur les réseaux de nanofils uniformes dont l'axe facile se trouve selon l'axe des nanofils, et ce, dans une perspective de simplicité. Toutefois, la direction de l'axe facile étant le résultat d'une compétition entre l'anisotropie de forme des nanofils et le champ d'interaction dipolaire, des réseaux de géométrie légèrement différente présente plutôt un plan facile. Ce changement influence de manière importante leur comportement magnétique. Encore une fois, il serait intéressant d'utiliser les courbes de renversement du premier ordre afin de caractériser ce comportement et découvrir quels sont les avantages possibles de ce type d'anisotropie.

Pour terminer, je ne pourrais insister trop sur le point suivant : le cœur de ce projet peut relativement facilement être extrapolé pour aider à la compréhension du comportement magnétique d'autres nanostructures magnétiques. Les bases de la caractérisation et de l'interprétation sont identiques, il suffit d'adapter le modèle au système étudié. Cependant, l'éventail des systèmes pouvant être étudiés par les courbes de renversement du premier ordre ne se limite pas aux nanostructures magnétiques, puisque cette technique novatrice permet de jeter un regard privilégié sur le comportement de n'importe quelle foule.

Références

- [1] G. Le Bon, *Psychologie des foules* (Les Presses universitaires de France, Paris, 1895).
- [2] A. Saib, M. Darques, L. Piraux, D. Vanhoenacker-Janvier, I. Huynen, IEEE Trans. Microw. Theory Tech. **53**, 2043 (2005).
- [3] D. Almalawi, N. Coombs, M. Moskovits, J. Appl. Phys. **70**, 4421 (1991).
- [4] M. Lindeberg, K. Hjort, Sens. Actuat. A **105**, 150 (2003).
- [5] I. Dumitru, F. Li, J.B. Wiley, D. Cimpoesu, A. Stancu, L. Spinu, IEEE Trans. Magn. **42**, 3225 (2006).
- [6] L.-P. Carignan, C. Lacroix, A. Ouimet, M. Ciureanu, A. Yelon, D. Ménard, J. Appl. Phys. **102**, 023905 (2007).
- [7] Q.-F. Zhan, J.-H. Gao, Y.-Q. Liang, N.-L. Di, Z.-H. Cheng, Phys. Rev. B **72**, 24428 (2005).
- [8] P. S. Fodor, G. M. Tsoi, and L. E. Wenger, J. Appl. Phys. **103**, 07B713 (2008).
- [9] C.R. Pike, A.P. Roberts, K.L. Verosub, J. Appl. Phys. **85**, 6660 (1999).
- [10] I. D. Mayergoyz, J. Appl. Phys. **57**, 3804 (1985).
- [11] F. Béron, mémoire de maîtrise, « Propriétés magnétostatiques de nanofils ferromagnétiques et interactions dues à l'effet du réseau », École Polytechnique de Montréal, août 2005.
- [12] A. Stancu, C.R. Pike, L. Stoleriu, P. Postolache, D. Cimpoesu, J. Appl. Phys. **93**, 6620 (2003).
- [13] F. Béron, D. Ménard, A. Yelon, J. Appl. Phys. **103**, 07D908 (2008).
- [14] L. Spinu, A. Stancu, C. Radu, F. Li, J.B. Wiley, IEEE Trans. Magn. **40**, 2116 (2004).
- [15] R. Lavín, J.C. Denardin, J. Escrig, D. Altbir, A. Cortés, H. Gómez, *Magnetic characterization of nanowire arrays using first order reversal curves*, 2008 IEEE International Magnetism Conference (INTERMAG), Madrid, Espagne, 8 mai 2008.
- [16] T.R.F. Peixoto, D.R. Cornejo, J. Magn. Magn. Mat. **320**, e279 (2008).

- [17] F. Béron, L. Clime, M. Ciureanu, D. Ménard, R.W. Cochrane, A. Yelon, *J. Nanosci. Nanotechnol* **8**, 2944 (2008).
- [18] F. Béron, L. Clime, M. Ciureanu, D. Ménard, R.W. Cochrane, A. Yelon, *IEEE Trans. Magn.* **42**, 3060 (2006).
- [19] F. Béron, L. Clime, M. Ciureanu, D. Ménard, R.W. Cochrane, A. Yelon, *J. Appl. Phys.* **101**, 09J107 (2007).
- [20] F. Béron, L.-P. Carignan, D. Ménard, A. Yelon, *IEEE Trans. Magn.* **44**, sous presse (2008).
- [21] F. Béron, L. Clime, M. Ciureanu, D. Ménard, R.W. Cochrane, A. Yelon, *Magnetostatic interactions and coercivities of ferromagnetic soft nanowire arrays studied by FORC diagrams*, 2006 IEEE International Magnetism Conference (INTERMAG), San Diego, Etats-Unis, 10 mai 2006.
- [22] F. Béron, L. Clime, M. Ciureanu, D. Ménard, R.W. Cochrane, A. Yelon, *In-plane reversible and irreversible magnetization reversal of ferromagnetic soft nanowire arrays*, 10th Joint MMM/Intermag Conference, Baltimore, Etats-Unis, 11 janvier 2007.
- [23] F. Béron, L.-P. Carignan, D. Ménard, A. Yelon, *Magnetic behavior of Ni/Cu multilayer nanowire arrays studied by first-order reversal curve diagrams*, 2008 IEEE International Magnetism Conference (INTERMAG), Madrid, Espagne, 7 mai 2008.
- [24] F. Béron, D. Ménard, A. Yelon, *FORC diagrams of magnetic entities with mean interaction field: A physical analysis perspective*, 52nd Magnetism and Magnetic Materials Conference (MMM), Tampa, Etats-Unis, 6 novembre 2007.
- [25] F. Béron, D. Ménard, A. Yelon, *In-plane magnetization reversal of ferromagnetic nanowire arrays*, 2007 Materials Research Society (MRS) Fall Meeting, Boston, Etats-Unis, 29 novembre 2007.
- [26] F. Preisach, *Z. Phys.* **94**, 277 (1935). Une présentation du modèle classique de Preisach est disponible à la section 1.1 de l'ouvrage I. Mayergoyz, *Mathematical models of hysteresis and their applications* (Elsevier, New York, 2003).
- [27] *Proceedings of the Third Int. Symposium on Hysteresis and Micromagnetic Modelling*, *Physica B : Cond. Mat.* **306**, no 1-4 (2001).
- [28] M. Krasnoselskii et A. Pokrovskii, *Systems with hysteresis*, (Nauka, Moscou, 1983). Un résumé est disponible à la section 1.1 de : I. Mayergoyz, *Mathematical models of hysteresis and their applications* (Elsevier, New York, 2003).

- [29] A. Stancu, L. Stoleriu, P. Postolache, R. Tanasa, J. Magn. Magn. Mat. **290-291**, 490 (2005).
- [30] V. Basso, G. Bertotti, P. Duhaj, E. Ferrara, V. Haslar, L. Kraus, J. Pokorny, K. Zaveta, J. Magn Magn Mat. **157/158**, 217 (1996).
- [31] A.P. Roberts, C.R. Pike, K.L. Verosub, J. Geophys. Res. **105**, 28461 (2000).
- [32] C.R. Pike, A.P. Roberts, M.J. Dekkers, K.L. Verosub, Phys. Earth Planet. Int. **126**, 11 (2001).
- [33] C. Carvallo, A.R. Muxworthy, D.J. Dunlop, W. Williams, Earth Planet. Sc. Lett. **213**, 375 (2003).
- [34] A.R. Muxworthy, D.J. Dunlop, Earth Planet. Sci. Lett. **203**, 369 (2002).
- [35] A.R. Muxworthy, D. Heslop, W. Williams, Geophys. J. Int. **158**, 888 (2004).
- [36] A.R. Muxworthy, J. G. King, D. Heslop, J. Geophys. Res. **110**, B01105 (2005).
- [37] A.R. Muxworthy, W. Williams, J. Appl. Phys. **97**, 063905 (2005).
- [38] P. Postolache, M. Cerchez, L. Stoleriu, A. Stancu, IEEE Trans. Magn. **39**, 2531 (2003).
- [39] J.E. Davies, O. Hellwig, E.E. Fullerton, G. Denbeaux, J.B. Kortright, K. Liu, Phys. Rev B **70**, 224434 (2004).
- [40] H. Chiriac, N. Lupu, L. Stoleriu, P. Postolache, A. Stancu, J. Magn. .Magn. Mat. **316**, 177 (2007).
- [41] H.G. Katzgraber, F. Pazmandi, C.R. Pike, K. Liu, R.T. Scalettar, K.L. Verosub, G.T. Zimanyi, Phys. Rev. Lett. **89**, 257202 (2002).
- [42] M. Fecioru-Morariu, D. Ricinschi, P. Postolache, C. E. Ciomaga, A. Stancu, L. Mitoseriu, J. Optoelectronics Adv. Mater. **6**, 1059 (2004).
- [43] C.R. Pike, A. Fernandez, J. Appl. Phys. **85**, 6668 (1999).
- [44] R.K. Dumas, C.-P. Li, I.V. Roshchin, I.K. Schuller, K. Liu, Phys. Rev. B **75**, 134405 (2007).
- [45] C.R. Pike, C.A. Ross, R.T. Scalettar, G. Zimanyi, Phys. Rev. B **71**, 134407 (2005).
- [46] A. Stancu, C.R. Pike, L. Stoleriu, P. Postolache, D. Cimpoesu, J. Appl. Phys. **93**, 6620 (2003).

- [47] R. Tanasa, A. Stancu, IEEE Trans. Magn. **42**, 3246 (2006).
- [48] L. Stoleriu, A. Stancu, IEEE Trans. Magn. **42**, 3159 (2006).
- [49] A. Stancu, P. Andrei, Physica B **372**, 72 (2006).
- [50] M. Winklhofer, R. K. Dumas, K. Liu, J. Appl. Phys. **103**, 07C518 (2008).
- [51] L. Clime, A. Stancu, P. Ciureanu, A. Yelon, J. Optoelectronics Adv. Mater. **6**, 1005 (2004).
- [52] C.R. Pike, Phys. Rev. B **68**, 104424 (2003).
- [53] E. Della Torre, IEEE Trans. Audio Electroacoust. **AE-14**, 86 (1966).
- [54] M. Pardavi-Horvath, E. Della Torre, F. Vajda, G. Vertesy, IEEE Trans. Magn. **29**, 3793 (1993).
- [55] E.C. Stoner, E.P. Wohlfarth, Philos. Trans. Roy. Soc. London **A240**, 599 (1948), réimprimé dans IEEE Trans. Magn. **27**, 3475 (1991).
- [56] L. Clime, P. Ciureanu, A. Yelon, J. Magn. Magn. Mater. **297**, 60 (2006).
- [57] L. Clime, F. Béron, P. Ciureanu, M. Ciureanu, R.W. Cochrane, A. Yelon, J. Magn. Magn. Mater. **299**, 487 (2006).
- [58] H. Masuda, K. Fukuda, Science, **268**, 1466 (1995).
- [59] A. Blondel, J. P. Meier, B. Doudin, J.-Ph. Ansermet, Appl. Phys. Lett. **65**, 3019 (1994).
- [60] L. Piraux, J. M. George, J. F. Despres, C. Leroy, E. Ferain, R. Legras, K. Ounadjela, A. Fert, Appl. Phys. Lett. **65**, 2484 (1994).
- [61] M. Darques, A. Encinas, L. Vila, L. Piraux, J. Phys. D : Appl. Phys. **37**, 1411 (2004).
- [62] M. Ciureanu, F. Béron, L. Clime, P. Ciureanu, A. Yelon, T.A. Ovari, R.W. Cochrane, F. Normandin, T. Veres, Electrochim. Acta, **50**, 4487 (2005).
- [63] K. Nielsh, F. Müller, A.-P. Li, U. Gösele, Adv. Mater. **12**, 582 (2000).
- [64] M. Alper, K. Attenborough, R. Hart, S. J. Lane, D. S. Lashmore, C. Younes, W. Schwarzacher, Appl. Phys. Lett. **63**, 2144 (1993).
- [65] S. Foner, Rev. Sci Inst. **27**, 548 (1956).

- [66] R. Hertel, J. Appl. Phys. **90**, 5752 (2001).
- [67] W. Wernsdorfer, B. Doudin, D. Mailly, K. Hasselbach, A. Benoit, J. Meier, J.-P. Ansermet, B. Barbara, Phys. Rev. Lett. **77**, 1873 (1996).
- [68] R. Hertel, J. Kirschner, Physica B, **343**, 206 (2004).
- [69] Y. Henry, A. Iovan, J.-M. George, L. Piraux, Phys. Rev. B, **66**, 184430 (2002).
- [70] P. S. Fodor, G. M. Tsoi, and L. E. Wenger, J. Appl. Phys. **91**, 8186 (2002).
- [71] P. Weiss, R. Forrer, Ann. Phys. (Paris) **12**, 352 (1929). Résultat aussi présenté dans P. Weiss, R. Forrer, Comptes rendus hebdomadaires des séances de l'Académie des sciences, **189**, 663 (1929).
- [72] P. S. Fodor, G. M. Tsoi, and L. E. Wenger, J. Appl. Phys. **93**, 7035 (2003).
- [73] R. M. Bozorth, J. Appl. Phys. **8**, 575 (1937).
- [74] X.T. Tang, G.C. Wang, M. Shima, J. Magn. Magn. Mat. **309**, 188 (2007).
- [75] B. Ye, F. Li, D. Cimpoesu, J.B. Wiley, J.-S. Jung, A. Stancu, L. Spinu, J. Magn. Magn. Mat. **316**, e56 (2007).
- [76] A. Saib, D. Vanhoenacker-Janvier, J.-P. Raskin, A. Crahay, I. Huynen, Proceedings of the 2001 1st IEEE Conference on Nanotechnology, 2001. (IEEE-NANO 2001), 260 (2001).
- [77] L. Piraux, K. Renard, R. Guillemet, S. Mátéfi-Tempfli, M. Mátéfi-Tempfli, V.A. Antohe, S. Fusil, K. Bouzehouane, V. Cros, Nano Lett. **7**, 2563 (2007).
- [78] M. Darques, A.-S. Bogaert, F. Elhoussine, S. Michotte, J. de la Torre Medina, A. Encinas, L. Piraux, J. Phys. D: Appl. Phys. **39**, 5025 (2006).
- [79] A. Cziraki, M. Koteles, L. Peter, Z. Kupay, J. Padar, L. Pogany, I. Bakonyi, M. Uhlemann, M. Herrich, B. Arnold, J. Thomas, H.D. Bauer, K. Wetzig, Thin Solid Films **433**, 237 (2003).
- [80] H. Wang, Y.C. Wu, L. Zhang, X. Hu, Appl. Phys. Lett. **89**, 232508 (2006).
- [81] L. Tan, P.D. McGary, B.J.H. Stadler, J. Appl. Phys. **103**, 07B504 (2008).
- [82] L. Tan, B.J.H. Stadler, J. Mater. Res. **21**, 2870 (2006).

Annexe A: Modèle mobile de Preisach

Afin de relaxer la condition de congruence du modèle classique de Preisach, qui n'est pas respectée dans la majorité des systèmes magnétiques, plusieurs variantes du modèle initial ont été développées. La présente annexe présente la plus simple d'entre elles, soit l'ajout d'un terme de champ d'interaction proportionnel à l'aimantation, ce qui donne le modèle mobile de Preisach. Ce modèle peut être utilisé comme une première approximation pour modéliser le comportement d'un réseau de nanofils.¹⁷

A.1 Description du modèle

Tout comme le modèle classique de Preisach, le modèle mobile de Preisach considère uniquement des hystérons mathématiques caractérisés par des distributions statistiques de valeurs de H_c et de H_u . Il permet toutefois de prendre en compte un champ d'interaction moyen, i.e. directement proportionnel à l'aimantation globale :⁵³

$$H_{\text{int}} = k_{\text{inter}} \frac{M}{M_s} \quad (\text{A.1})$$

où une valeur de k_{inter} positive ou négative signifie respectivement un champ d'interaction parallèle ou anti-parallèle à l'aimantation.

A.2 Simulation

Le modèle mobile de Preisach requiert trois paramètres: le champ d'interaction moyen k_{inter} et les fonctions de distribution de champs coercitif et d'interaction local $f(H_c)$ et $g(H_{int})$. Ces fonctions doivent respecter les critères suivants :

$$\begin{aligned} f(H_c) : H_c > 0, \quad \int_0^\infty f(H_c) dH_c &= 1 \\ g(H_{int}) : \int_{-\infty}^\infty g(H_{int}) dH_{int} &= 1 \end{aligned} \quad (A.2)$$

Les résultats qui sont présentés ici sont simulés avec des fonctions de distribution gaussienne centrées en μ_c et $\mu_{int} = 0$ et de variances σ_c et σ_{int} , respectivement.

Le modèle stipule que, pour une certaine valeur de champ de renversement, l'aimantation normalisée est égale à l'unité moins les hystérons mathématiques qui se sont renversés, i.e. pour lesquels $H_r + k_{inter} \frac{M(H_r)}{M_s} + H_{int} < -H_c$, ce qui se traduit par l'équation implicite :

$$\frac{M(H_r)}{M_s} = 1 - 2 \int_0^\infty \int_{-\infty}^{\left(H_c + H_r + k_{inter} \frac{M(H_r)}{M_s}\right)} g(H_{int}) f(H_c) dH_{int} dH_c \quad (A.3)$$

Sur les courbes de renversement du premier ordre, les hystérons mathématiques dans une position négative seront ceux qui se sont renversés en H_r mais qui ne sont pas revenus à leur position positive, i.e. $H + k_{inter} \frac{M(H_r)}{M_s} + H_{int} < H_c$. L'aimantation normalisée est alors donnée par :

$$\frac{M(H_r, H)}{M_s} = 1 - 2 \int_0^\infty \int_{-\infty}^{\min\left\{\left(H_c + H_r + k_{inter} \frac{M(H_r)}{M_s}\right), H_c - H - k_{inter} \frac{M(H_r, H)}{M_s}\right\}} g(H_{int}) f(H_c) dH_{int} dH_c \quad (A.4)$$

Puisque les équations (A.3) et (A.4) sont implicites, elles sont premièrement évaluées en un certain nombre de valeurs discrètes sur un certain intervalle autour de la valeur de l'aimantation du point précédent. Le résultat s'approchant le plus de la valeur employée dans la borne de l'intégrale est considéré comme le résultat de l'équation.

A.3 Résultats

Les résultats présentés ci-dessous représentent les courbes de renversement du premier ordre simulées à partir du modèle mobile de Preisach avec les paramètres suivants : $\mu_c = 250$ Oe, σ_c et $\sigma_{int} = 5$ ou 75 Oe, pour des valeurs de k_{inter} de 0 et -500 Oe. Les courbes avec un champ d'interaction positif ($k_{inter} > 0$ Oe) n'ont pas pu être simulées adéquatement, puisqu'un champ d'interaction positif élevé provoque un saut d'aimantation dans la courbe d'hystérésis. Il est donc nécessaire d'utiliser un grand intervalle de valeur autour du dernier point et un grand nombre de points dans cet intervalle, ce qui peut mener à trouver un point d'équilibre différent de celui attendu. À cause de la technique employée pour évaluer les équations implicites, une légère divergence sur un point se propagera sur le reste de la courbe en grossissant.

Dans tous les cas présentés ci-dessus, la coercivité de la courbe d'hystérésis simulée est égale à la coercivité moyenne des hystérons mathématiques, μ_c , et l'indicateur de réversibilité en fonction du champ ($\eta(H_r)$) est nul lorsque l'aimantation se renverse.

A.3.1 Champ d'interaction nul

La figure A.1 présente les quatre cas différents pour un champ d'interaction nul, ce qui revient au modèle classique de Preisach. Ainsi, la distribution FORC y représente effectivement la distribution statistique des hystérons mathématiques :

$$\begin{aligned} H_c^{FORC} &= \mu_c \\ \Delta H_u &= 0 \end{aligned} \tag{A.5}$$

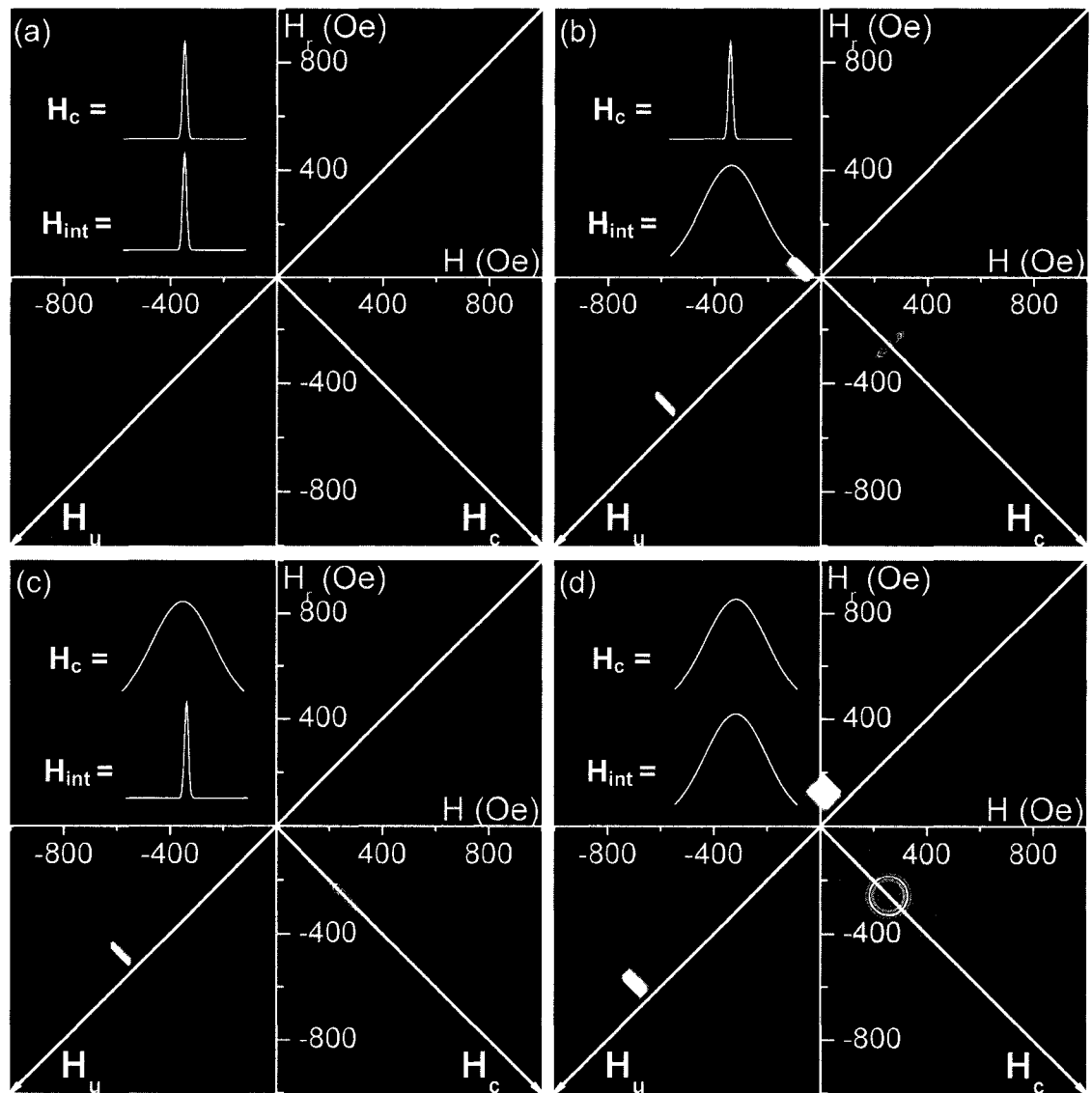


Figure A.1 : Résultats FORC simulés par le modèle mobile de Preisach ($\mu_c = 250$ Oe) avec un champ d'interaction moyen nul.

(a) $\sigma_c = 5$ Oe, $\sigma_{int} = 5$ Oe (b) $\sigma_c = 5$ Oe, $\sigma_{int} = 75$ Oe

(c) $\sigma_c = 75$ Oe, $\sigma_{int} = 5$ Oe (d) $\sigma_c = 75$ Oe, $\sigma_{int} = 75$ Oe

A.3.2 Champ d'interaction négatif

Avec un champ d'interaction négatif (figure A.2), la distribution FORC ne peut plus être considérée comme la distribution statistique des hystérons mathématiques.

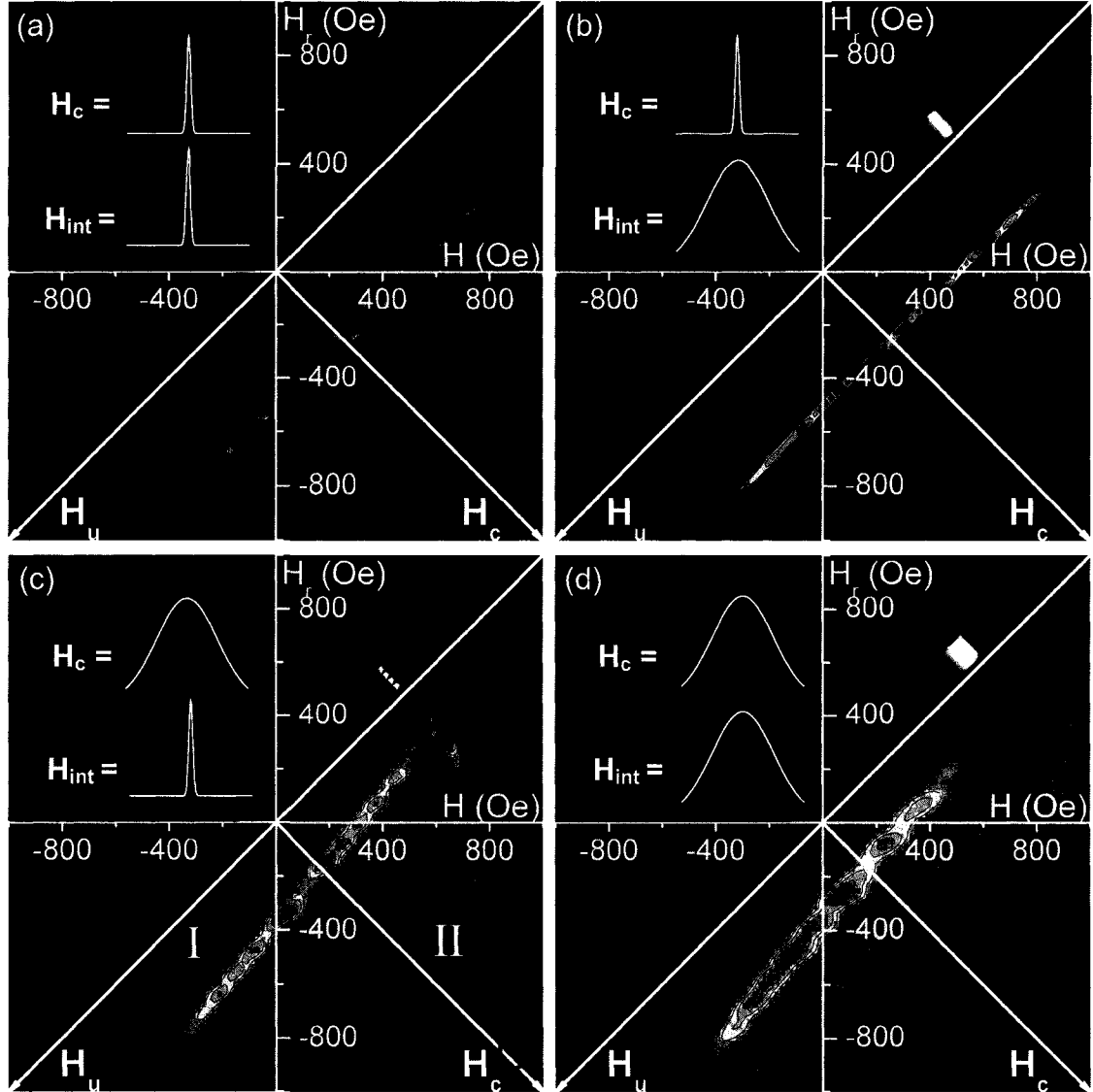


Figure A.2 : Résultats FORC simulés par le modèle mobile de Preisach ($\mu_c = 250$ Oe) avec un champ d'interaction moyen négatif ($k_{inter} = -500$ Oe).

(a) $\sigma_c = 5$ Oe, $\sigma_{int} = 5$ Oe (b) $\sigma_c = 5$ Oe, $\sigma_{int} = 75$ Oe

(c) $\sigma_c = 75$ Oe, $\sigma_{int} = 5$ Oe (d) $\sigma_c = 75$ Oe, $\sigma_{int} = 75$ Oe

Lorsque la variance de champ coercitif est faible [figures A.2 (a) et (b)], la distribution statistique est balayée parallèlement à l'axe d'interaction entre $-k_{inter}$ et $+k_{inter}$ (figure A.3) :

$$\begin{aligned} H_c^{FORC} &= \mu_c \\ \Delta H_u &= |k_{inter}| \end{aligned} \quad (A.6)$$

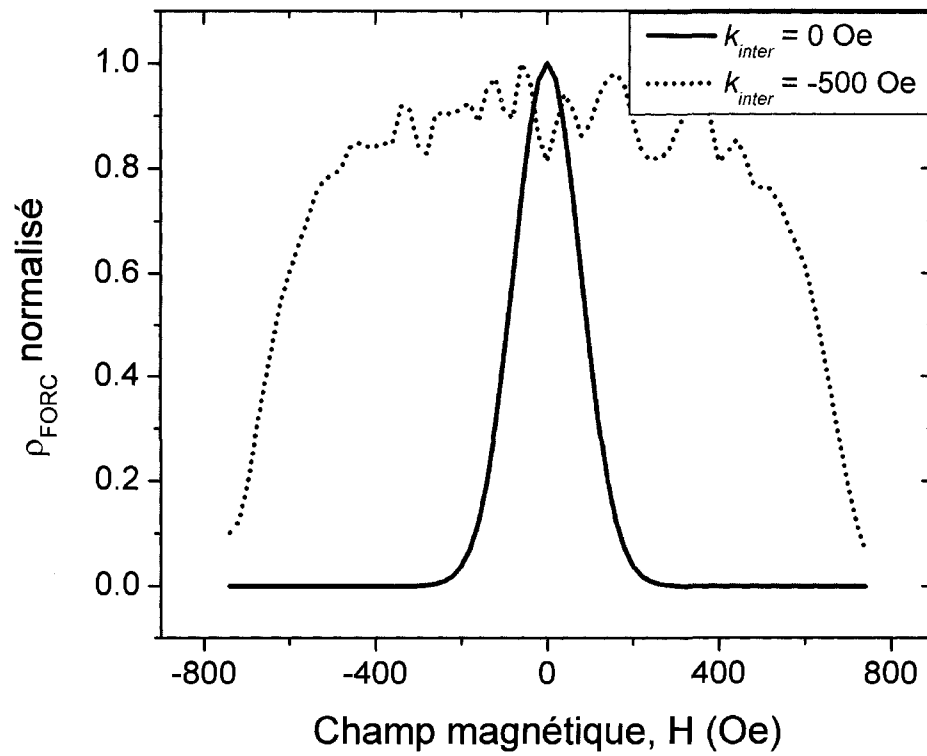


Figure A.3 : Sections selon l'axe H_u de distributions FORC simulées par le modèle mobile de Preisach. ($\mu_c = 250$ Oe, $\sigma_c = 5$ Oe, $\sigma_{int} = 75$ Oe)

Avec une variance élevée de champ coercitif, la distribution FORC n'est plus parallèle à l'axe H_u [figures A.2 (c) et (d)]. Le comportement est identique dans les deux cas, la seule différence est qu'une faible variance de champ d'interaction permet de bien distinguer la deuxième branche (II) de la distribution. Elle découle directement de la distribution de coercivité, qui fait en sorte que la fin du renversement des hystérons survient avant la fin de l'hystérésis. La paramétrisation de chaque branche donne les expressions suivantes :¹⁷

$$H_c^I(H_r) = \frac{H_c^\uparrow(H_r) + H_c^\downarrow}{2} \quad (\text{A.7})$$

$$H_u^I(H_r) = H_{\text{int}}(H_r) + \frac{H_c^\uparrow(H_r) - H_c^\downarrow}{2}$$

$$H_c^{II}(H_r) = H_c^\uparrow(H_r) + \frac{H_{\text{int}}(H_r) - H_{\text{int}}(H)}{2} \quad (\text{A.8})$$

$$H_u^{II}(H_r) = \frac{H_{\text{int}}(H_r) + H_{\text{int}}(H)}{2}$$

où $H_c^\uparrow(H_r)$ représente la coercivité maximale de l'hystéron s'étant renversé à $H = H_r$, $H_c^\downarrow$, la coercivité minimale des hystérons, et $H_{\text{int}}(H_r)$ et $H_{\text{int}}(H)$, les valeurs de champ d'interaction aux points H_r et H , respectivement. Il est ainsi possible d'obtenir les coordonnées (H_c, H_u) des trois points extremums de la distribution FORC [figure A.2 (c)] :

$$\begin{aligned} A : & \left(\mu_c, -k_{\text{inter}} \frac{H_c^\uparrow - H_c^\downarrow}{2} \right) \\ B : & \left(H_c^\downarrow, k_{\text{inter}} \right) \\ C : & \left(H_c^\uparrow - k_{\text{inter}}, 0 \right) \end{aligned} \quad (\text{A.9})$$

où $H_c^\uparrow$ représente la coercivité maximale des hystérons.

Annexe B: Programme de simulation pour le modèle d'analyse physique

La simulation des courbes d'hystérésis majeures et de renversement de premier ordre, selon le modèle d'analyse physique, peut être effectuée en utilisant n'importe quel langage de programmation standard. Pour des raisons de simplicité et d'intégration avec le calcul subséquent des résultats FORC, c'est le logiciel *MatLab* qui a été employé. Plusieurs variantes du script présenté ici sont nécessaires afin d'être en mesure de couvrir l'ensemble des situations discutées dans la section 3.3. Cependant, l'algorithme du calcul de l'aimantation d'équilibre demeure identique. L'exemple ci-dessous permet de simuler un système correspondant à une certaine distribution gaussienne d'hystérons fondamentaux ou faciles, mélangée selon une proportion donnée avec une distribution gaussienne différente d'hystérons difficiles, le tout soumis à un champ d'interaction externe.

B.1 Code *MatLab*

```
% SimComb_02_dist_Kintra_01.m
% Script calculant l'aimantation d'un système en fonction du champ
magnétique appliqué.
% Caractéristiques du système:
% - Champ d'interaction moyen
% - Distribution gaussienne du champ de saturation d'hystérons faciles
% - Distribution gaussienne du champ de saturation d'hystérons
difficiles
% Résultat:
% - Courbe d'hystérésis majeure
% - Ensemble de courbes FORC
% Fichier obtenu (M,H) =
% SH_(k_intra_fac)_(sigma_k_intra_fac)_(k_intra_diff)_(sigma_k_intra_
diff)_(k_inter)_(x_rev)_Hyst/FORC.txt
% Possibilité de simuler plusieurs systèmes à la suite

% Fanny Béron, 2008.
```

```

%%%-----INITIALISATION GLOBALE-----%%%

clear all

% Dossier de sauvegarde du fichier
FilePath = 'C:\Documents and Settings\Fanny\My
Documents\Projet\Hystérésis\Hysteron\Comb_These\Sim_Irr\';

% Nombre d'hystérons total
N = 1000;

% Paramètres des systèmes
% [système #1: k_intra_fac sigma_k_intra_fac
%             |k_intra_diff| sigma_k_intra_diff
%             k_inter x_rev;
% système #2: ...]
Para = [250 50 250 50 -1000 0.25; 250 50 250 50 0 0.25];

% Choix du type de courbe voulue
Type = input('Type de courbe? (1 = majeure, 2 = FORC) ');

if Type == 1      % Hystérésis
    TypeFic = 'Hyst';
    % Champ maximum
    HappMax = 2000;
    % Incrément de champ
    HappInc = 25;
    % Construction du vecteur champ appliqué
    HappAller = [HappMax:-HappInc:-HappMax];
    HappRetour = [-HappMax:HappInc:HappMax];
    Happ = [HappAller HappRetour];
else if Type == 2      %FORC
    TypeFic = 'FORC';
    % Champ de saturation
    Maximum = 1000;
    % Limite du FORC
    ExtremiteFORC = 1000;
    % Incrément de champ de renversement
    DeltaHr = 25;
    % Incrément de champ
    DeltaH = 10;
    % Construction du vecteur champ appliqué
    NbCourbes = 2*ExtremiteFORC/DeltaHr;
    Happ = [];
    for i = 1:NbCourbes+1
        Decalage=(i-1)*DeltaHr;
        Hcourbe=[-ExtremiteFORC+Decalage:DeltaH:ExtremiteFORC Maximum];
        Happ = [Happ Hcourbe];
    end
end
end
Happ = [Happ(1) Happ];

```

```
%%%-----INITIALISATION DE CHAQUE SYSTÈME-----%%%
```

```
for g = 1:size(Para,1)
```

```
    % Acquisition des paramètres
```

```
    k_intra_fac = Para(g,1);
```

```
    sigma_k_intra_fac = Para(g,2);
```

```
    k_intra_diff = Para(g,3);
```

```
    sigma_k_intra_diff = Para(g,4);
```

```
    k_inter = Para(g,5);
```

```
    x_rev = Para(g,6);
```

```
    Seuil = round(N*(1-x_rev));
```

```
    % Initialisation des propriétés de chaque hystéron
```

```
    % Hysteron-1 = Aimantation
```

```
    Hysteron(1,1:N) = 1;
```

```
    % Hysteron-2 = Sens de l'hystéron (1 ou -1)
```

```
    Hysteron(2,:) = 1;
```

```
    % Hysteron-3 = Saturation des hystérons faciles
```

```
    Hysteron(3,1:Seuil) = normrnd(k_intra_fac, sigma_k_intra_fac, 1, Seuil);
```

```
    Hysteron(3,Seuil+1:end) = 1000000;
```

```
    % Enlèvement des saturations négatives
```

```
    HcNeg = find(Hysteron(3,:) < 0);
```

```
    if size(HcNeg,2) > 0
```

```
        Hysteron(3,HcNeg) = abs(Hysteron(3,HcNeg));
```

```
    end
```

```
    % Hysteron-4 = Saturation des hystérons difficiles
```

```
    Hysteron(4,1:Seuil) = Hysteron(3,1:Seuil);
```

```
    Hysteron(4,Seuil+1:end) = normrnd(k_intra_diff, sigma_k_intra_diff, 1, (N-Seuil));
```

```
    % Enlèvement des saturations négatives
```

```
    HsatNeg = find(Hysteron(4,:) < 0);
```

```
    if size(HsatNeg,2) > 0
```

```
        Hysteron(4,HsatNeg) = abs(Hysteron(4,HsatNeg));
```

```
    end
```

```

%%%-----CALCUL DE L'AIMANTATION EN FONCTION DU CHAMP-----%%%

% Initialisation de la barre d'avancement
w=waitbar(0, 'Calcul de l'aimantation en chaque point...');

for i = 2:size(Happ,2);
    % Détermination du sens d'application et découpage en petits
    % incréments de 1
    if Happ(i-1) > Happ(i)
        Hmorceau = Happ(i-1):-1:Happ(i);
    else
        Hmorceau = Happ(i-1):1:Happ(i);
    end

    for n = 1:size(Hmorceau,2)
        Change = [1 1];

        % Calcul de l'aimantation d'équilibre
        while size(Change,2) > 0

            % Calcul du champ total perçu par les hystérons
            Htot = Hmorceau(n)+k_inter*mean(Hysteron(1,:));

            % Identification des hystérons susceptibles de changer
            % d'aimantation
            Change = find((Hysteron(2,:) == 1 & Htot <= -Hysteron(4,:)) |
                (Hysteron(2,:) == -1 & Htot >= Hysteron(4,:)) | (Hysteron(3,:)
                == 1000000 & Htot > -Hysteron(4,:) & Htot < Hysteron(4,:) &
                abs(Hysteron(1:)-Htot./Hysteron(4,:)) > 0.0001));

            if size(Change,2) > 0

                % Choix aléatoire d'un hystéron
                Elu = ceil(size(Change,2)*rand);

                % Changement de son sens, si applicable
                if (Hysteron(2,Change(Elu)) == 1 & Htot <= -
                    Hysteron(4,Change(Elu)))
                    Hysteron(1,Change(Elu)) = -1;
                    Hysteron(2,Change(Elu)) = -1;
                else if (Hysteron(2,Change(Elu)) == -1 & Htot >=
                    Hysteron(4,Change(Elu)))
                    Hysteron(1,Change(Elu)) = 1;
                    Hysteron(2,Change(Elu)) = 1;

                % Correction de l'aimantation de la moitié des
                hystérons selon le champ appliqué
                else
                    ChangeLin = find(Hysteron(3,:) == 1000000 & Htot > -
                        Hysteron(4,:) & Htot < Hysteron(4,:) &
                        abs(Hysteron(1:)-Htot./Hysteron(4,:)) > 0.0001);

```

```

        Elus = ceil(size(ChangeLin,2)*rand(1,
        round(0.5*size(ChangeLin,2))));
        Hysteron(1,ChangeLin(Elus)) =
        Htot./Hysteron(4,ChangeLin(Elus));
    end
end

% Correction numérique
if Hysteron(1,:) >= 0.97 | Hysteron(1,:) <= -0.99
    Hysteron(2,:) = round(Hysteron(1,:));
end
end
end

% Calcul de l'aimantation globale du système
M(i) = mean(Hysteron(1,:));

% Incrémentation de la barre d'avancement
waitbar(i/size(Happ,2), w);
end

%%%-----EXPORTATION DU RÉSULTAT-----%%%

% Fermeture de la barre d'avancement
close(w)

% Affichage du graphique
plot(Happ(2:end),M(2:end),'r')
hold on

% Enregistrement du fichier
vect=[Happ(2:end); M(2:end)];
FileOutName =
strcat('SH_',num2str(k_intra_fac),'_',num2str(sigma_k_intra_fac),'_',nu
m2str(k_intra_diff),'_',num2str(sigma_k_intra_diff),'_',num2str(k_inter
),'_',num2str(x_rev),'_',TypeFic,'.txt');
fout=fopen([FilePath FileOutName], 'w');
fprintf(fout, '%3.6f %3.6f \n', vect);
fclose(fout);

clear Hysteron M Htot
end

```

Annexe C: Distribution de longueur des nanofils non-uniforme

Lors de la fabrication des nanofils par électrodéposition, de légères variations du champ électrique présent à la base de chaque pore vont influencer la quantité de matériau déposée. En conséquence, l'ensemble des nanofils dans un même réseau ne présente pas exactement la même longueur. Une distribution de longueur très non-uniforme peut influencer considérablement le comportement magnétique du réseau. Cette annexe présente des résultats démontrant l'influence de la distribution de longueur sur le comportement du réseau, ainsi que le modèle proposé pour expliquer cette différence de comportement.

C.1 Distribution de longueur des nanofils

L'électrodéposition ne permet pas d'obtenir des nanofils de longueurs identiques dans un réseau. En premier lieu, à cause d'un effet de bord, les nanofils situés près des extrémités de l'échantillon deviennent plus longs que ceux situés dans le centre. En effet, les bords de l'échantillon provoquent une augmentation du champ électrique dans cette région, favorisant ainsi une croissance plus rapide des nanofils.

En second lieu, les nanofils dans une même région présente une différence de longueur aléatoire de l'ordre de 20 % environ (figure C.1). Tous les échantillons utilisés dans cette étude possèdent une telle distribution, puisque aucun traitement visant à éliminer cette distribution, tel un polissage de la face supérieure de l'échantillon, n'a été effectué avant les mesures magnétiques. Il est présumé qu'une telle distribution influence uniquement la distribution de coercivité des nanofils individuels, et ce, de manière faible.

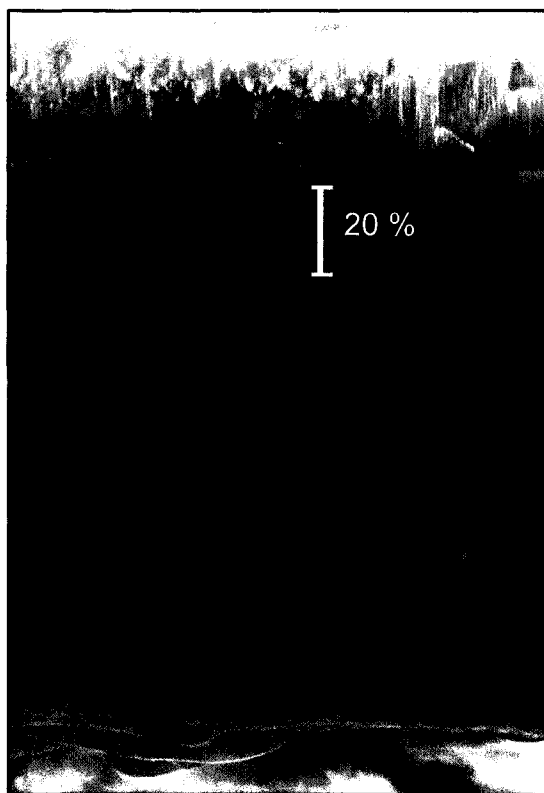


Figure C.1 : Vue en section typique d'un réseau de nanofils.
(Ni, $d = 175$ nm, $D = 300$ nm, $L = 37$ μ m)

Finalement, quelques échantillons se sont avérés présentés une distribution de longueur très non-uniforme. Des nanofils, en faible proportion, étaient beaucoup plus longs (jusqu'à trois fois) que la longueur moyenne des nanofils (figure C.2). Ces réseaux ayant été fabriqués dans les mêmes conditions que les autres, la raison de cette non-uniformité est inconnue et n'a pas été étudiée.

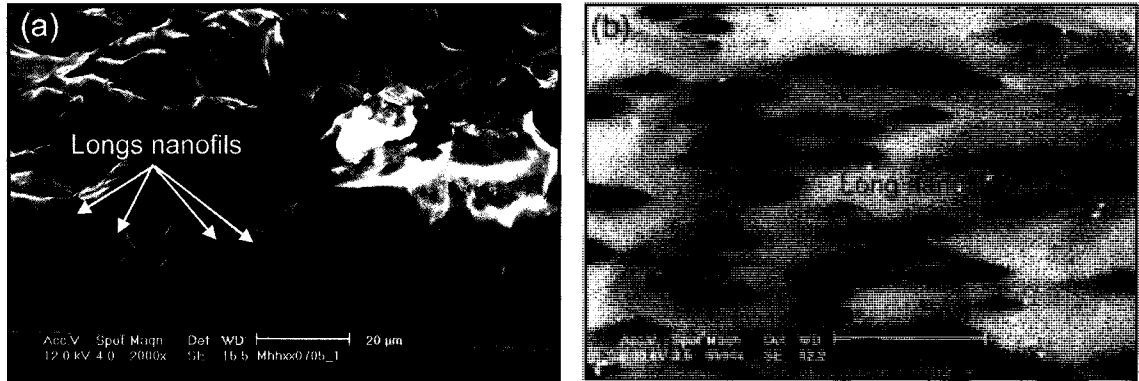


Figure C.2 : Réseau de nanofils de CoFeB présentant une distribution de longueur non-uniforme.

(a) Vue en section après dissolution partielle de la membrane.

(b) Vue du dessus après un polissage partiel de la face supérieure. Seuls les longs nanofils sont apparents. Les résultats subséquents proviennent tous de cet échantillon.

C.2 Effets d'une distribution de longueur non-uniforme

Le comportement magnétique de ces réseaux diffère de celui observé pour les autres réseaux semblables, mais présentant une distribution de longueur uniforme. Un changement de susceptibilité est observable près de l'aimantation nulle sur la courbe d'hystérésis majeure axiale (figure C.3), tandis qu'une partie irréversible additionnelle est présente sur les résultats FORC, autant dans les directions axiale que transverse (figure C.4). Dans les deux cas, elles sont de faible coercivité et sans élongation selon l'axe H_u .

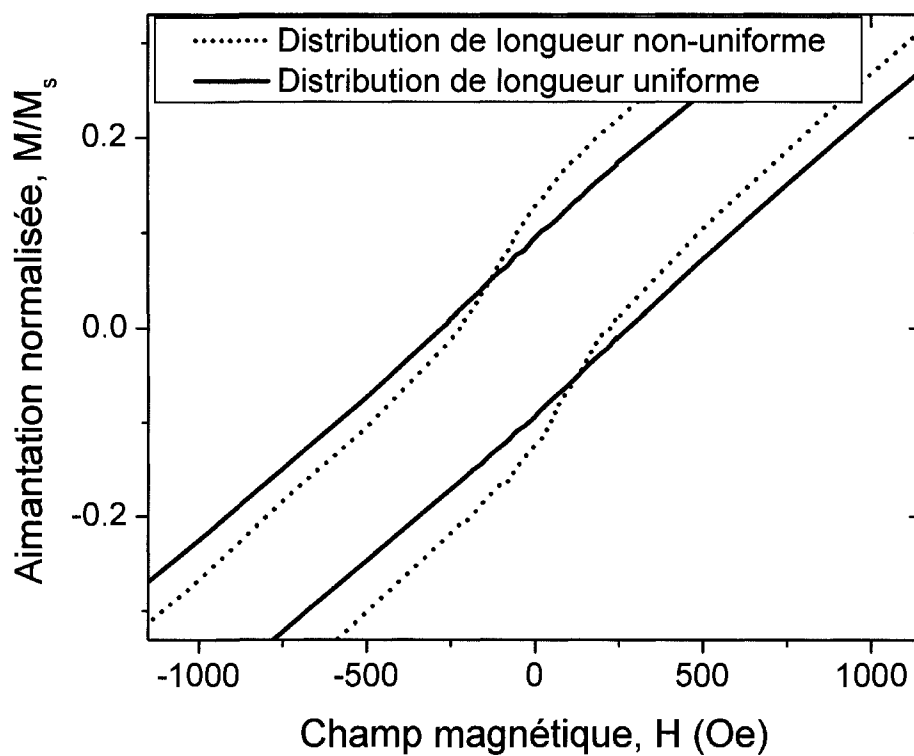


Figure C.3 : Courbes d'hystérésis majeures axiales avec et sans distribution de longueur non-uniforme.

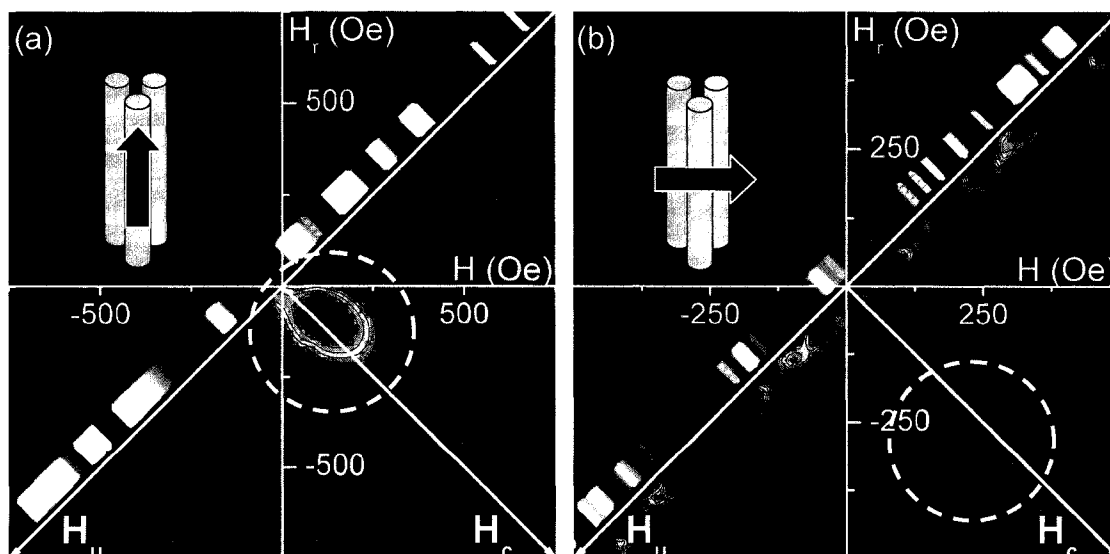


Figure C.4 : Résultat FORC avec une distribution de longueur non-uniforme. (a) Axial (b) Transverse
Les distributions irréversibles additionnelles sont entourées.

Les hachures présentes dans la bande de l'indicateur de réversibilité sont causées par l'absence de temps de stabilisation au début de chaque courbe de renversement du premier ordre.

Afin de vérifier que ces effets proviennent effectivement de la distribution de longueur non-uniforme, la longueur des nanofils a été égalisée en polissant la face supérieure de l'échantillon jusqu'aux nanofils les plus petits (figure C.5).

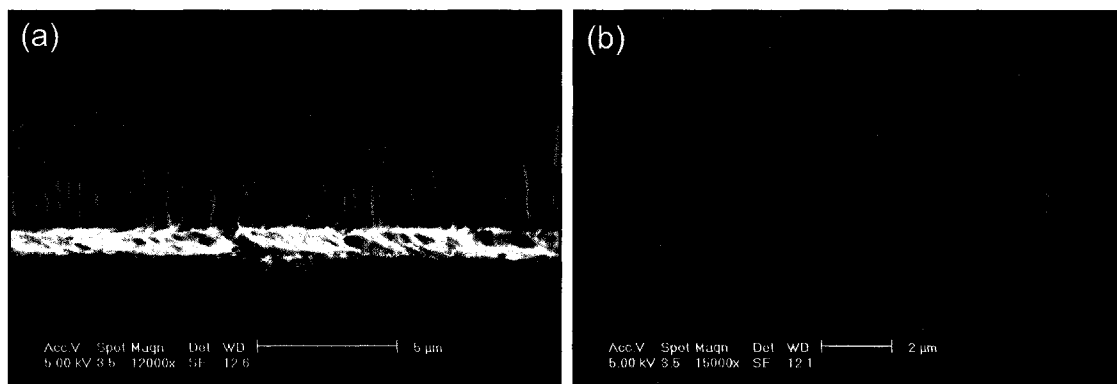


Figure C.5 : Réseau après égalisation de la longueur des nanofils par polissage.
(a) Vue en section (b) Vue de dessus

Les mesures magnétiques effectuées sur l'échantillon ainsi traité montrent la disparition du changement de susceptibilité dans la courbe d'hystérésis majeure axiale (figure C.3), ainsi que de la partie irréversible additionnelle sur les résultats FORC (figure C.6).

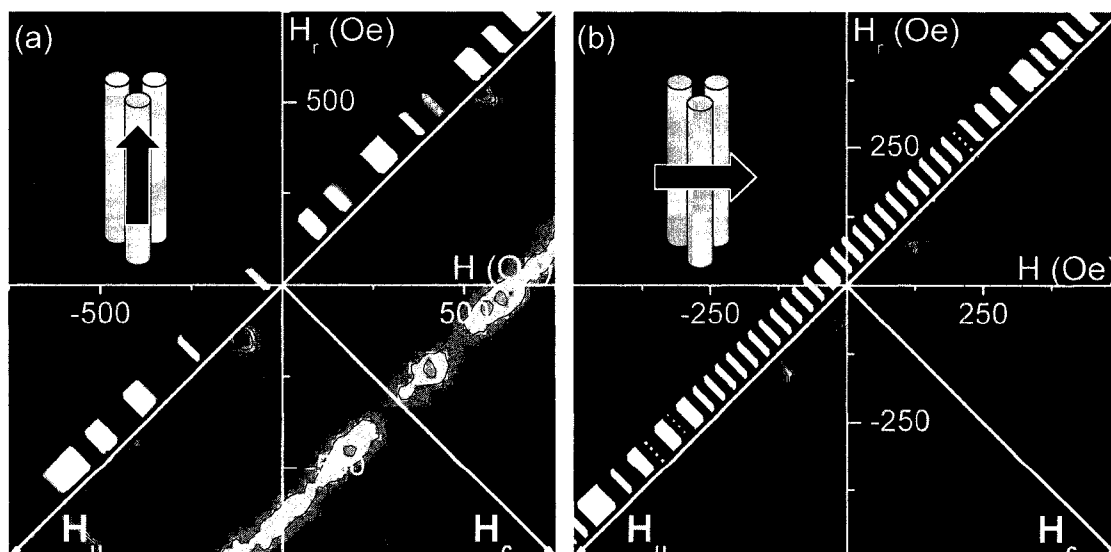


Figure C.6 : Résultat FORC sans distribution de longueur. (a) Axial (b) Transverse

C.3 Modèle proposé

L'hypothèse avancée pour expliquer ces résultats est que l'aimantation de la partie supérieure des longs nanofils se renverse de manière indépendante de leur partie inférieure et du reste des nanofils (figure C.7). Puisque les parties supérieures sont espacées les unes des autres, les interactions dipolaires entre elles sont faibles, ce qui est consistant avec l'absence d'élongation selon l'axe H_u de la partie additionnelle sur les résultats FORC.

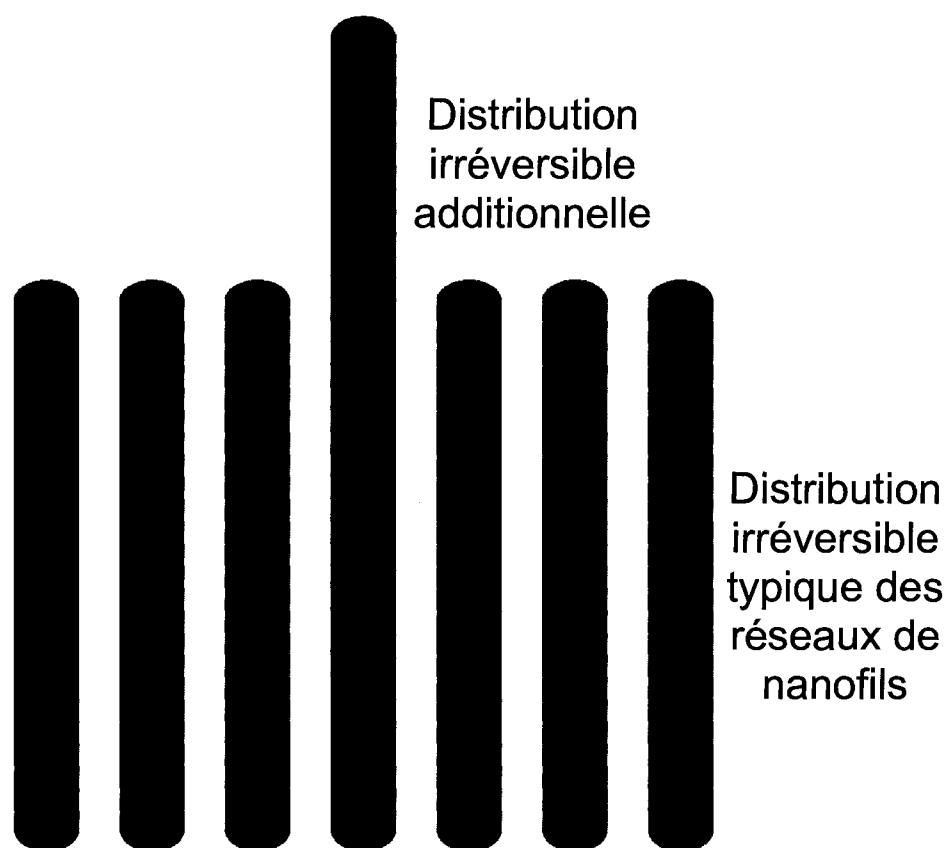


Figure C.7 : Hypothèse de la structure magnétique lors du renversement de l'aimantation axiale.

Afin de pouvoir confirmer ou infirmer l'exactitude de ce modèle, plusieurs mesures effectuées sur des réseaux présentant une distribution de longueur non-uniforme sont nécessaires. Des mesures de résonance ferromagnétique et de microscopie à force magnétique prises à champ nul, ainsi que des simulations micromagnétiques de tels réseaux de nanofils, pourraient permettre d'étudier la question.