



HAL
open science

Propriétés du réseau kagomé artificiel : micromagnétisme, chiralités et cristaux de charges émergents

Hanna Riahi

► To cite this version:

Hanna Riahi. Propriétés du réseau kagomé artificiel : micromagnétisme, chiralités et cristaux de charges émergents. Autre [cond-mat.other]. Université de Lorraine, 2013. Français. NNT : 2013LORR0270 . tel-01750616

HAL Id: tel-01750616

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01750616>

Submitted on 29 Mar 2018

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

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



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

THÈSE

Pour l'obtention du titre de :

DOCTEUR de L'UNIVERSITÉ DE LORRAINE

Spécialité: Physique

Présentée par :

HANNA RIAHI

Propriétés du réseau kagomé artificiel : micromagnétisme, chiralités et cristaux de charges émergents

Thèse soutenue publiquement le 12 décembre 2013 à Nancy devant le jury composé de :

M. Mathias Klaui	Professeur, Université de Mainz, Mainz, Allemagne	Rapporteur
M. Peter Holdsworth	Professeur, Ecole Normale, Lyon	Rapporteur
Mme Laura Heyderman	Professeur, PSI, Villigen, Suisse	Examineur
M. Dragi Karevski	Professeur des universités, Université de Lorraine	Examineur
M. François Montaigne	Professeur des universités, Université de Lorraine	Invité
M. Nicolas Rougemaille	Chargé de recherche, Grenoble	Invité
M. Michel Hehn	Professeur des universités, Université de Lorraine	Directeur de thèse
M. Daniel Lacour	Chargé de recherche, Université de Lorraine	Co-directeur de thèse

*Institut Jean Lamour –UMR 7198- Département P2M – Equipe 101
Bd des Aiguillettes – BP 70239 - 54506 VANDOEUVRE LES NANCY*

Université de Lorraine – Pôle M4 : matière, matériaux, métallurgie, mécanique

Remerciements

Il paraît qu'un travail de thèse s'apparente à un marathon avec une soutenance en guise de sprint final, eh bien... je confirme ! L'aboutissement de ce travail n'aurait jamais été possible sans les différents protagonistes que je tiens à remercier (et ça en fait du monde !)

Je tiens tout d'abord à remercier les membres de mon jury, qui ont réussi à faire le déplacement jusqu'à Nancy malgré les grèves de la SNCF ! Car ça n'était pas gagné...

Merci à **Dragi Karevski** d'avoir accepté de présider le jury. Toujours aussi classe...

Un grand merci à **Peter Holdsworth** ainsi qu'à **Matthias Kläui** de m'avoir fait l'honneur d'accepter d'être mes rapporteurs, travail qui, à mon sens, est le plus ingrat puisqu'il nécessite de lire tout le long manuscrit ci-après ! Peter, bien que théoricien a eu la gentillesse d'avoir accepté de faire partie de mon jury de thèse qui est essentiellement expérimentale. Merci également à **Laura Heyderman** d'avoir bien voulu être examinatrice de mon travail, ça a été un véritable plaisir pour moi.

Mes remerciements s'adressent particulièrement à mon directeur de thèse **Michel Hehn** et à mon co-directeur **Daniel Lacour**. Ils m'ont mis toutes les cartes en mains pour mener à bien ce travail. Grâce à eux j'ai pu aborder différents domaines de la physique avec un sujet se situant au point triple de la physique théorique des glaces de spin, du micromagnétisme ainsi que de la physique expérimentale. Je les remercie également pour leur côté humain et leur bonne humeur. Dan, merci de m'avoir toujours donné confiance en moi, que ce soit pour les conférences ou pour ma soutenance. Je tiens à remercier **François Montaigne**, qui a toujours été présent et a toujours répondu à mes questions en faisant en sorte que les choses soient toujours un peu plus claires à chaque fois. Et j'ai passé des moments vraiment sympas avec toi en particulier à Chicago. En un mot Michel Dan et François : Merci de votre confiance.

Merci à mes collaborateurs **Nicolas Rougemaille**, **Benjamin Canals** ainsi que **Jean-Christophe Toussaint**. Merci à toi Nicolas de m'avoir fait le plaisir de ta présence à ma soutenance.

Merci à **Stéfan Mc Murtry** pour son sourire et la réalisation des échantillons.

Ensuite, je voudrais remercier **Sébastien Petit-Watelot** qui n'a pas de rôle officiel dans l'aboutissement de ce travail mais qui m'a apporté bien plus qu'il ne le pense : sur le plan personnel, il m'a fait beaucoup relativiser dans les moments difficiles et a été une vraie bouffée d'oxygène dans les moments où j'en avais besoin. Seb, j'ai adoré t'entendre chanter des chants de Noël avec un accent créole pendant ma rédaction même si, sur le moment, je t'ai fait ressentir le contraire ! Nos discussions m'ont permis de répondre à certaines questions avec aisance au moment de ma soutenance et je t'en remercie.

Je voudrais remercier des personnes qui sont devenues bien plus que d'autres thésards pour moi et je citerais **Mathias Bersweiller, Amina Neggache, Christel Berthelot et Damien Louis**. Mathias, j'avais dit que pour chaque caprice que je te ferais, j'ajouterais une page de remerciements rien que pour toi... sauf qu'au bout d'un moment j'ai arrêté de compter ! Donc tu vas devoir te contenter de quelques lignes. J'ai vécu de supers moments avec toi notamment aux 13^{ème} JMC, la meilleure conférence du monde ! Amina, juste merci d'avoir été là et d'avoir fait en sorte que tout soit plus agréable par ta gentillesse, ta bonne humeur et ton soutien ; j'espère pouvoir un jour te rendre au moins presque autant que ce que tu m'as apportée. Christel la liste des remerciements serait trop longue pour toi aussi ! Je citerais juste nos moments Claude François lors de ta rédaction ou les «slides raclette » de ma soutenance ! (cette soirée a été très productive avec 10 slides en 1 heure).

Merci à **Sylvie Robert** qui s'est toujours rendue disponible pour moi ! Ça a été un vrai plaisir et même par moment un réconfort de discuter avec toi. Merci à **Christine Bellouard** qui en plus de sa sympathie et sa gentillesse m'a appris à conduire. Merci aux bureaux du 4^{ème} : **Alexandre Bouché, Gwladys Lengaigne et Danièle Pierre** pour leur Sympathie et surtout le bruit et les commentaires d'Alex qui m'auront tant fait rire et qui me manqueront !

De même, j'ai une pensée pour les enseignants et les chercheurs que j'ai rencontré au cours de ma scolarité et qui m'ont donné l'envie d'avancer. Je pense particulièrement à **Pierre Sénéor** (le psy de tous les thésards !), **Madjid Anane** et surtout **Julie Grollier** qui m'a mise en contact avec l'équipe de Nancy. Je voudrais remercier toute l'équipe de l'unité mixte de physique CNRS/Thalès pour leur sympathie et leur accueil.

À **Sylvain Eimer** qui m'a fait le plaisir de venir de Paris jusqu'à Nancy rien que pour ma soutenance. À **Claire et Pierre Kindo**, qui m'ont fait l'amitié de venir après une longue journée de travail, j'ai été heureuse de partager ce moment avec vous.

À ma famille (surtout mes neveux pour leurs petits messages et dessins d'encouragement).

Et à toi Cédric qui a fait de moi la personne la plus heureuse du monde le 27 avril 2013 ; sans ton soutien rien n'aurait été pareil !

Et à tous ceux que j'oublie : Merci ! (et désolée...)

Table des matières

Chapitre I. Généralités	7
I- La frustration géométrique et la règle de la glace	7
II- Les monopoles magnétiques et chaînes de Dirac dans les glaces de spin.....	9
III- Les glaces de spin artificielles.....	11
1. La glace carrée.....	11
2. La glace kagomé artificielle	12
IV- Corrélations.....	15
1. Corrélations Spin-Spin	15
2. Corrélateurs de charges	15
V- Interactions à longue portée.....	16
Chapitre II. Micromagnétisme	21
I- Les contributions à l'énergie libre de Brown	22
1. Energie d'échange	22
2. Energie Zeeman.....	22
3. Energie d'anisotropie magnétocristalline	23
3.1. Anisotropie uniaxiale.....	24
3.2. Anisotropie cubique	24
4. Energie démagnétisante.....	24
II- Renversement de l'aimantation et structure en domaines.....	25
1. Le modèle de Stoner-Wohlfarth.....	25
2. La dynamique d'aimantation et l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert	27
3. Domaines magnétiques.....	28
III- Simulations micromagnétiques à l'aide du code OOMMF	29
IV- Effets de discrétisation et apport du micromagnétisme	31
1. Effets de discrétisation sur les niveaux d'énergie d'un vertex déconnecté.....	31
2. Les niveaux de gris.....	36
3. Degrés de liberté internes.....	38
V- Etude du renversement des aimantations dans un vertex.....	40
1. Astroïde d'un nano-aimant unique	41
1.1. Configuration magnétique des extrémités du brin	42
1.2. Renversement d'aimantation en fonction de la configuration des extrémités du brin....	42

1.3.	Effet de discrétisation sur le renversement	44
2.	Astroïde d'un vertex à partir d'un état permis : configuration de départ saturée λ_{180}	44
2.1.	Renversements d'aimantation pour $-20 < H_x < 20$ mT et $40 < H_y < 80$ mT	46
2.2.	Renversements d'aimantation pour $0 < H_x < 100$ mT et $0 < H_y < 100$ mT	48
2.3.	Mécanique de renversement des configurations permises à partir de l'état saturé λ_{180}	50
3.	Astroïde de l'état interdit	52
3.1.	Annihilation de l'état interdit avec une chiralité CW	53
3.2.	Annihilation de l'état interdit avec une chiralité CCW	54
3.3.	Existence des configurations de bout de brin ?	54
Chapitre III. Techniques et méthodes : élaboration et caractérisation des échantillons		57
I- Méthodes d'élaboration des échantillons		57
1.	Le dépôt de la couche magnétique : la pulvérisation cathodique	58
2.	Les matériaux magnétiques utilisés pour la réalisation des nanostructures	59
3.	La nano-structuration des réseaux	62
3.1.	Marques d'alignement et repérage des réseaux	62
3.2.	Principe de la lithographie électronique	64
3.3.	Masque d'aluminium obtenu par évaporation thermique	65
3.4.	Définition des réseaux : la gravure sèche IBE pour Ion Beam Etching	66
3.5.	Optimisation des doses	66
II- Méthodes de caractérisation topographique et magnétique		69
1.	Caractérisation locale topographique et magnétique : microscopie à force atomique (AFM) et magnétique (MFM)	69
1.1.	Principe de fonctionnement du microscope à force atomique	69
1.2.	Principe de fonctionnement du mode tapping	70
1.3.	Principe de fonctionnement du microscope à force magnétique	71
1.4.	Nécessité du mode 'lift'	72
1.5.	Les contrastes magnétiques issus des réseaux kagomé	75
1.5.1.	Cas des réseaux connectés	77
1.5.2.	Cas des réseaux déconnectés	77
2.	Microscopie de surface XPEEM	77
3.	Traitement des données – numérisations des configurations	79
Chapitre IV. Renversement du réseau kagomé à direction de champ fixe		83
I- Renversement de l'aimantation des réseaux kagomé dans la littérature		83
II- Renversement de l'aimantation dans les réseaux kagomé fabriqués dans le cadre de la thèse		92

1. Retournement des aimantations du réseau.....	92
1.1. Point de vue global	93
1.2. Analyse sous réseau par sous réseau	95
1.3. Analyse en terme de vertex Y et λ	97
1.3.1. Champ appliqué à 0°	97
1.3.2. Champ appliqué à 60°	98
2. Comparaison par rapport à l'état de l'art	100
3. Origine de la brisure de symétrie ternaire	101
3.1. La piste topographique.....	102
3.2. La piste de l'anisotropie de volume	109
3.3. Convergence des deux approches.....	110
III- Etude de la chiralité des états interdits : annihilation en fonction de l'angle d'application du champ magnétique.....	111
1. Etude de la chiralité des états interdits : Protocole expérimental.....	112
2. Résultats	113
3. Discussion	114
Chapitre V. Vers une désaimantation thermique	117
I- La quête de l'état fondamental.....	118
II- Les désaimantations et réalisations expérimentales	120
1. Le réseau et son observation	120
1.1. Réseau et détermination des configurations	120
1.2. Analyse par microscopie de force magnétique	121
1.3. Les protocoles de désaimantation	122
2. Analyses.....	125
2.1. L'analyse du corrélateur de charges.....	125
2.2. L'analyse des domaines et des tailles de domaines.....	127
2.3. L'analyse des coefficients de spin et des chiralités	132
3. Bilan.....	135
Chapitre VI. Conclusion et perspectives.....	139
I- Conclusions	139
II- Perspectives	141
1. Désaimantation thermique	141
2. Aimantation perpendiculaire et universalité	142
3. Structures aperiodiques	143

Introduction

En sciences des matériaux, les techniques de nanofabrication permettent la synthèse de nouveaux matériaux ou nouvelles structures qui n'existent pas dans la nature et qui étendent les limites et les propriétés de certains systèmes, comme les supraconducteurs à haute température critique. Ces systèmes présentent par leur structure des propriétés complètement différentes des matériaux conventionnels. A l'instar des systèmes cités ci-dessus, les techniques de nanofabrication permettent de reproduire des interactions ou des comportements existants déjà dans certains matériaux et nous permettent ainsi de comprendre la physique de ceux-ci.

Ce tapuscrit expose mon travail de thèse réalisé sur les glaces de spins artificielles lesquelles sont fabriquées par lithographie électronique afin de reproduire le comportement des glaces de spins et de la glace d'eau. Cette thèse a été l'occasion d'étudier les propriétés de réseaux magnétiques kagomé dont les éléments constituant ne mesurent que quelques centaines de nanomètres.

J'ai consacré ce premier chapitre à une présentation générale des systèmes géométriquement frustrés. J'y mentionne les différentes contributions de Pauling, Giauque, Castelnovo et Wang sans oublier les raisons qui motivent l'étude de tels systèmes mésoscopiques.

L'étude de ces réseaux ne se faisant qu'à l'échelle mésoscopique, une approche micromagnétique par simulation numérique à l'aide du code OOMMF s'est avérée nécessaire afin d'évaluer les coefficients de couplage entre voisins ainsi que d'étudier le renversement d'aimantation de ces nanostructures. Cette approche fera donc l'objet du deuxième chapitre qui s'intitulera « Micromagnétisme ».

Après avoir détaillé les différentes techniques expérimentales employées au cours de cette thèse dans un troisième chapitre, un quatrième sera dédié à l'étude des mécanismes de renversement d'aimantation au sein du réseau kagomé ainsi qu'au parallèle fait entre simulations et études des configurations magnétiques obtenues.

Le cinquième chapitre sera quant à lui dédié à la caractérisation magnétique des réseaux après désaimantation sous champ alternatif et désaimantation thermique pour un matériau à faible température de Curie. En refroidissant le réseau tout en traversant la température de Curie, nous montrons des spécificités de cette désaimantation qui ne peuvent pas être reproduites à l'équilibre.

Chapitre I. Généralités

I- La frustration géométrique et la règle de la glace

La frustration réside dans l'incapacité d'un système à satisfaire simultanément toutes ses interactions. On constate que sur l'exemple de la figure I.1, si l'on considère des spins classiques en interaction antiferromagnétique disposés aux sommets d'une maille triangulaire, alors deux des trois spins peuvent être en configuration antiparallèle et satisfaire l'interaction (spin en bleu sur le schéma). L'orientation du troisième spin (en rouge sur le schéma) pose alors un problème : Il ne peut être aligné antiparallèlement avec ses deux voisins à la fois. On dit qu'il y a frustration.

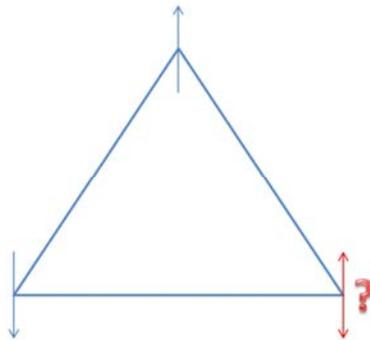


Figure I.1 Exemple de spins classiques en interaction antiferromagnétique

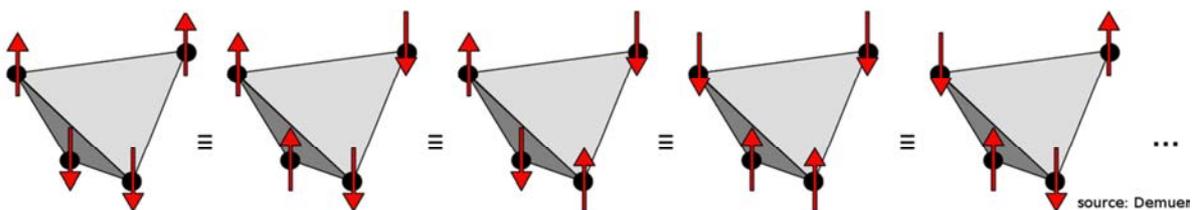


Figure I.2 Exemple du cas à 3 dimensions de spins classiques en interactions, ceux-ci sont disposés aux sommets d'un tétraèdre (figure extraite de la thèse de Y. Chapuis [CHA10])

Pendant longtemps la propriété de frustration était limitée aux systèmes présentant des interactions antiferromagnétiques avec des recherches focalisées sur des systèmes kagomé et pyrochlore antiferromagnétiques (cf. figure I.2). Dans ces systèmes, la dégénérescence importante du niveau fondamental caractérise le magnétisme frustré.

Cette conséquence de la frustration avait été perçue par Wannier en 1950 [WAN50] dans l'étude du modèle d'Ising appliqué au cas de réseaux triangulaires. Historiquement, le premier système identifié comme frustré est la glace d'eau qui, à température nulle, présente une entropie non nulle. Ce phénomène a été expliqué par Pauling en 1934 [PAU35] qui donna une interprétation des travaux de Giauque sur les mesures de l'entropie de la glace d'eau à température nulle en 1933 [GIA33]. La glace d'eau est constituée d'atomes d'oxygène ayant quatre atomes d'hydrogène comme premiers voisins. La structure hexagonale de la glace d'eau conserve la distance oxygène-hydrogène présente dans la molécule d'eau. Cependant, cette distance est inférieure à la moitié de la distance entre deux atomes d'oxygène. Par conséquent, il existe deux sites pour les atomes d'hydrogène dont l'un est proche d'un atome d'oxygène et l'autre est éloigné de celui-ci (voir la partie droite de la figure 1.3). Dans cette situation, toutes les interactions entre atomes d'hydrogène et d'oxygène ne peuvent pas être satisfaites simultanément à température nulle et par conséquent le système est frustré.

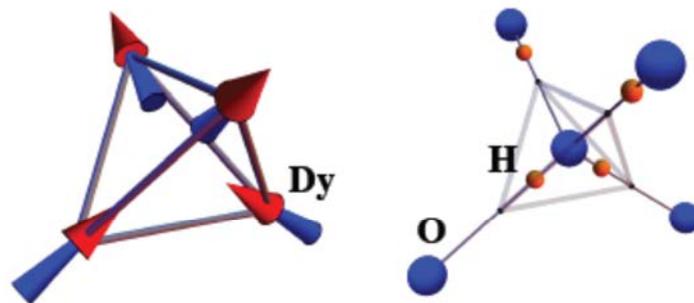


Figure 1.3 Schéma illustrant une configuration magnétique au sein d'un tétraèdre dans lequel les interactions sont ferromagnétiques et analogue à la glace d'eau représentée à droite.

De cette étude, Pauling édicta une règle qui sera appelée la « règle de la glace ». Cette règle est la suivante: parmi les quatre protons situés au voisinage d'un ion oxygène, les configurations spatiales autorisées sont composées deux protons éloignés et deux rapprochés. Dans certaines structures magnétiques, une analogie peut être faite avec la glace d'eau. Si on prend un tétraèdre (comme sur la figure 1.3 à gauche) au sommet duquel on dispose quatre spins en interaction ferromagnétique, alors l'énergie minimum du système est obtenue lorsque deux spins pointent vers l'intérieur et deux spins vers l'extérieur du tétraèdre. Si l'on représente par des vecteurs les déplacements des protons par rapport à la position médiane entre deux atomes d'oxygène dans la glace d'eau alors l'arrangement des protons dans la glace d'eau et le système magnétique tétraédrique coïncident puisque deux des quatre vecteurs vont pointer vers l'extérieur et les deux autres vont pointer vers l'intérieur du tétraèdre (voir figure 1.3). L'analogie ne s'arrête pas à l'arrangement atomique car l'entropie aussi ne tend pas vers 0 quand la température tend vers 0.

Le composé mis en avant par Harris et al. en 1997 [HAR97] montre une interaction ferromagnétique entre premiers voisins. Les moments magnétiques sont disposés aux sommets de tétraèdres et sont contraints de pointer deux à deux vers le centre du tétraèdre et à l'extérieur de celui-ci: une frustration géométrique est présente dans le matériau. Les configurations magnétiques de chaque tétraèdre de ce composé obéissent à une règle similaire à la règle de la glace qui sera dans la suite de ce tapuscrit appelée par extension 'règle de la glace' également. Dans le niveau de plus basse énergie, seules les configurations deux spins pointant vers le centre du tétraèdre et deux vers l'extérieur sont permises (figure I.3 à gauche pour un exemple). Cette particularité a été confirmée par les travaux de Ramirez et al. en 1999 [RAM99].

II- Les monopoles magnétiques et chaînes de Dirac dans les glaces de spin

En 2008, Castelnovo a envisagé une réalisation des monopoles magnétiques comme des particules émergentes à la façon des charges électriques fractionnaires dans l'effet Hall quantique [CAST08]. Ces particules émergentes ont été mises en évidence dans les glaces de spins dont les propriétés viennent de leur état fondamental fortement dégénéré comme nous avons pu le décrire précédemment. Cet état joue un rôle de vide à partir duquel émergent des paires de monopoles de charges topologiques opposées.

L'énergie du système tétraédrique présenté sur la figure I.4 est minimisée lorsque chaque site possède une charge magnétique neutre soit $Q=0$ au centre du tétraèdre. Ce système respecte alors la règle de la glace: deux spins entrants et deux spins sortants à chaque vertex. L'excitation la plus élémentaire du système consiste à renverser un unique dipôle lequel génère un déficit et un excès de charges magnétiques sur deux sites adjacents violant ainsi la neutralité. Cette paire de charges vaut $Q=\pm 1$ et est appelée paire de monopole / anti-monopole. Cette paire peut être séparée dans le réseau en renversant un dipôle adjacent après quoi la neutralité est rétablie sur le site initial en éloignant les monopoles. Les deux monopoles sont donc séparés par une chaîne de dipôles renversés qui s'appelle chaîne de Dirac en référence à Paul Dirac sur ses prédictions sur les monopoles magnétiques.

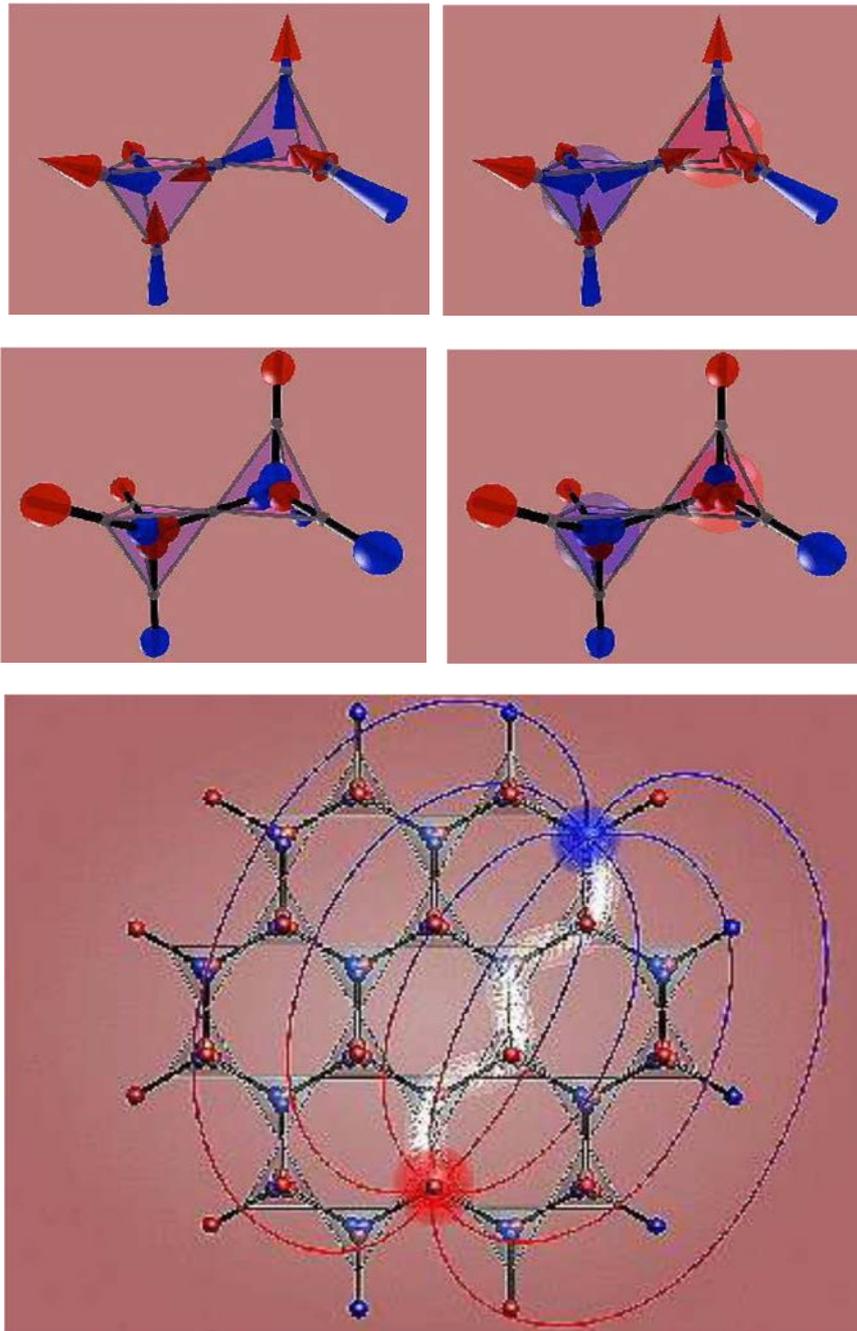


Figure 1.4 Cartographie des dipôles dans le modèle Dumbell. La figure Dumbell est obtenue en remplaçant chaque spin par une paire de charges magnétiques opposées, placée sur chaque site du réseau diamant. A gauche, 2 tétraèdres voisins obéissant à la règle de la glace avec deux spins pointant vers l'intérieur et deux spins pointant vers l'extérieur. A droite le spin partagé par les deux tétraèdres voisins est renversé générant ainsi une paire monopole/anti-monopole. La configuration de plus haute énergie présentant des monopoles est favorisée par l'application d'un champ magnétique. Ici, le champ est appliqué dans le plan [111] (plateau kagomé). Sur la dernière figure sont représentés des monopoles séparés par une chaîne de Dirac avec les lignes de champ magnétique associées [CAST08].

III- Les glaces de spin artificielles

Jusqu'à très récemment, les études sur les glaces de spin non artificielles souffraient d'une limitation expérimentale: l'impossibilité de sonder localement l'état de chaque moment magnétique. Maintenant, grâce aux techniques de nanofabrication, il est possible d'élaborer des structures mésoscopiques à deux dimensions qui imitent les interactions présentes dans les glaces de spin. Lorsque les rapports d'aspect de ces structures mésoscopiques sont suffisamment importants, ils permettent de générer à souhait une anisotropie magnétique de forme. Par exemple, dans le cas d'ilots ellipsoïdaux allongés suffisamment petits, l'énergie magnétostatique est minimisée quand les moments sont alignés le long du grand axe de l'ellipsoïde devenant alors un axe de facile aimantation. De plus, si les dimensions des objets sont suffisamment réduites, ceux-ci ne peuvent plus accommoder de structure en domaines magnétiques. C'est ainsi que les nano-éléments pourront dans un premier temps être considérés comme ayant une aimantation homogène jouant le rôle d'un moment magnétique unique. Dans le cas de nano-aimants suffisamment proches, c'est une interaction magnétostatique qui assure le rôle du couplage magnétique.

Dans cette partie nous discuterons d'une approche qui consiste à former des réseaux de nano-aimants couplés magnétiquement et arrangés dans une géométrie où les règles de la glace dictent la façon dont l'état fondamental est constitué. Ces réseaux qui portent le nom de glace de spin artificielle ont notamment l'avantage de permettre une détermination locale des configurations magnétiques. Il est également possible de faire varier avec une certaine facilité les paramètres du réseau ou le couplage entre éléments.

1. La glace carrée

Si on considère un vertex unique constitué de quatre éléments situés aux sommets d'un carré et dont la direction du grand axe passe par le centre du carré, les états des basses énergies présentent deux moments entrant dans le vertex et deux sortants du vertex. On dit par conséquent que le vertex obéit à la règle de la glace (Figure I.5) et ce système s'appelle alors une glace carrée artificielle. Le modèle de glace carrée présente une caractéristique importante : les éléments perpendiculaires interagissent plus fortement que les éléments parallèles. De ce fait, on assiste à une levée de dégénérescence partielle par rapport à une application stricte de la règle de la glace. De plus, l'état fondamental de ce système est constitué d'un réseau de boucles de flux magnétique et n'est que deux fois dégénéré.

Wang et al. [WAN06] ont réalisé des réseaux de ce type de vertex à partir de films minces de permalloy. Les éléments de permalloy ont une anisotropie de forme suffisamment importante pour que leur aimantation soit alignée le long du grand axe des éléments. De plus, ils sont suffisamment petits pour que l'aimantation soit mono-domaine.

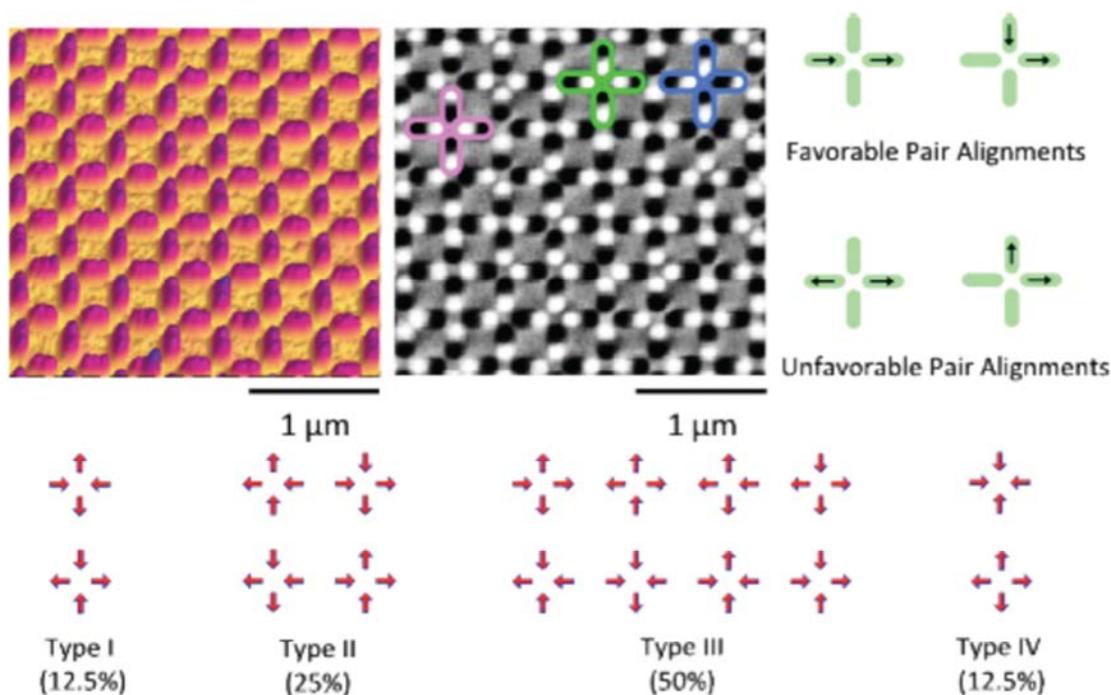


Figure 1.5 *Glace de spin carrée artificielle. En haut à gauche sont présentées les images AFM et MFM. En haut à droite sont représentées les configurations favorables et défavorables énergétiquement. En bas sont représentées les 2^d configurations de moments magnétiques d'un vertex à 4 branches [WAN07].*

Différents réseaux carrés ont été réalisés en variant les paramètres de maille mais avec des tailles d'éléments identiques. Ces réseaux sont ensuite désaimantés sous champ tournant suivant une procédure que l'on décrira dans le chapitre V [WAN07]. Ensuite les réseaux ont été imagés par microscopie à force magnétique. Le comptage des vertex par type montre une diminution du nombre de configurations de vertex ne respectant pas la règle de la glace et une augmentation de ceux respectant la règle de la glace. Dans ces mesures, les analyses des corrélations entre les spins ont montré que les corrélations entre premiers voisins étaient prédominantes et qu'il n'y avait pas de preuves expérimentales d'ordre à longue portée. Ces expériences préliminaires sur les glaces carrées ont montré qu'il était possible de réaliser des réseaux magnétiques à 2 dimensions dans lesquels les éléments interagissent assez fortement pour respecter les règles de la glace.

2. La glace kagomé artificielle

En 2006 Tanaka et al. [TAN06] ont réalisé des réseaux kagomé connectés. Dans cette structure, chaque vertex est constitué de trois éléments ferromagnétiques disposés sur les

bras d'une étoile à trois branches (orientés donc à 120° les uns des autres). La structure du réseau kagomé est représentée par la figure sur I.6-e. Cette fois encore le fort rapport d'aspect des éléments leur confère une anisotropie uniaxe et leur dimension réduite assure une configuration exempte de domaines magnétiques. L'aimantation peut alors être considérée analogue à un spin d'Ising. Dans cette géométrie, la règle de la glace peut s'énoncer de la façon suivante: les états de plus basse énergie d'un vertex sont constitués soit deux moments entrant dans le vertex et d'un sortant, soit deux moments sortant et d'un entrant (configurations souvent appelées *2in/1out* ou *1in/2out* dans la littérature). Ainsi les configurations représentées sur la figure I.6 b et c sont dites autorisées par la règle de la glace alors que les configurations trois moments entrant et trois moments sortant sont dites interdites par la règle de la glace (voir figure I.6 a et d). Parmi les 8 configurations magnétiques possibles au sein d'un vertex, 6 sont énergétiquement équivalentes.

Tanaka et al. ont étudié les configurations de moments magnétiques et ont réalisé des mesures de magnétorésistance sur ces systèmes. Ces mesures ont révélé des sauts correspondant à des renversements de moments magnétiques qui suggèrent le respect de la règle de la glace au niveau des vertex du réseau. Afin de valider cette hypothèse, des analyses MFM ont été réalisées sur des réseaux kagomé dont les éléments sont connectés mais ces expériences n'ont pas permis de déterminer de façon non ambiguë la configuration magnétique au sein d'un vertex. En fait, les contrastes observés en MFM dans cette étude résultent de la moyenne des contrastes attendus au sein d'un vertex et ont donc seulement permis de déterminer si l'état du vertex était *3in* ou *3out*. Qi et al. ont observé des réseaux similaires par microscopie Lorentz [QI08]. L'utilisation de cette technique a permis de lever l'ambiguïté présente dans les expériences de Tanaka et al. et a montré une adhérence de la règle de la glace du réseaux kagomé connecté après désaimantation des réseaux. Au-delà du respect des règles de la glace, un ordre à plus grande distance peut prendre place dans les systèmes frustrés magnétiquement. Une façon de caractériser un ordre à plus grande distance (au-delà des premiers voisins) consiste à étudier les corrélations spin-spin.

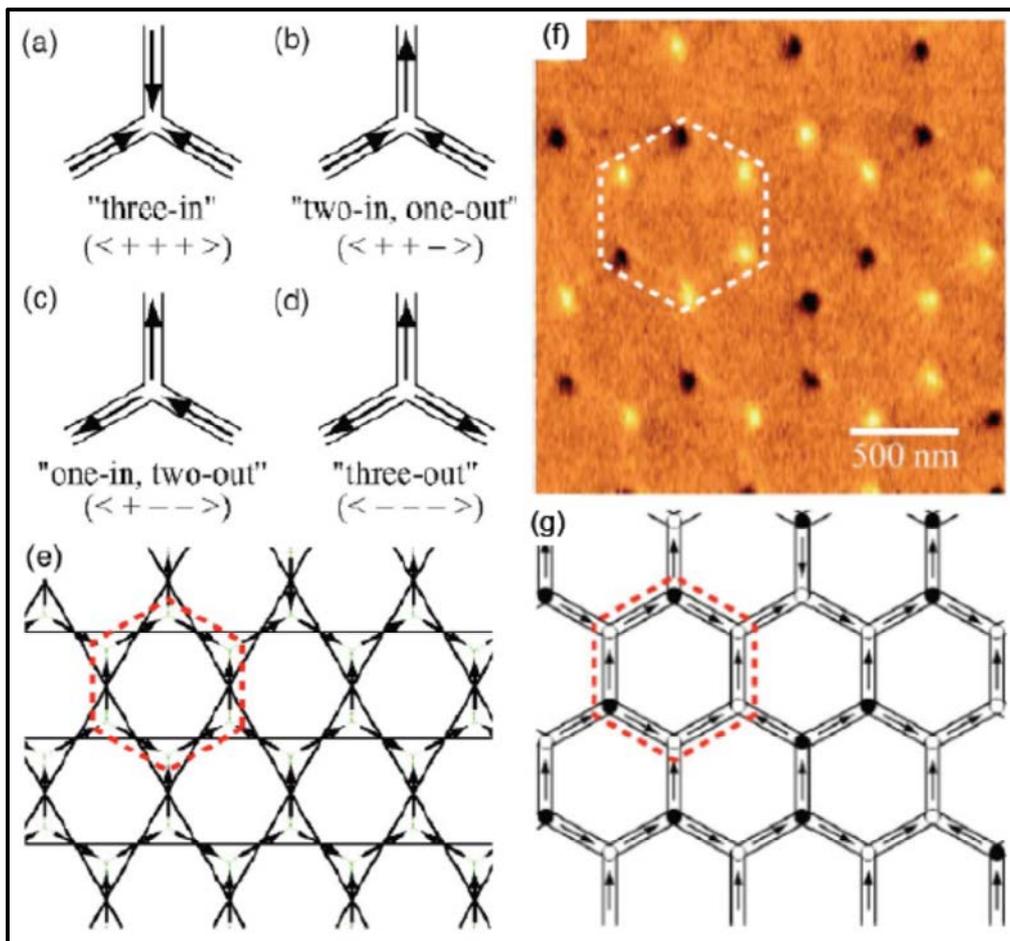


Figure 1.6 : Réseau de glace kagomé. (a)-(e) configurations des moments possibles à un vertex

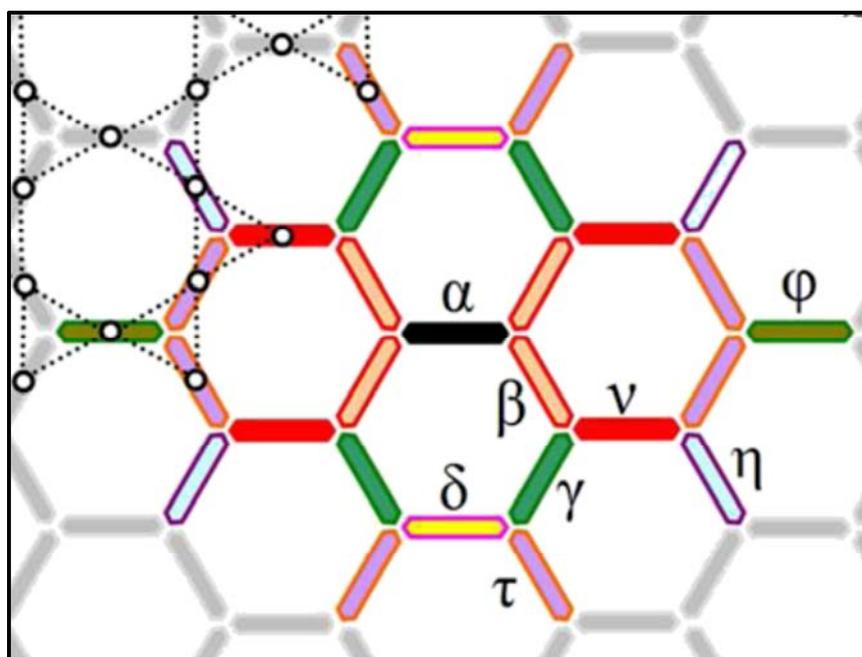


Figure 1.7 Notations utilisées pour identifier quelques unes des différentes paires.

IV- Corrélations

1. Corrélations Spin-Spin

Le corrélateur entre une paire de spin (S_i, S_j) est définie comme $C_{ij} = \text{sign}(\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j)$. La figure I.7 [ROU11] explicite les notations utilisées pour identifier quelques-unes des différentes paires. Le coefficient de corrélation est alors calculé comme étant une moyenne sur chaque type de paire, c'est-à-dire $C_{\alpha\beta} = \langle C_{ij} \rangle | (ij \in \alpha\beta)$. Si $C_{\alpha\beta}$ est de signe positif alors la corrélation est de type ferromagnétique et de type antiferromagnétique dans le cas contraire. De plus, on notera par exemple que lorsque le coefficient de corrélation $C_{\alpha\beta}$ vaut 1/3 cela signifie que tout le système obéit à la règle de la glace.

2. Corrélateurs de charges

Dans le pyrochlore, lorsque l'on applique un champ magnétique sur l'échantillon, la dégénérescence de l'état fondamental peut être levée. La nature de cette levée de dégénérescence dépend de la direction du champ ainsi que son amplitude [HAR98, RAM99]. Une direction particulièrement intéressante est la direction [111]. Dans cette direction, le pyrochlore peut être vu comme une alternance de feuillets à maille kagomé et à maille triangulaire (Figure I.8 gauche). Dans une gamme de champ magnétique appliqué dans la direction [111], les spins situés sur la maille triangulaire peuvent être parallèles au champ alors que les spins situés sur la maille kagomé présentent une dégénérescence macroscopique préservant l'ordre 2in/2out sur chaque tétraèdre (figure I.8, gauche). Chaque vertex du feuillet kagomé (2D) présente alors un état soit 2in/1out, soit 1in/2out, ce qui signifie qu'ils obéissent à la règle de la glace (défini dans le cas du réseau kagomé 2D). De plus, il est remarquable que, lorsque que l'on considère un feuillet kagomé, ces vertex voient le spin complétant le tétraèdre (appartenant au feuillet triangulaire) alternativement entrant ou sortant. Cette remarque, combinée au respect de la règle de la glace, mène à la constatation suivante : le feuillet kagomé du pyrochlore est constitué d'une alternance de vertex 2in/1out et 1in/2out (Figure I.8 à droite). Cette alternance peut être regardée comme un cristal de charges émergentes. Les charges émergentes étant constituées de la somme au sein d'un vertex des charges magnétiques fictives associées par paire à chaque aimantation du réseau (Figure I.9).

Cet ordre de charge peut être caractérisé par un corrélateur de charges, défini de la façon suivante : $\langle Q_i Q_{i+1} \rangle = \sum_i \frac{Q_i \cdot Q_{i+1}}{n}$. Q_i étant la charge émergente totale au sein du vertex i et Q_{i+1} étant la charge émergente totale au sein d'un vertex premier voisin de i . Si le cristal de charges émergentes décrit précédemment est réalisé, la valeur du corrélateur est égale à -1 (les premiers voisins des vertex ayant toujours une charge de signe opposé).

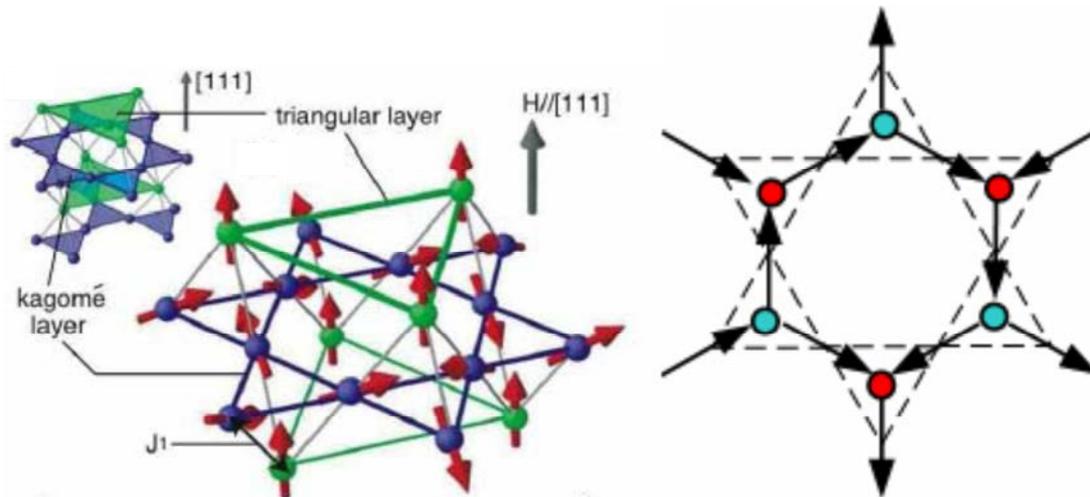


Figure 1.8 Plateau kagomé dans la glace de spin pyrochlore et les charges magnétiques associées. A gauche, la maille pyrochlore est représentée comme une alternance de feuillets triangulaires et kagomé empilés le long de la direction $[111]$. A droite, représentation des charges magnétiques émergentes des configurations de spins dans le feuillet kagomé (Q_i).

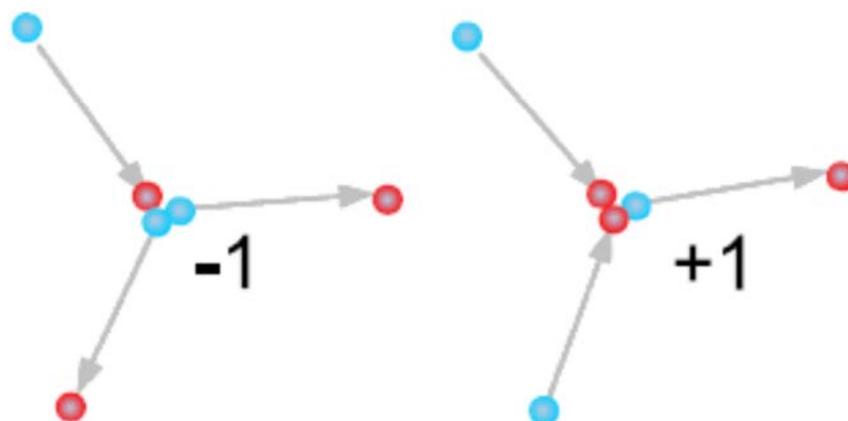


Figure 1.9 Cartographie des dipôles en « Dumbells ». La figure Dumbell est obtenue en remplaçant chaque spin par une paire de charges magnétiques opposées (boules rouge et bleue). Images issues de la thèse de Y. Qi.

V- Interactions à longue portée

Les glaces de spin artificielles permettent également de tester expérimentalement certaines prédictions théoriques de la physique de la matière condensée. Dans certains de ces modèles théoriques, des spins sont placés dans des réseaux infinis [GIN09] de géométries données et interagissent par couplage de nature ferromagnétique ou antiferromagnétique à

courte ou longue distance. Sous certaines conditions (de géométrie et de couplage), des effets de frustrations apparaissent et provoquent une forte dégénérescence de l'état fondamental. Plusieurs études expérimentales ont été réalisées réunissant les communautés de la frustration magnétique, de la physique théorique et du nanomagnétisme.

Une étude fine a montré que la physique du réseau kagomé expérimental est capturée par un modèle prenant en compte des interactions dipolaires à longue portée. En effet, Rougemaille et al. [ROU11] ont montré que les valeurs des corrélateurs de charges $\langle Q_i Q_{i+1} \rangle$ de leurs réseaux (présentant par ailleurs un désordre de spin respectant les règles de la glace) étaient inférieures aux valeurs attendues dans le modèle Short Range Spin Ice (interaction premier voisin seulement). La figure I.10a montre les évolutions théoriques du corrélateur calculé soit à partir d'un modèle prenant en compte seulement les interactions entre premiers voisins (SI pour *Spin Ice*), soit des interactions dipolaires agissant à longue distance (DSI pour *Dipolar Spin Ice*) en fonction de la température effective normalisée à l'interaction premiers voisins. La tendance observée expérimentalement (figure I.10 b et c) tranche en faveur du modèle incluant les interactions dipolaires à longue portée où un ordre partielle de charges apparait progressivement lorsque la température effective décroît.

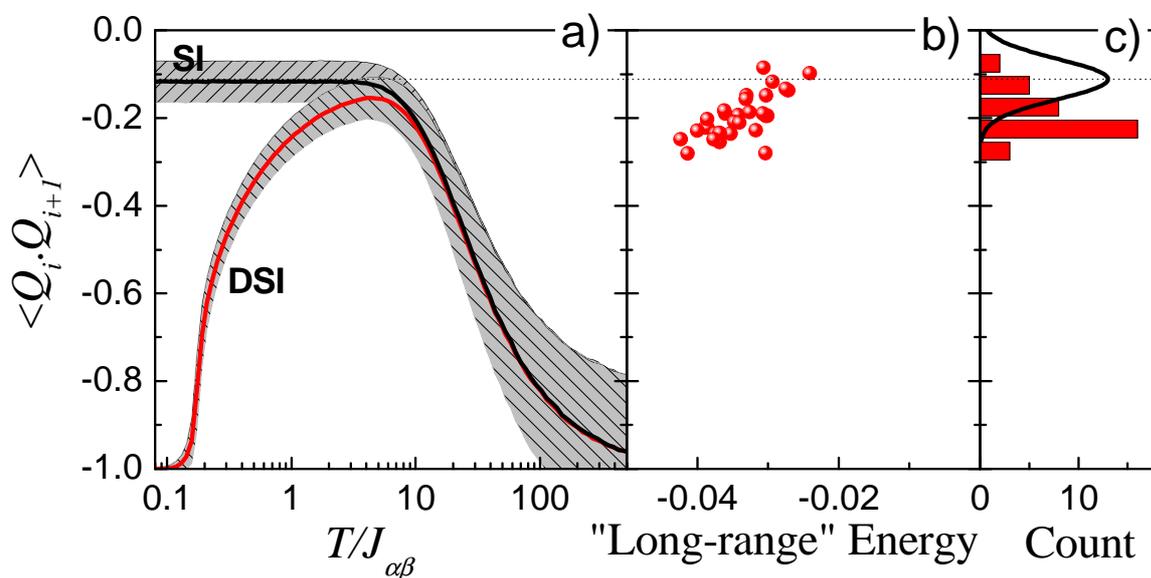


Figure I.10 a) corrélateurs de charges en fonction de la température effective normalisée par rapport au couplage premier voisin, calculés dans le cadre des modèles SI et DSI. (b) valeurs expérimentales en fonction de l'énergie longue portée des réseaux. (c) histogramme expérimental des corrélateurs de charges comparé à une distribution gaussienne calculée avec le modèle SI [ROU 2011].

Bibliographie du chapitre : Généralités

- [BRAM01] S. T. Bramwell, and M. J. P. Gingras, Spin Ice State in Frustrated Magnetic Pyrochlore Materials, *Science* **294**, 1495 (2001).
- [CAST08] Castelnovo, R. Moessner, and S. L. Sondhi, Magnetic monopoles in spin ice, *Nature* **451**, 42 (2008).
- [CAST12] Castelnovo, C., Moessner, R., Sondhi, S. L., *Annual Review of Condensed Matter Physics* **3**, 35, 2012.
- [CHA10] Thèse de Yann Chapuis soutenue le 25 septembre 2009 de l'université Joseph Fourier de Grenoble 1 sur la frustration géométrique, transitions de phase et ordre dynamique (2010)
- [CHE09] G.-W. Chern, P. Mellado, and O. Tchernyshyov, Two-stage ordering of spins in a dipolar spin ice on the kagome lattice [arXiv:abs/0906.4781v1](https://arxiv.org/abs/0906.4781v1).(2009)
- [GIA33] W. F. Giauque, and M. F. Ashley, Molecular Rotation in Ice at 10°K. Free Energy of Formation and Entropy of Water, *Phys. Rev.* **43**, 81 (1933).
- [GIN09] M. J. P. Gingras, in *Highly Frustrated Magnetism*, edited by C. Lacroix, P. Mendels, and F. Mila (Springer, New York, 2009)
- [HAR97] M. J. Harris, S. T. Bramwell, D. F. McMorrow, T. Zeiske, and K. W. Godfrey, Geometrical Frustration in the Ferromagnetic Pyrochlore Ho₂Ti₂O₇, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2554 (1997).
- [MEL08] P. Mellado, O. Tchernyshyov, Y. Qi, T. Brintlinger, and J. Cumings, in *APS March Meeting New Orleans*, 2008)
- [MOL09] G. Moller and R. Moessner, *Phys. Rev. B* **80**, 140409(2009).
- [PAU35] L. Pauling, The Structure and Entropy of Ice and of Other Crystals with Some Randomness of Atomic Arrangement, *J. Am. Chem. Soc.* **57**, 2680 (1935).
- [QI08] Qi, Y., Brintlinger, T. E. & Cumings, J. Direct observation of the ice rule in an artificial kagomé spin ice. *Phys. Rev. B* **77**, 094418 (2008).
- [RAM99] A. P. Ramirez, A. Hayashi, R. J. Cava, R. Siddharthan, and B. S. Shastry, Zero point Entropy in 'Spin Ice', *Nature* **399**, 333 (1999)
- [ROU11] N. Rougemaille, F. Montaigne, B. Canals, A. Duluard, D. Lacour, M. Hehn, R. Belkhou, O. Fruchart, S. El Moussaoui, A. Bendounan, and F. Maccherozzi, Artificial Kagome Arrays of Nanomagnets: A Frozen Dipolar Spin Ice, *Phys Rev. Lett.* **106**, 057209 (2011)
- [TAN06] M. Tanaka, E. Saitoh, H. Miyajima, T. Yamaoka, and Y. Iye, Magnetic Interactions in a Ferromagnetic Honeycomb Nanoscale Network, *Phys. Rev. B* **73**,052411 (2006).

[SID99] R. Siddharthan, B. S. Shastry, A. P. Ramirez, A. Hayashi, R. J. Cava, and S. Rosenkranz, Ising Pyrochlore Magnets: Low-Temperature Properties, "Ice Rules," and Beyond, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1854 (1999).

[WAN06] R. F. Wang, C. Nisoli, R. S. Freitas, J. Li, W. McConville, B. J. Cooley, M. S. Lund, N. Samarth, C. Leighton, V. H. Crespi, and P. Schiffer, Artificial 'Spin Ice' in a Geometrically Frustrated Lattice of Nanoscale Ferromagnetic Islands, *Nature* **439**, 303 (2006).

[WAN50] G.H. Wannier, Antiferromagnetism. The triangular Ising Net. *Phys. Rev.* **79**, 2 1950 (1950)

[WAN07] R. F. Wang, J. Li, W. McConville, C. Nisoli, and X. Ke, Demagnetization protocols for frustrated interacting nanomagnet arrays, *Journal of Applied Physics* 101,09J104 (2007)

[WIL02] A. S. Wills, R. Ballou, and C. Lacroix, Model of Localized Highly Frustrated Ferromagnetism: The kagome Spin Ice, *Phys. Rev. B* **66**, 144407 (2002).

Chapitre II. Micromagnétisme

Dans les années 40, W. F. Brown formula une théorie conçue pour décrire les propriétés magnétiques de milieux ferromagnétiques et ferrimagnétiques : le micromagnétisme [BRO67]. Dans ce formalisme, l'aimantation, les champs internes ou l'énergie sont vus comme des variables thermodynamiques continues, même si leur source se trouve bien évidemment au niveau atomique. L'application de la théorie du micromagnétisme est donc limitée à des systèmes pour lesquels les grandeurs thermodynamiques varient doucement avec la position. L'existence de l'aimantation spontanée (égale au moment magnétique par l'unité de volume) constitue une des hypothèses fondamentales du micromagnétisme: le vecteur de l'aimantation $\vec{M}(\vec{r})$ est un vecteur à *module constant* $|\vec{M}(\vec{r})| = M_S$ (où M_S est l'aimantation à saturation). On écrit alors que $\vec{M}(\vec{r}) = M_S \vec{m}(\vec{r})$ où $\vec{m}(\vec{r})$ est un vecteur unitaire. Pour un temps donné, l'orientation de l'aimantation, et donc de $\vec{m}(\vec{r})$, peut varier dans l'espace tandis que son amplitude reste constante.

Les prédictions de cette théorie devaient être compatibles avec les calculs du champ magnétique créé par un barreau aimanté par les équations de Maxwell mais également avec la théorie proposée par P. Weiss en 1907 [WEI07] sur l'existence d'un ensemble de domaines uniformément aimantés dont la forme, la distribution et le nombre sont déterminés par la minimisation de l'énergie totale du système. Elle devait également expliquer le processus de renversement de l'aimantation et les effets d'hystérésis.

Les configurations stables ou métastables sont déterminées par minimisation de l'énergie libre de Brown E_{TOT} contenant diverses contributions

$$E_{TOT} = E_{ECH} + E_{ZEE} + E_{MC} + E_{DEMAG}$$

Dans ce chapitre nous allons rappeler les différentes énergies mises en jeu ainsi que les mécanismes de retournement de l'aimantation des matériaux magnétiques. Un intérêt plus particulier sera porté aux couches minces micro ou nanostructurées telles que les réseaux kagomé qui font l'objet des travaux présentés dans ce tapuscrit.

I- Les contributions à l'énergie libre de Brown

Cette partie a été très fortement inspirée des ouvrages [KIT 69, ASH76, TRE00]

1. Energie d'échange

L'interaction d'échange est par essence de nature quantique, à courte portée entre des moments magnétiques individuels. Elle est le résultat du recouvrement des fonctions d'onde électroniques des atomes du réseau et de l'application du principe d'exclusion de Pauli. Ce type d'interaction est de plusieurs ordres de grandeur plus intense que les autres énergies mises en jeu.

Selon la théorie développée par Heisenberg [Kit 49], l'énergie d'échange d'un système de N spins \vec{s}_i s'exprime de la façon suivante:

$$E_{ECH} = -1/2 \sum_i^N \sum_{j, i \neq j}^N J_{ij} \vec{s}_i \cdot \vec{s}_j$$

Où J_{ij} est l'intégrale d'échange et peut prendre soit une valeur positive dans le cas d'un matériau ferromagnétique, soit une valeur négative dans le cas d'un matériau ferrimagnétique ou antiferromagnétique.

La minimisation de l'énergie d'échange passera par la stabilisation de configurations colinéaires de l'aimantation et favorisera l'apparition de domaines magnétiques, zone géographique où tous les spins sont parallèles (pour un matériau ferromagnétique).

L'ordre magnétique résultant de cette interaction est directement en compétition avec l'agitation thermique. Il existe alors une température dite température de Curie (T_c) au-delà de laquelle l'agitation thermique l'emporte sur l'ordre imposé par l'interaction d'échange. Au-delà de cette température, le matériau perd son aimantation et devient paramagnétique.

2. Energie Zeeman

L'énergie Zeeman résulte de l'interaction de l'aimantation \vec{M} du matériau magnétique avec un champ magnétique appliqué \vec{H}_{app} . Cette composante d'énergie est minimale lorsque l'aimantation est alignée et dans le même sens que le champ appliqué. L'expression de l'énergie Zeeman est donnée par :

$$E_{ZEE} = -\mu_0 \iiint \vec{M}(\vec{r}) \cdot \vec{H}_{app} dV = -\mu_0 M_S \iiint \vec{m}(\vec{r}) \cdot \vec{H}_{app} dV$$

Où l'intégration se fait sur le volume V de l'échantillon.

3. Energie d'anisotropie magnétocristalline

L'une des contributions à l'anisotropie magnétique d'une nanostructure est l'anisotropie magnétocristalline. Elle est causée par l'interaction spin orbite des électrons. Les orbitales électroniques sont liées à la structure cristallographique. De part l'interaction entre ces orbitales, et le moment orbital, et le spin, ce dernier préfère s'aligner selon des directions cristallographiques bien définies. Par conséquent, il y a des directions de l'espace selon lesquelles il est plus facile d'aimanter un matériau magnétique. On parle alors d'un axe de facile aimantation. Le cycle d'aimantation est alors différent selon que le champ est appliqué le long d'une direction cristallographique ou d'une autre, comme le montre la figure ci-dessous dans le cas du fer, du nickel et du cobalt.

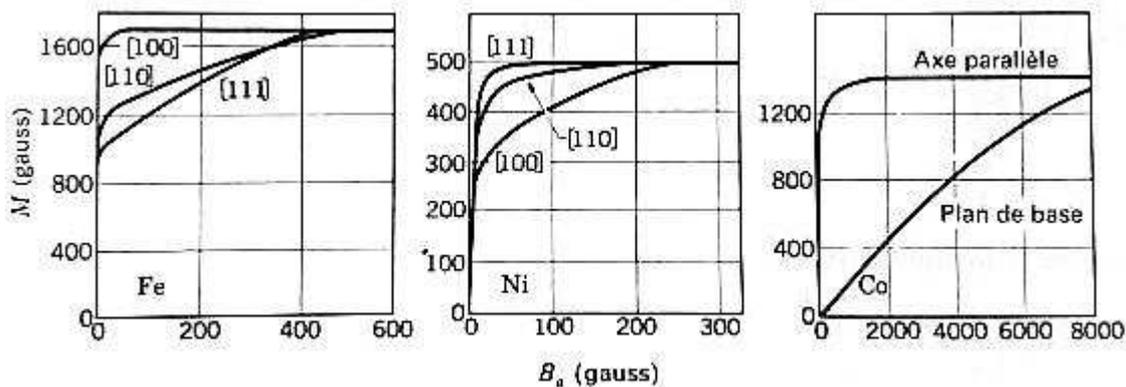


Figure II.1 Courbes d'aimantation extraites de [Kit 89] pour des monocristaux de fer, de nickel et de cobalt. Pour le fer, les courbes montrent que les directions [100] sont des directions d'aimantation faciles et les directions [111] sont des directions difficiles.

L'énergie magnétocristalline est généralement faible par rapport à l'énergie d'échange. Mais elle est déterminante pour la direction de l'aimantation. Alors que l'interaction d'échange assure la configuration parallèle monodomaine des moments magnétiques, c'est la compétition entre l'énergie magnétocristalline et l'énergie Zeeman qui donne la position d'équilibre de l'aimantation.

Des expressions phénoménologiques, issues du calcul en perturbation de l'équation de Dirac, peuvent être obtenues et tiennent compte de la symétrie cristalline [BRU93]. Ces expressions permettent la détermination des coefficients d'anisotropie à partir de l'expérience.

3.1. Anisotropie uniaxiale

Cette symétrie d'anisotropie se trouve dans les cristaux hexagonaux de type cobalt, avec un axe d'anisotropie le long de l'axe c. Pour cette symétrie, l'énergie s'écrit au second ordre sous la forme:

$$E_{MC} = \iiint (K_1 \sin^2 \theta(\vec{r}) + K_2 \sin^4 \theta(\vec{r})) dV = \iiint (K_1 m_z^2(\vec{r}) + K_2 m_z^4(\vec{r})) dV$$

Où $\theta(\vec{r})$ est l'angle que fait l'aimantation à la position \vec{r} avec l'axe c, K_1 et K_2 sont les coefficients d'anisotropie qui dépendent en général de la température, m_z est la composante z du vecteur unitaire \vec{m} portant l'aimantation, z orienté le long de l'axe c.

3.2. Anisotropie cubique

Le fer ainsi que le nickel sont des cristaux cubiques. Les directions de facile aimantation sont soit les arêtes du cube, soit la diagonale du cube. L'énergie est alors décomposée en une série de puissance des composantes de $\vec{m}(\vec{r})$ dans les directions x, y et z le long des axes du cube. Dans ce cas, l'énergie d'anisotropie magnétocristalline s'écrit:

$$E_{MC} = \iiint \left\{ K_1 \left(m_x^2(\vec{r}) m_y^2(\vec{r}) + m_y^2(\vec{r}) m_z^2(\vec{r}) + m_z^2(\vec{r}) m_x^2(\vec{r}) \right) + K_2 m_x^2(\vec{r}) m_y^2(\vec{r}) m_z^2(\vec{r}) \right\} dV$$

4. Energie démagnétisante

Les phénomènes liés à la magnéto-statique dans la matière sont complètement et exactement décrits par les équations de Maxwell. Les inhomogénéités de l'aimantation ainsi que l'interception de l'aimantation avec les surfaces du volume considéré donnent naissance à des densités de courant d'aimantation qui à leur tour génèrent un champ local orienté dans la direction opposée à celle de l'aimantation. C'est le champ démagnétisant ou désaimantant $\vec{H}_d(\vec{r})$.

L'énergie liée à la présence de ce champ est donnée par la même équation que celle de l'énergie Zeeman. Un facteur 1/2 apparaît car c'est une énergie propre :

$$E_{DEMAG} = -\frac{\mu_0}{2} \iiint \vec{M}(\vec{r}) \cdot \vec{H}_d(\vec{r}) dV = -\frac{\mu_0 M_S}{2} \iiint \vec{m}(\vec{r}) \cdot \vec{H}_d(\vec{r}) dV$$

En général, \vec{H}_d ne peut se calculer de manière exacte que pour des géométries du second ordre (sphères, ellipsoïdes). Cependant, si l'on suppose que l'aimantation est uniforme dans tout le volume considéré (c'est le cas des géométries du second ordre), un tenseur de champ démagnétisant \vec{N} peut être calculé, dépendant uniquement de la géométrie du système considéré, et le champ démagnétisant prend la forme :

$$\vec{H}_d = -\vec{N} \cdot \vec{M}$$

L'énergie démagnétisante prend alors la forme:

$$E_{DEMAG} = \frac{\mu_0}{2} M_S^2 (N_{xx} m_x^2 + N_{yy} m_y^2 + N_{zz} m_z^2) V$$

Où N_{xx} , N_{yy} , N_{zz} sont les composantes diagonales du tenseur de champ démagnétisant. Enfin, dans le cas des films minces, le calcul montre que $N_{xx} = 0$, $N_{yy} = 0$, $N_{zz} = 1$ (la direction z est prise normale à la surface). Il vient alors que:

$$E_{DEMAG} = -\frac{\mu_0}{2} V M_S^2 \sin^2 \theta$$

Où θ est l'angle entre la direction z et \vec{m} . L'anisotropie associée à cette énergie est aussi appelée anisotropie de forme et favorise l'alignement de l'aimantation selon l'axe le plus long de la nanostructure puisque dans cette direction le champ démagnétisant est minimum. On constate également que l'énergie de champ démagnétisant peut prendre la forme d'un axe d'ordre 2, comme celui évoqué dans le cas de l'anisotropie magnétocristalline du cobalt.

II- Renversement de l'aimantation et structure en domaines

1. Le modèle de Stoner-Wohlfarth

Le modèle de Stoner-Wohlfarth est de loin le plus utilisé lorsqu'il s'agit de prévoir et d'expliquer le comportement magnétique d'un système en fonction du champ magnétique qui lui est appliqué. Cette théorie, développée dans les années 50 [Sto 48], s'applique à l'étude d'un système magnétique monodomaine c'est à dire que tous les moments magnétiques sont colinéaires les uns aux autres. L'aimantation du matériau est alors décrite par un macrospin et le renversement de l'aimantation s'effectue par une rotation cohérente de l'aimantation. Nous choisissons un matériau qui possède un axe d'anisotropie d'ordre 2, l'axe de facile aimantation est placé selon x. Soit θ l'angle entre l'axe de facile aimantation et l'aimantation, φ l'angle entre l'axe d'anisotropie et le champ appliqué. L'énergie totale par unité de volume du paragraphe I.1 devient:

$$e_{TOT} = \frac{E_{TOT}}{V} = K_{eff} \sin^2 \theta - \mu_0 M_S H_{app} \cos(\varphi - \theta)$$

Où H_{app} est le champ extérieur appliqué et K_{eff} est une constante d'anisotropie « effective » qui tient compte de tous les axes d'ordre 2 comme l'anisotropie magnétocristalline, l'anisotropie de forme et d'autres sources d'anisotropie comme les surfaces, les contributions magnétoélastiques, etc.....

Pour un couple $[H_{app}, \varphi]$ donné, la configuration de l'aimantation, c'est-à-dire l'angle θ , est déterminée en minimisant e_{TOT} tout en cherchant les solutions d'équilibre stable. De manière analytique, il est possible de trouver ces positions d'équilibre pour $\varphi=0$ $[\pi]$ et $\varphi=\frac{\pi}{2}$ $[\pi]$ ainsi que le champ pour lequel l'aimantation possède un renversement irréversible, H_c . On montre que [WER06]

$$H_c = \frac{2K_{eff}}{M_s} \frac{1}{\left(\sin^{2/3}(\varphi) + \cos^{2/3}(\varphi)\right)^{3/2}}$$

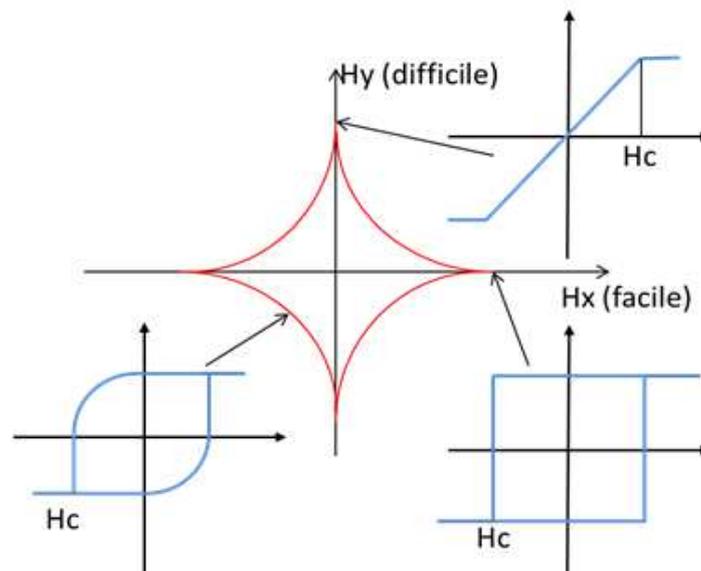


Figure II.2 Courbe rouge : Champ de renversement de l'aimantation en fonction des composantes (H_x, H_y) du champ appliqué et donc de l'angle φ que fait le champ appliqué par rapport à la direction d'anisotropie orientée selon x . Cette courbe est appelée astroïde de Stoner-Wohlfarth. Les cycles d'aimantation en bleu schématisent le cycle d'aimantation pour quelques angles φ .

Cette fonction est reportée sur la figure II.2. Lorsque le champ magnétique est appliqué selon la direction de facile aimantation, le cycle est carré et hystérétique ($\varphi=0$ $[\pi]$, $H_y=0$). Lorsque le champ magnétique est appliqué perpendiculairement à la direction de facile aimantation, la réponse est linéaire sans hystérésis ($\varphi=\frac{\pi}{2}$ $[\pi]$, $H_x=0$).

Ce modèle s'applique à des systèmes de faible taille dans lesquels l'aimantation reste uniforme grâce à l'énergie d'échange. Ce comportement a été observé expérimentalement notamment dans des clusters de Co de taille inférieure à 5nm [WER06]. Dans les systèmes de grandes tailles, le renversement d'aimantation se fait par nucléation et propagation de parois de domaines magnétiques. Une structure en domaines peut même exister sans champ magnétique appliqué.

2. La dynamique d'aimantation et l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert

La minimisation de l'énergie libre de Brown E_{TOT} nous renseigne sur l'existence d'états d'équilibre sans fournir d'informations sur les trajectoires qui assurent le passage d'un état stable à un autre. Les aspects dynamiques de l'évolution temporelle de l'aimantation entre deux états d'équilibre ont demandé l'introduction d'une nouvelle équation capable de décrire le mouvement de l'aimantation. Il s'agit de l'équation de Landau - Lifshitz – Gilbert (LLG).

La dynamique d'aimantation pour un macrospin est décrite par l'équation de Landau-Lifshitz qui a été reformulée par Gilbert en ajoutant au terme de précession $-\mu_0\gamma(\vec{M} \times \vec{H}_{eff})$ un terme de type visqueux $-\frac{\alpha}{M_s}\vec{M} \times \frac{d\vec{M}}{dt}$ qui permet de rendre compte des observations expérimentales.

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma_0(\vec{M} \times \vec{H}_{eff}) - \frac{\alpha}{M_s}\vec{M} \times \frac{d\vec{M}}{dt}$$

Le premier terme de cette équation correspond au terme précessionnel. Il traduit la précession de l'aimantation autour de sa position d'équilibre donnée par \vec{H}_{eff} , le champ magnétique effectif vu par l'aimantation. Ce dernier dérive de l'énergie libre de Brown par la relation

$$\vec{H}_{eff} = \frac{1}{\mu_0} \frac{\partial E_{TOT}}{\partial \vec{M}}$$

Le second terme est dissipatif et est caractérisé par le facteur d'amortissement α . Introduit phénoménologiquement, il explique la diminution de l'amplitude de précession au cours du temps pour permettre à l'aimantation de rejoindre sa position d'équilibre. Sans ce terme, l'aimantation précesserait indéfiniment.

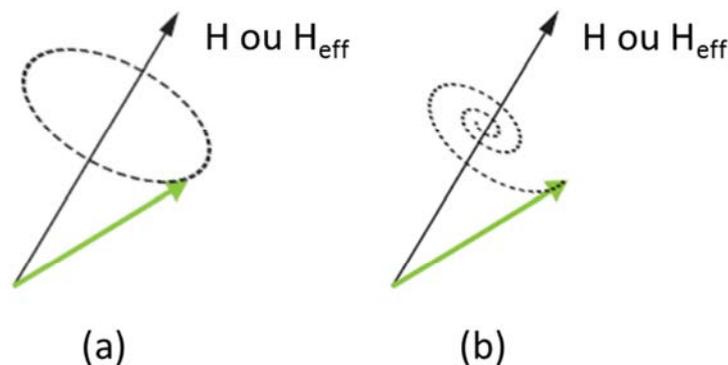


Figure II.3 Trajectoire de l'aimantation sous champ (a) sans le terme dissipatif (b) avec le terme dissipatif.

3. Domaines magnétiques

La configuration magnétique au sein d'une nanostructure peut être très complexe résultant de la minimisation de $E_{TOT} = E_{ECH} + E_{ZEE} + E_{MC} + E_{DEMAG}$. Un gain substantiel d'énergie de champ démagnétisant peut être obtenu avec des configurations en domaines au détriment de l'augmentation de l'énergie d'échange et/ou de l'énergie magnétocristalline (figure II.4). Le système magnétique n'est alors plus monodomaine et le modèle de Stoner-Wolffarth ne s'applique plus.

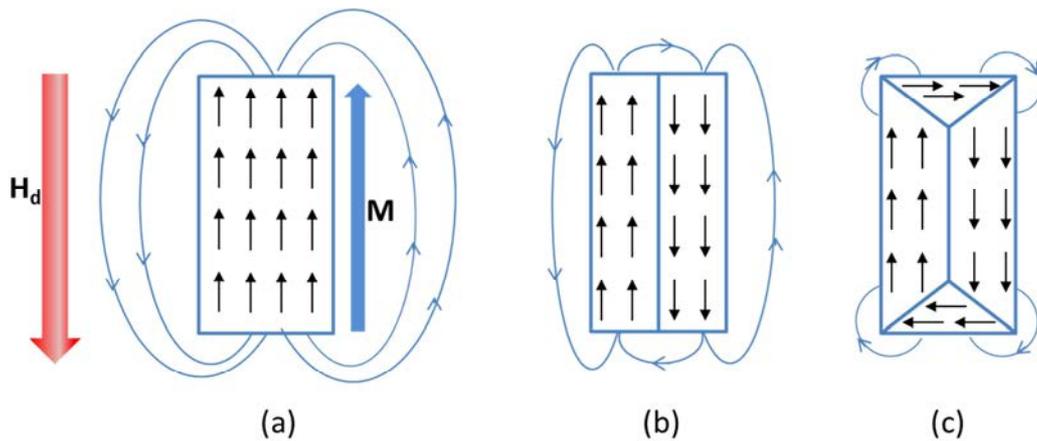


Figure II.4 Différentes configurations de domaines magnétiques qui permettent de diminuer l'énergie de champ démagnétisant H_d .

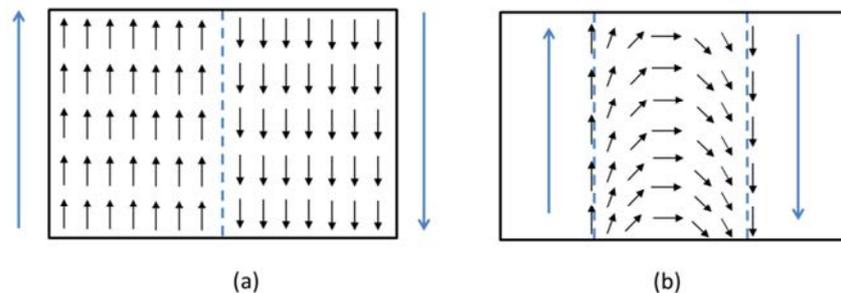


Figure II.5 Structure d'une paroi séparant deux domaines magnétiques

Lorsqu'un état multidomaines est stabilisé, des régions où les moments magnétiques sont parallèles, appelées domaines, sont séparées par des régions où les moments magnétiques ne sont pas colinéaires, appelées parois de domaines (figure II.5). Ces parois de domaines ont une extension spatiale dictée aussi bien par les paramètres intrinsèques du matériau que par leur configuration interne. Selon la structure interne de la paroi, deux longueurs caractéristiques sont introduites pour un matériau donné:

- le paramètre de la paroi Bloch Δ_0 directement lié à la largeur de la paroi de type Bloch dans un matériau uniaxe massif ($\delta_{bloch} = \pi\Delta_0$). Il traduit la compétition entre l'énergie d'échange et l'énergie d'anisotropie magnétocristalline:

$$\Delta_0 = \sqrt{\frac{A_{ex}}{K}}$$

- la longueur d'échange l_{ex} qui décrit la largeur d'un vortex, d'une ligne de Bloch. Elle est un paramètre qui quantifie la compétition entre l'interaction d'échange et l'interaction magnétostatique:

$$l_{ex} = \sqrt{\frac{2A_{ex}}{\mu_0 M_S^2}}$$

Dès lors que la nanostructure possède une extension spatiale supérieure à Δ_0 et/ou l_{ex} , elle peut être sujette à l'apparition de configurations non colinéaires de l'aimantation soit dans ses configurations statiques, soit lors du renversement de son aimantation. Dans ce cas, il ne restera que les simulations micromagnétiques pour appréhender son comportement magnétique. Ces longueurs typiques varient entre 1 et 20nm. Les nanostructures à l'étude dans cette thèse possèdent des dimensions latérales supérieures à 50nm, une approche micromagnétique apparaît donc nécessaire.

III- Simulations micromagnétiques à l'aide du code OOMMF

La résolution et le traitement numérique des équations imposent de partager la nanostructure magnétique en des unités de base de volume ou de surface possédant des formes différentes (cellules tétraédriques, cubiques, orthorhombiques, hexagonales,..; prismes infinis à section triangulaire, carrée, rectangulaire,..). Au sein de ces unités de base, l'aimantation, les champs internes ou l'énergie sont constants. Selon la régularité des unités de discrétisation, des modèles micromagnétiques utilisant la méthode des éléments finis [FRE 87, BAG 91, SCH 99] ou celle des différences finies [SCH88, NAK 89, SCH 91, BER93] ont été conçus.

La méthode des éléments finis est très répandue dans le domaine du calcul technique tels que l'analyse structurelle, la dynamique des fluides, le transport de chaleur ou le calcul du champ électromagnétique. Malheureusement, sa grande flexibilité dans le traitement d'objets d'une géométrie irrégulière ou courbe s'appuie sur un appareillage mathématique sophistiqué. Ce type d'approche est confidentiel dans le domaine du micromagnétisme. Au cours de ce travail de thèse, nous nous appuyerons sur des résultats obtenus en collaboration avec J.-C. Toussaint par son code éléments finis FEELGOOD [KRI08, SZA08].

Les équations micromagnétiques sont des équations aux dérivées partielles et la méthode la plus directe pour les résoudre est fondée sur l'approche des différences finies. Cette approche impose l'utilisation d'un maillage régulier et permet l'implémentation de la

transformée Fourier rapide dans le calcul des contributions magnétostatiques, ce qui est efficace pour réduire les temps de calcul [MAN88]. Cette approche a été utilisée dans le code micromagnétique OOMMF. Dans le paragraphe suivant, nous allons présenter le code OOMMF (Object Oriented MicroMagnetic Framework) qui est un logiciel libre et répandu dans la communauté du micromagnétisme, mis à disposition par le NIST [OOMMF].

A l'origine, le projet OOMMF de l'ITL/NIST visait à développer un code de micromagnétisme avec ses outils associés, facilement portables. Ce code est programmé en C++ et son interface graphique utilise Tcl/Tk. Il permet un calcul pseudo-2D ou 3D. Le calcul en pseudo-2D utilise une grille bidimensionnelle dont chaque cellule porte un moment magnétique tridimensionnel (Figure II.6). Quelle que soit la dimension de la structure, il n'y aura qu'une maille pour l'épaisseur. Le calcul 3D permet le calcul de structures multicouches ou multimatériaux par l'utilisation d'une grille tridimensionnelle. Ce code est maintenant opérationnel et à diffusion libre.

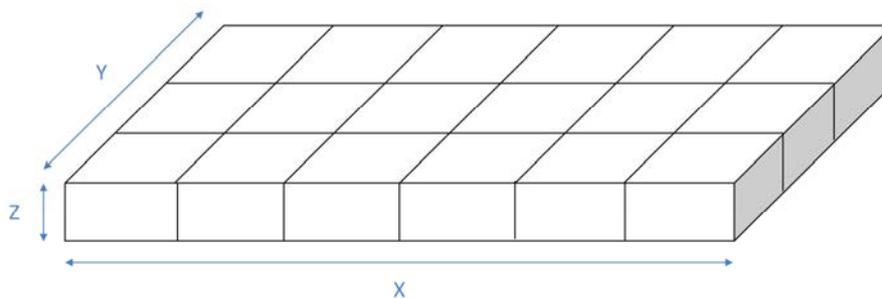


Figure II.6 Schéma du maillage 2D utilisé par OOMMF.

Afin de déterminer les configurations micromagnétiques et les trajectoires suivies par l'aimantation, OOMMF résout l'équation LLG avec un critère de convergence sur le couple exercé sur l'aimantation. mmProbEd permet de définir rapidement un problème micromagnétique 2D en rentrant les paramètres du matériau, la forme de la nanostructure (soit en utilisant les formes définies dans mmProbEd, soit en utilisant une image bitmap), l'histoire magnétique vue par l'échantillon, la configuration magnétique initiale.

En ce qui concerne le calcul du champ démagnétisant, OOMMF propose différents modes:

- Fastpipe : ce mode est utilisé seulement pour des structures invariantes selon cette direction.
- ConstMag : en considérant deux cellules le terme énergétique est calculé en moyennant d'une cellule sur l'autre (ceci accroît légèrement la précision)
- 3dSlab : dans ce mode, une densité fictive de charge volumique est utilisée pour évaluer l'énergie.
- 3dCharge : toujours en considérant deux cellules, l'énergie induite par la première est calculée au centre de la seconde.

Enfin, dans l'optique de gommer les effets de discrétisation qui peuvent apparaître avec toutes les méthodes numériques, il est possible dans OOMMF d'affecter à des cellules choisies un moment magnétique intermédiaire. Cela peut se faire facilement en utilisant une image en niveaux de gris pour définir la forme de la nanostructure. Alors que l'aimantation à saturation est la même pour tout le matériau, le niveau de gris sera proportionnel à l'épaisseur de la cellule : si la cellule est codée en noir, son épaisseur sera égale à celle définie dans le problème ; si la cellule est codée en blanc, son épaisseur est nulle ; si la cellule est codée en gris sur 256 niveaux, son épaisseur sera égale à (niveau gris/256) fois l'épaisseur totale de la nanostructure (voir le paragraphe sur l'utilisation des niveaux de gris pour plus de détails).

IV- Effets de discrétisation et apport du micromagnétisme

Dans ce paragraphe, nous étudierons les conséquences de la discrétisation à l'échelle d'un vertex composé de trois éléments, qui correspond à un nœud de la maille kagomé. Nous proposerons également une méthode qui permet de réduire considérablement l'influence de la grille de maillage [Ria 13]. Nous montrerons également que des degrés de liberté internes se développent au sein des brins rendant la physique des réseaux kagomé mésoscopiques encore plus riche que celle des réseaux kagomé 'atomiques' [Rou 13].

1. Effets de discrétisation sur les niveaux d'énergie d'un vertex déconnecté

Au sein d'un vertex, le nombre de configurations en spin est de 2^3 : il y a 6 configurations de basse énergie (états "2in /1out" ou "2 out /1 in") qui définissent le niveau fondamental. Cet état est donc dégénéré 6 fois ; Il y a 2 configurations de plus haute énergie qui sont les états interdits par la règle de la glace (états "3 in" ou "3 out"). Cet état est donc dégénéré 2 fois.

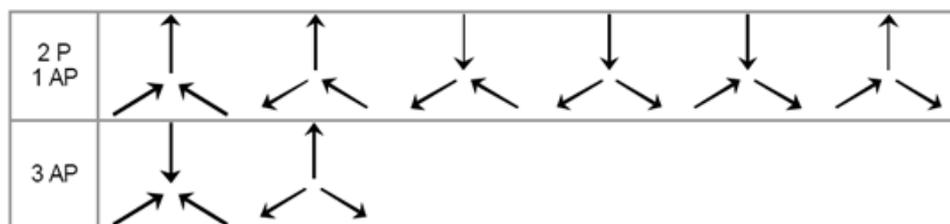


Tableau II.1 Tableau récapitulatif des 8 configurations possibles du vertex à 3 éléments.

En considérant le réseau kagomé, la dégénérescence de son état fondamental est liée à la fois à sa symétrie de rotation (C3) et à son invariance par translation. Du point de vue numérique, ces deux propriétés peuvent être impactées par des effets liés à la discrétisation

et au choix du maillage utilisé pour le calcul. D'une part, la symétrie rectangulaire du maillage utilisé par la méthode des différences finies est différente de celle d'un vertex : la discrétisation des nanoaimants composant le vertex et orientés dans des directions différentes sera différente. D'autre part, comme le réseau kagomé est incommensurable avec le maillage rectangulaire des différences finies, des vertex qui seront translatés dans le réseau ne posséderont pas des maillages équivalents. Des configurations micromagnétiques différentes pour des objets identiques peuvent alors être calculées juste de part un maillage différent.

D'un point de vue numérique, l'invariance par rotation ou translation est alors brisée. On peut alors s'attendre à une modification des processus de renversement de l'aimantation mais également à une levée de dégénérescence artificielle de l'état fondamental. Ceci est particulièrement important. En effet, dans un modèle de glace de spin, l'état fondamental est dégénéré. Dans un modèle de glace de spin dipolaire, l'état fondamental est faiblement dégénéré. Etant donné que le modèle à utiliser pour les glaces de spin artificielles fait encore débat, il faut être sûr que si l'on détermine un état fondamental non dégénéré, cela ne provienne pas de problèmes numériques. La caractérisation des effets de discrétisation est donc primordiale et la recherche de méthodes pour réduire les effets de discrétisation est primordiale lorsque l'on s'intéresse à ce type de simulations micromagnétiques.

Dans la suite, nous allons considérer un vertex constitué de 3 nano-aimants de cobalt avec des dimensions de $500 \times 100 \times 10 \text{ nm}^3$. La distance entre deux éléments est de 42nm ce qui correspond à une distance inter-vertex de 564nm. Les paramètres micromagnétiques qui ont été choisis pour les simulations sont ceux du cobalt polycristallin (aimantation à saturation de $1400 \cdot 10^{-3} \text{ A} \cdot \text{m}^{-1}$, constante d'échange de $3 \cdot 10^{-11} \text{ J} \cdot \text{m}^{-1}$, anisotropie magnétocristalline nulle). Afin d'avoir une référence, des calculs micromagnétiques ont également été réalisés à l'aide de FEELGOOD qui est codé en éléments finis [KRI08, SZA08]. En combinant les éléments finis et une taille de cellule de 4nm, une excellente description de la forme des nanoaimants est obtenue : les calculs sont alors peu teintés d'erreurs de discrétisation.

La figure II.7 représente les énergies calculées pour les 8 configurations possibles pour un vertex à 3 éléments, à l'aide de FEELGOOD (a), à l'aide de OOMMF avec des éléments de 10nm de côté et deux différentes positions du maillage carré des différences finies par rapport aux nanostructures ((b), (c)). Les énergies sont exprimées en unité J_0 , le coefficient de couplage entre premiers voisins dans l'approximation du dipôle ponctuel. Une valeur de $J_0 = 1.34 \cdot 10^{-18}$ Joules est obtenue en considérant que le moment total des nanoaimants est concentré sur le centre de gravité et en utilisant la géométrie du vertex pour déterminer la distance entre les dipôles. Comme nous pouvons le constater sur la figure II.7, les grilles de maillage mesurant 10nm induisent une levée de dégénérescence artificielle (d'origine numérique) non négligeable du niveau fondamental. Les figures (b) et (c) montrent que la

levée de dégénérescence est dépendante de la réalisation du maillage. Enfin, le calcul par éléments finis ne présente pas cette levée de dégénérescence comme on s'y attendait. Ceci montre que la levée de dégénérescence est une conséquence de la rugosité numérique des bords des nanoaimants induite par le choix du maillage.

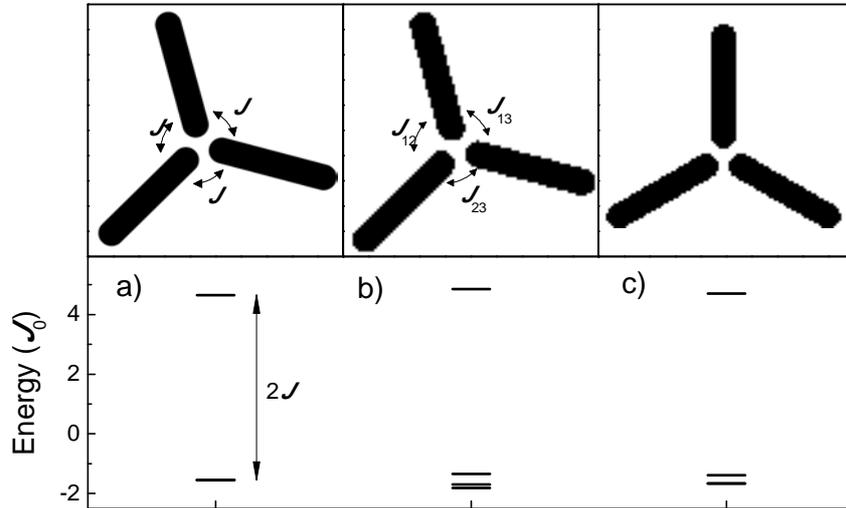


Figure II.7 Énergies des 8 configurations magnétiques d'un vertex avec différents masques de discrétisation.

Avec OOMMF, nous avons procédé à ce calcul à la fois en modifiant la taille des cellules du maillage (voir plus loin) et la méthode de calcul du champ démagnétisant. Nous avons montré que les effets du maillage sont les plus forts avec la méthode de calcul ConstMag. Pourtant, conventionnellement, c'est la méthode ConstMag qui est la plus utilisée par la communauté. En comparant les modes 3dSlab et 3dCharge, nous avons opté pour le mode 3dSlab qui permet d'obtenir des résultats plus proches de ceux obtenus en éléments finis pour des tailles de cellule similaires. Dans la suite, c'est donc le mode 3dSlab qui sera utilisé et dont on essaiera d'atténuer les effets liés au choix du maillage.

Les énergies des différentes configurations peuvent également être vues comme une somme d'interaction de paires. Ceci n'est généralement pas vrai dans un système micromagnétique complexe, mais ceci est possible dans un système composé de 3 nanoéléments. Si les effets de discrétisation peuvent être négligés et si la symétrie d'ordre 3 est conservée, l'énergie d'un vertex peut être écrite par

$$E = -J(\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2 + \vec{S}_1 \cdot \vec{S}_3 + \vec{S}_2 \cdot \vec{S}_3)$$

Où \vec{S}_i ($i = 1,2,3$) est un vecteur unitaire colinéaire au moment magnétique du nanoélément numéro i . L'énergie des 6 configurations obéissant à la règle de la glace est alors égale à $E_I = -(1/2)J$. L'énergie des 2 configurations violant la règle de la glace est alors égale à

$E_{II} = (3/2)J$. L'extraction de la constante de couplage est directe puisque $J = E_{II} + E_I$. Ce coefficient de couplage J converge vers J_0 lorsque la distance entre nanoéléments augmente. A l'inverse, pour des gaps entre nanoéléments plus petits, le coefficient de couplage premier voisin J est bien supérieur à celui prédit par l'approximation du dipôle ponctuel. Pour les petits gaps, la répartition spatiale de l'aimantation, et donc également le maillage de la nanostructure, n'est plus négligeable et la nature multipolaire de l'interaction entre nanoéléments doit être prise en compte.

La détermination de ce coefficient de couplage est dans le cas général plus compliqué surtout lorsque les effets de maillage apparaissent. Dans ce cas, il faut considérer 3 constantes de couplages différentes comme dans le cas (b). Dans le cas (c), lorsqu'un nanoélément partage le même axe de symétrie que le maillage, deux coefficients de couplage peuvent être égaux, ici J_{12} est égal à J_{13} . En toute généralité, l'énergie d'un vertex s'écrit

$$E = -J_{12}\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2 - J_{13}\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_3 - J_{23}\vec{S}_2 \cdot \vec{S}_3$$

De part la symétrie par rapport au renversement du temps, il y a quatre niveaux d'énergies associés aux 8 configurations possibles : un état de haute énergie $E_{II} = (1/2)(J_{12} + J_{13} + J_{23})$ et trois états obéissant à la règle de la glace ($E_I^a = (1/2)(J_{12} - J_{13} - J_{23})$, $E_I^b = (1/2)(-J_{12} + J_{13} - J_{23})$, $E_I^c = (1/2)(-J_{12} - J_{13} + J_{23})$). Les énergies de ces 4 configurations ont été déterminées par calcul micromagnétique à l'aide de OOMMF et les 3 coefficients ont été déterminés à l'aide du système de 4 équations (une constante supplémentaire d'énergie est présente dans le calcul micromagnétique).

Sur la figure II.8, les valeurs de J_{ij} extraites sont exprimées en unité J_0 en fonction de la taille des cellules pour les différents maillages (pour chaque taille de cellule, dix différents maillages ont été utilisés, sauf pour la taille de cellule de 4nm). La ligne pointillée est le résultat du calcul obtenu avec FEELGOOD avec une taille de cellule de 4nm. Pour une taille de cellule fixe, une distribution du coefficient de couplage premier voisin est observée. Cette distribution provient à la fois de l'asymétrie des coefficients de couplage introduite par le maillage mais également des différentes réalisations du maillage. Sur le graphique situé sur la partie basse de la figure II.8, sont représentées les dispersions des constantes de couplage en fonction de la taille des cellules.

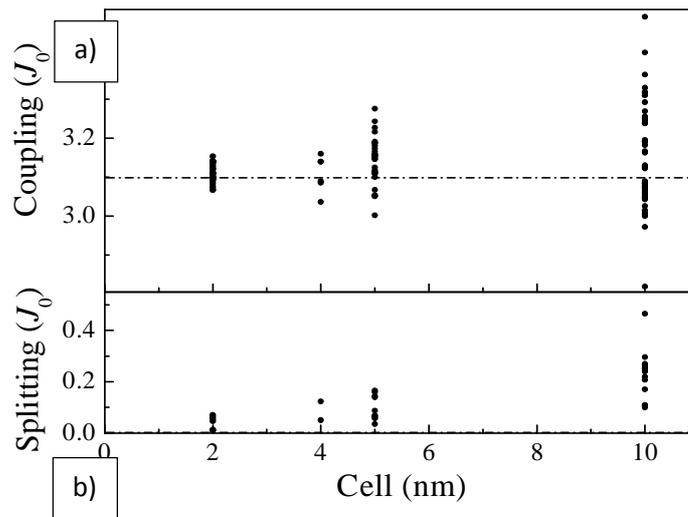


Figure II.8 a) Constantes de couplage premiers voisins en fonction de la taille des cellules et du maillage ; b) dispersion des constantes de couplage en fonction de la taille des cellules et du maillage. Les simulations ont été effectuées avec des masques en noir et blanc, la ligne en pointillés représente la valeur calculée en éléments finis avec le logiciel FEELGOOD avec une taille de cellule de 4nm.

Comme on pouvait s’y attendre, une description plus fidèle du nanoaimant est obtenue lorsque la taille des cellules du maillage diminue. En effet, la dispersion des constantes de couplage et le splitting des niveaux d’énergie sont considérablement réduits lorsque la taille des cellules diminue et la valeur du couplage converge vers l’unique constante de couplage calculée en éléments finis avec le logiciel FEELGOOD. Cette conclusion est robuste par rapport à l’orientation du maillage, en particulier par rapport à sa rotation par rapport au vertex. Du fait d’avoir une série de maillage avec des symétries communes à la structure (axe verticale), la levée de dégénérescence du niveau fondamental est beaucoup moins importante car J_{12} et J_{23} sont les mêmes par symétrie (figure II.8 c). Même si le nombre de niveaux est réduit, l’écart moyen entre les niveaux restant n’en est pas néanmoins réduit pour un maillage symétrique. Cependant il est intéressant pour certaines simulations de réduire le nombre de coefficients de couplage à considérer.

Généralement le besoin de minimiser ces effets de discrétisations requiert des cellules de maillage de petite dimension. En conséquence, le nombre de nanoéléments qui peut être simulé est limité à la fois à cause du temps de calcul qui peut diverger et la taille mémoire requise.

2. Les niveaux de gris

Dans l'optique de gommer ces effets de discrétisation, il est possible dans OOMMF d'affecter un moment magnétique intermédiaire à des cellules choisies dans le maillage. Ici, nous nous focaliserons sur les cellules localisées en bordure des nano-aimants.

De manière classique, le maillage est disposé sur la nanostructure à calculer (la forme de la nanostructure est représentée en rouge dans la figure II.9 a). Les cellules à l'intérieur de la nanostructure et celles qui interceptent le contour de la nanostructure porteront un moment magnétique égal à l'aimantation à saturation multipliée par le volume de la cellule. C'est le moment magnétique maximum qui peut être affecté à une cellule: cette dernière est de couleur noire. Les cellules en dehors de la nanostructure sont blanches, avec un moment magnétique nul: pas de matériau magnétique en dehors de la nanostructure. Il en résulte une forme numérique rugueuse de la nanostructure.

Ici, la forme des nano-aimants est encodée avec une image en niveaux de gris. Lorsqu'une cellule intercepte le contour de la nanostructure, l'intensité du gris de la cellule est définie proportionnelle à la surface de la cellule à l'intérieur de la nanostructure. Intégré dans OOMMF, ce niveau de gris est converti en une modification de l'épaisseur de la cellule, l'aimantation à saturation étant maintenue constante. Ainsi, le niveau de gris est alors proportionnel au moment magnétique porté par la cellule en modulant l'épaisseur de la cellule (figure II.9c). La forme de la structure est alors mieux définie.

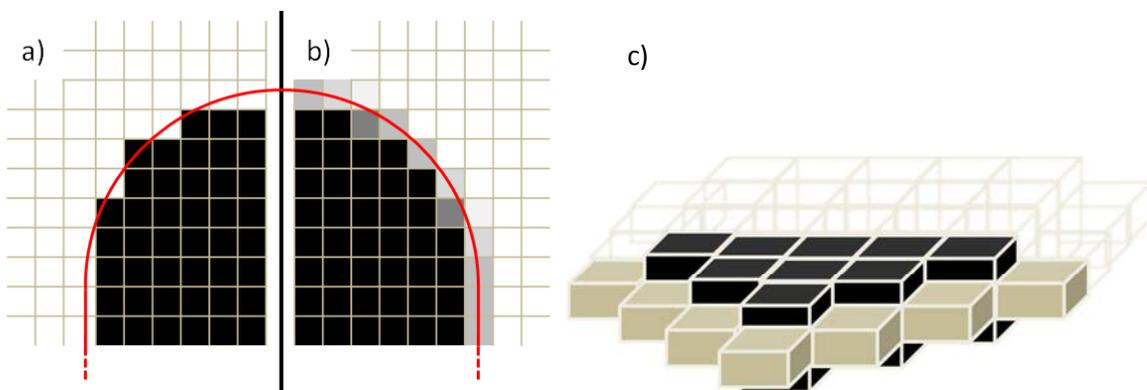


Figure II.9 Définition d'un masque de nano-aimant. a) masque défini en noir et blanc. b) masque défini en niveaux de gris. c) vue en 3D montrant la proportion de l'épaisseur des cellules au moment magnétique en bord de forme. La ligne rouge représente la forme de la nanostructure à discrétiser.

La figure II.10 compare les constantes de couplage J_{ij} (en unité de J_0) en fonction de la taille des cellules et des différents maillages utilisés. Ces calculs ont été effectués en a) avec un masque en noir et blanc et en b) avec un masque en niveaux de gris puis comparés à la valeur de la constante calculée en éléments finis (logiciel FEELGOOD) représenté sur le diagramme de la figure II.10 par une ligne verticale rouge. En utilisant le masque en niveaux de gris, nous constatons que la levée de dégénérescence artificielle est réduite d'un ordre de

grandeur et devient alors comparable à la levée de dégénérescence résiduelle trouvée avec l'approche éléments finis. Il apparaît clairement que la dispersion des constantes de couplage est fortement réduite indépendamment du maillage lorsque la taille des cellules est inférieure à 5 nm. Par exemple, la même distribution de coefficient de couplage est obtenue en noir/blanc avec une taille de cellule de 2nm et en niveaux de gris pour une taille de cellule de 5nm. Ainsi, en niveaux de gris, un gain conséquent à la fois en temps de calcul et en mémoire occupée peut être obtenu. Ceci montre l'intérêt de la technique, soit pour une précision donnée diminuer le temps de calcul, soit pour un temps de calcul donné augmenter la précision sur les couplages calculés. Cela nous permet de montrer la puissance de l'approche niveaux de gris en différences finies dans OOMMF.

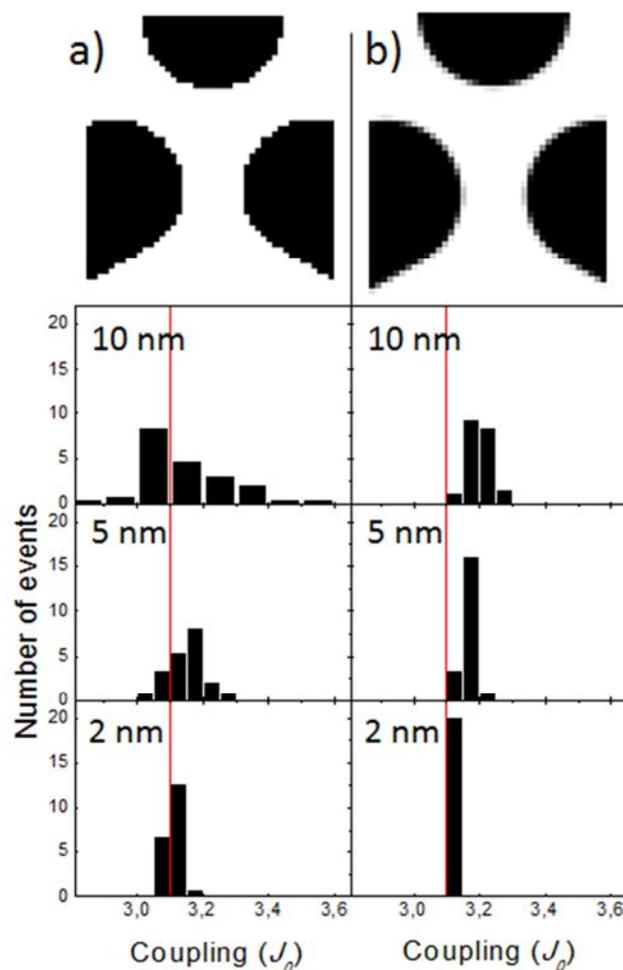


Figure II.10 Comparaison des constantes de couplage en fonction de la taille des cellules et de la grille de maillage calculées à gauche en noir et blanc et à droite en niveaux de gris. La ligne rouge représente la valeur calculée en éléments finis.

Enfin, au-delà d'une simple erreur sur les coefficients de couplage ou sur les champs coercitifs, les effets de discrétisation peuvent drastiquement impacter l'interprétation de la

physique du système à partir du résultat numérique. En effet, le splitting en énergie du niveau fondamental obtenu à l'aide de la méthode des différences finies peut être du même ordre de grandeur que l'énergie liée aux interactions dipolaires longue portée dans un réseau. Théoriquement, l'énergie d'interaction dipolaire avec les deuxièmes voisins dans la géométrie kagomé est égale à $0.137 J_0$, typiquement la dispersion en énergie calculée avec le meilleur maillage, en utilisant un masque noir et blanc et une taille de cellules de 5nm (figure II.10). Il est alors essentiel lorsqu'il s'agit de la détermination de l'énergie de configurations magnétiques dans un système de spin artificielle kagomé de vérifier l'origine des splitting d'énergies calculés. Un splitting d'origine dipolaire imposera l'utilisation d'un modèle de glace de spin dipolaire notamment pour les calculs Monte-Carlo.

3. Degrés de liberté internes

Un apport indéniable du micromagnétisme est la détermination des configurations micromagnétiques d'une nanostructure. Comme nous l'avons évoqué précédemment, seuls des volumes de géométries du second ordre peuvent présenter une aimantation uniforme. De plus, seuls des clusters de tailles typiques inférieures à 5nm présentent des comportements de type Stoner-Wohlfarth [Wer 06]. Dans un premier temps, nous allons montrer que des nano-aimants de cobalt de volume $500 \times 100 \times 10 \text{ nm}^3$ ne peuvent pas être considérés comme des spins d'Ising et que, même en champ appliqué nul, des configurations non colinéaires d'aimantation existent.

Comme le montre la figure II.11a, pour un nano-aimant unique, la configuration micromagnétique est symétrique et identique aux deux extrémités : l'aimantation suit localement la forme de l'aimant afin de limiter la présence de charges magnétiques sur les bords de la forme. Lorsque deux nano-aimants sont placés en interaction, la symétrie axiale est brisée et l'aimantation circule à l'extrémité de l'élément afin de fermer le flux magnétique lorsque les aimantations sont alignées ferromagnétiquement (figure II.11b) et les aimantations de bout de brin se repoussent lorsqu'elles sont alignées antiferromagnétiquement (figure II.11c). Pour un vertex complet, c'est-à-dire composé de 3 nano-aimants satisfaisant la règle de la glace, l'aimantation est dissymétrique pour deux des trois nano-aimants tant que l'aimantation du troisième demeure symétrique (figure II.11d) : le flux du brin de gauche est bouclé dans les deux brins de droite. Enfin, pour l'état interdit, la situation est différente, et le flux magnétique se ferme en imposant une configuration vortex aux extrémités des éléments. Mais contrairement au cas de l'état permis par la règle de la glace, ici les deux chiralités sont possibles : la configuration vortex peut tourner dans le sens horaire ou antihoraire conduisant à une dégénérescence additionnelle de l'état interdit (figure II.11e-f).

Nous montrons ici dans l'étude des configurations statiques que, dans une glace de spin artificielle, le micromagnétisme induit des degrés de libertés additionnels dans le système. Le caractère Ising du pseudo spin est une approximation lorsque nous comparons des

réseaux de nano-aimants à des modèles de glace de spins atomiques. La cartographie des réseaux frustrés sur les modèles glace de spin est à priori une hypothèse forte qu'il conviendra de garder à l'esprit.

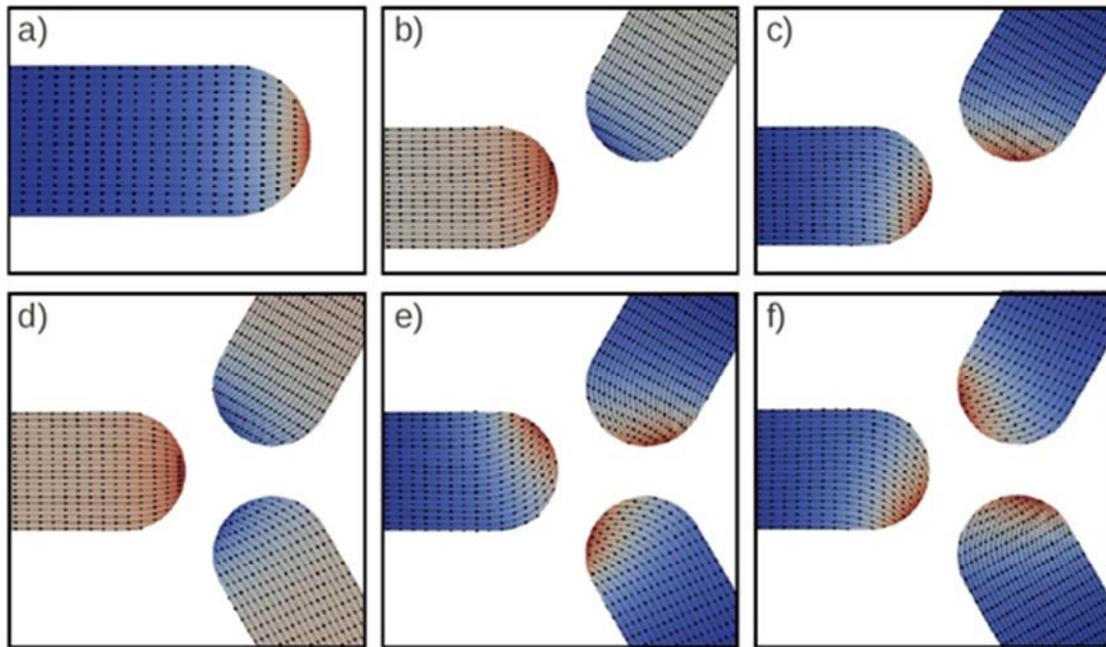


Figure II.11 Configuration magnétique aux extrémités des nano-aimants. a) pour un nanoaimant unique ; b) pour deux nanoaimants dont les aimantations sont en configuration parallèle ; c) pour deux nanoaimants dont les aimantations sont en configuration antiparallèle ; d) pour un vertex de 3 nanoaimants en configuration 1in/2out ; e) pour un vertex de 3 nanoaimants en configuration interdite avec une chiralité horaire ; f) pour un vertex de 3 nanoaimants en configuration interdite avec une chiralité antihoraire. Calculs réalisés avec FEELGOOD.

La situation décrite ci-dessus a été calculée pour une valeur de gap et pour une taille de nanoaimant. Lorsque la distance entre nanoaimant augmente, le couplage magnétostatique au niveau du vertex diminue. Pour une taille de nanoaimant, il existe alors un gap pour lequel la configuration micromagnétique de l'extrémité d'un nanoaimant diffère de l'état de fermeture de flux (figure II.11 b-f) au profit d'une configuration symétrique observée dans un élément isolé (figure II.11a). La figure II.12 illustre la modification du comportement du bout de brin en fonction du gap pour un état interdit. Sur cette figure, la composante transverse de l'aimantation (direction perpendiculaire au plus long axe de chaque nano-aimants) est exprimée en fonction du gap entre les éléments. La composante transverse est la signature directe d'états de fermeture de flux à un vertex. Plus les éléments sont larges, plus l'aimantation transverse est grande et la fermeture de flux favorisée.

Au-delà d'une valeur critique de gap (distance entre éléments), le pseudo-spin est essentiellement analogue à un spin d'Ising. Dans ce régime, les effets micromagnétiques n'ont pas une grande influence sur les configurations statiques, ce qui ne modifie pas le caractère symétrique de l'aimantation le long de l'élément. En dessous de cette valeur critique, la configuration vortex de l'aimantation aux extrémités des éléments change drastiquement les propriétés du système. Cette notion implique une chiralité de l'état vortex et par conséquent une dégénérescence additionnelle de l'état interdit. Dans le cadre de ce travail de thèse, nous nous sommes placés dans une zone de gap dans laquelle une composante transverse de l'aimantation est favorisée.

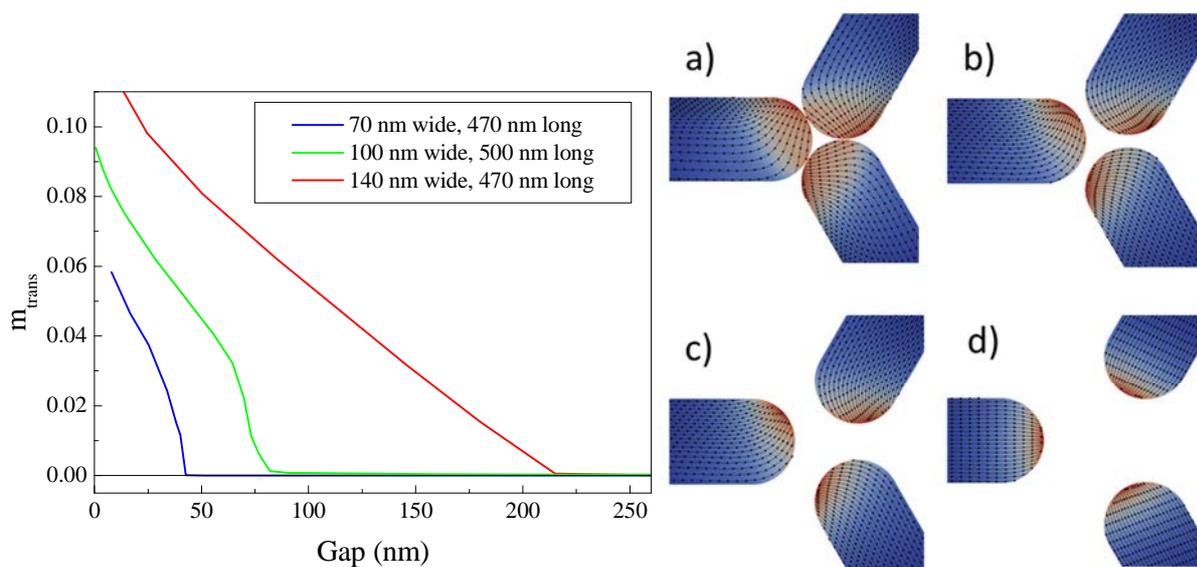


Figure II.12 À gauche, variation de la composante transverse de l'aimantation des nano-aimants en fonction du gap et ceci pour différentes géométries de nano-aimants. À droite, configurations magnétiques à un vertex pour des nano-aimants de $500 \times 100 \times 10 \text{ nm}^3$ avec différentes tailles de gap : a) 0.5nm, b) 14.3nm, c) 42.0nm, d) 97.5nm.

V- Etude du renversement des aimantations dans un vertex

Nous allons maintenant voir quelle est l'implication des configurations de bout de brin sur le renversement de l'aimantation d'un brin unique et d'un vertex. Les simulations ont été réalisées avec des masques comprenant des ensembles de nano-aimants de cobalt mesurant 500nm de long, 100nm de large et 10nm de haut, avec des tailles de cellules de 2 nm et discrétisés en niveaux de gris. Pour déterminer les renversements irréversibles de l'aimantation, nous avons calculé les astroïdes. Ces dernières, comme nous l'avons évoqué au paragraphe II.2.1, représentent les champs pour lesquels la configuration magnétique de la structure perd sa stabilité au profit d'une autre configuration. Dans le cas de Stoner-

Wolhfarth, cela correspondait à un renversement de l'aimantation. Ici, les astroïdes sont plus complexes.

1. Astroïde d'un nano-aimant unique

En champ nul, l'anisotropie de forme confère au nano-aimant une configuration magnétique quasi uniformément aimantée le long du grand axe du nano-aimant. Cette configuration minimise l'énergie démagnétisante de l'objet. L'astroïde diffère de celui de Stoner-Wolhfarth d'une part par son aplatissement le long de l'axe y (l'axe du nanoaimant) et d'autre part par l'apparition de nouvelles zones d'irréversibilités aux coins supérieur et inférieur de l'astroïde. Comme nous allons le voir, ces dernières proviennent du renversement partiel ou total de l'aimantation du nano-aimant en fonction de la configuration magnétique de ses extrémités (figure II.13). L'aplatissement quant à lui provient d'un renversement par nucléation et propagation d'une paroi de domaines.

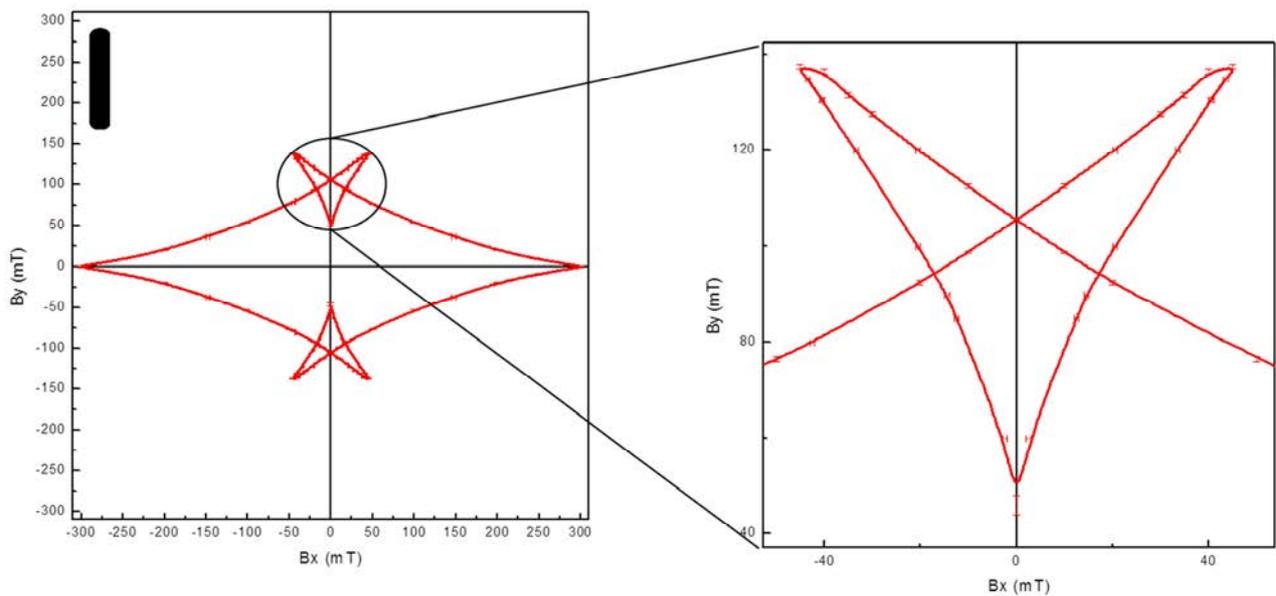


Figure II.13 Astroïde simulée sur un élément unique. L'insert montre l'orientation du nanoaimant par rapport aux axes (x,y) . L'axe des y est placé le long du grand axe du nanoaimant. Le zoom à droite représente les différentes transitions irréversibles en fonction des configurations des bouts de brins.

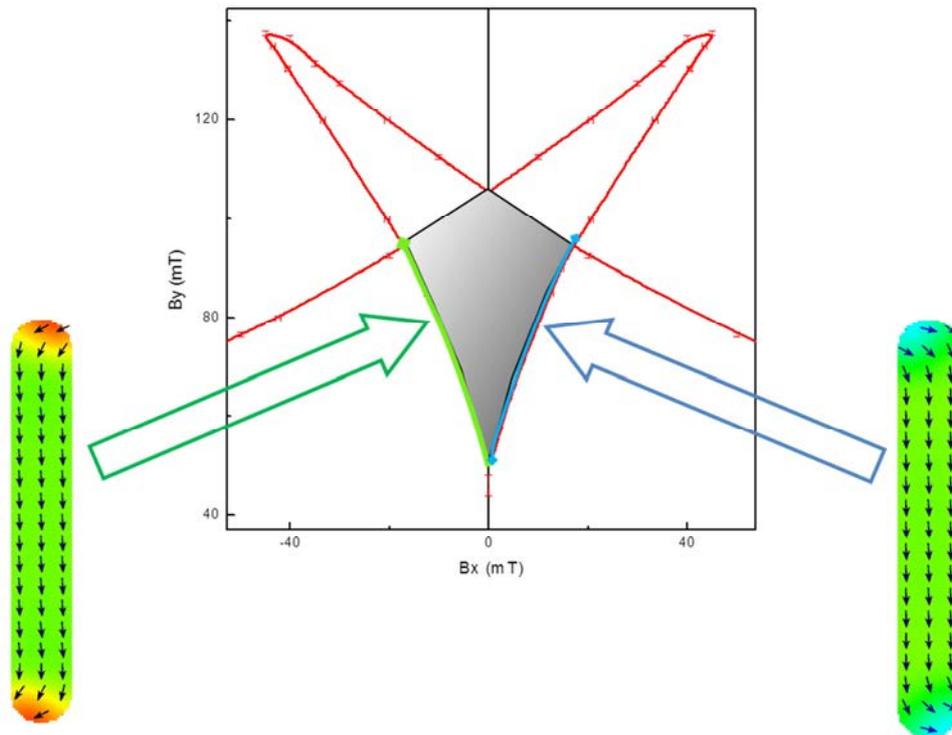


Figure II.14 En gris : zone de bistabilité de l'aimantation de bout de brin. Lorsque l'on rentre dans la zone de bistabilité par la frontière verte, les extrémités du brin sont stabilisées à gauche. En revanche, si l'on rentre dans la zone de bistabilité par la frontière bleue, alors les extrémités seront stabilisées à droite.

1.1. Configuration magnétique des extrémités du brin

La zone grisée de l'astroïde de la figure II.14 délimite une gamme de champ dans laquelle la direction d'aimantation des extrémités du brin est fixée. Cette direction dépend de l'histoire en champ magnétique avec laquelle cette zone a été abordée. En effet, si cette zone a été abordée par la section d'astroïde représentée en vert, alors la direction d'aimantation de bout de brin sera dirigée vers la gauche ; Si cette zone est abordée par la frontière bleue, alors l'aimantation de bout de brin sera orientée vers la droite. La configuration magnétique de l'élément est toujours stable dans cette zone et orienté vers le bas, seules les extrémités renversent leur aimantation en fonction du champ appliqué.

1.2. Renversement d'aimantation en fonction de la configuration des extrémités du brin

Une fois la configuration magnétique de l'extrémité du brin fixée en configuration gauche par exemple, il est possible d'avoir deux sections d'astroïde par lesquelles l'aimantation du cœur du brin perd sa stabilité et se renverse.

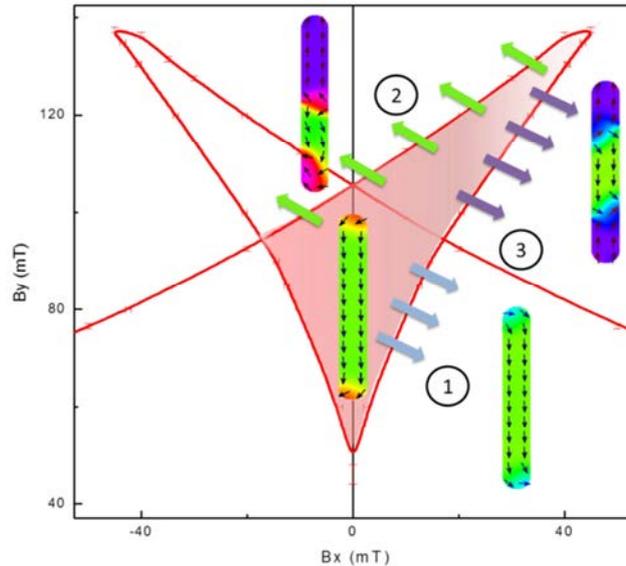


Figure II.15 Illustration des différents renversements d'aimantation possibles pour une aimantation gauche des extrémités du brin. Par symétrie, les autres branches de l'astroïde représentent les renversements pour une configuration d'extrémité du brin à droite.

a. Transition 1

Cette transition se trouvant dans la zone de stabilité de l'aimantation du cœur du brin, la configuration magnétique de l'élément reste orientée vers le bas. En revanche, l'aimantation des extrémités de l'élément commute de gauche vers la droite.

b. Transition 2

Cette transition fait perdre à la configuration magnétique de l'élément sa stabilité et au-delà de cette limite une paroi de domaines magnétiques est nucléée par un renversement d'aimantation de bout de brin à gauche puis est propagée au profit d'une configuration magnétique orientée majoritairement vers le haut.

c. Transition 3

Cette transition est le prolongement de la transition 1 en dehors de la zone de stabilité, par conséquent, lorsque cette limite est franchie les extrémités de l'élément s'orientent à droite. La configuration n'étant plus stable une paroi de domaines est nucléée par un renversement à droite puis propagée au profit d'une configuration orientée majoritairement vers le haut.

Ces différentes transitions montrent que, pour un angle d'application d'un champ donné, le champ de renversement du brin va être différent en fonction de l'orientation droite ou gauche du bout de brin. Nous montrons ainsi l'implication de ces configurations de bout de brin sur leur retournement.

1.3. Effet de discrétisation sur le renversement

Dans ce paragraphe, afin de montrer que l'astroïde d'un élément unique est très peu dépendante de son orientation par rapport au maillage, nous comparons dans la figure II.16 la partie d'astroïde relative aux comportements des bouts de brin pour un nanoaimant tourné de 120° (en bleu) et pour un nanoaimant orienté verticalement (comme dans le paragraphe précédent) dont l'astroïde a été tournée de 120° (rouge). Nous voyons clairement que du point de vue numérique, il y a un impact sur les valeurs des champs d'irréversibilité (variation d'environ 5%) mais le comportement qualitatif est le même. Ici encore, les niveaux de gris n'ont pas complètement gommé les effets de maillage.

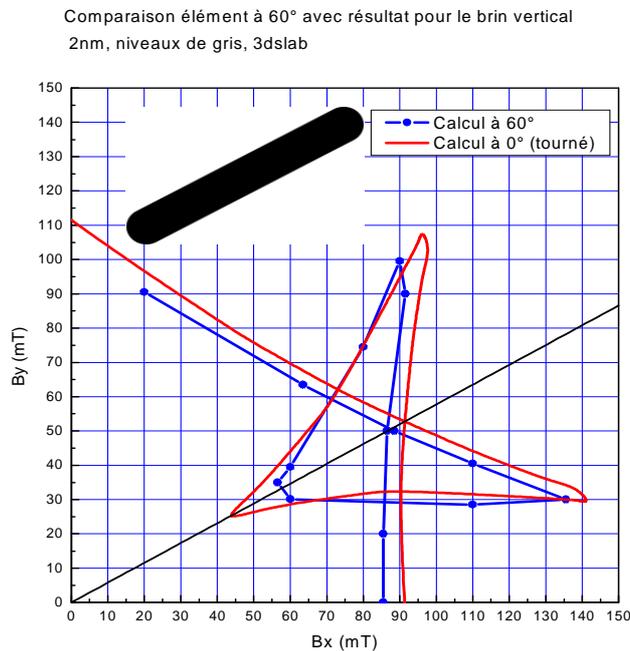


Figure II.16 Comparaison d'une partie d'astroïde relative aux comportements des bouts de brin pour un nanoaimant tourné de 120° (en bleu) et pour un nanoaimant orienté verticalement (comme dans le paragraphe précédent) dont l'astroïde a été tournée de 120° (rouge).

2. Astroïde d'un vertex à partir d'un état permis : configuration de départ saturée $\lambda 180$

Dans cette partie, nous allons étudier le renversement d'un vertex sous champ magnétique. Dans le réseau kagomé, des vertex Y (entouré en rouge) et des vertex nommés λ (entouré en bleu) coexistent (figure II.17). Nous allons nous concentrer sur un vertex λ . Afin d'identifier les différents brins, nous les avons numérotés. Enfin, les configurations

magnétiques seront notées λ_θ où θ est l'angle entre le moment magnétique résultant du vertex (somme vectorielle des 3 moments des 3 nanoaimants) et la direction du brin 1. Nous avons déterminé l'astroïde de renversement des aimantations en partant de la configuration λ_{180° dans laquelle tous les moments magnétiques des nanoaimants sont orientés vers le bas. Afin de ne déterminer que les comportements issus du vertex en lui-même, les bouts de brins situés à l'extérieur du vertex sont bloqués, leurs comportements magnétiques dépendent en effet dans le réseau des configurations de leurs premiers voisins. Nous aurons ainsi les propriétés intrinsèques du vertex λ .

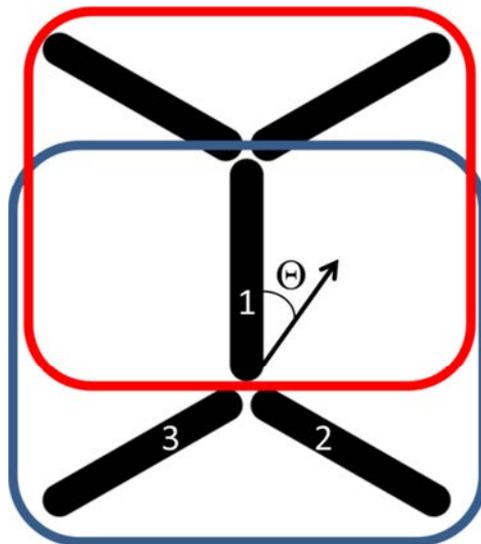


Figure II.17 Numérotation des nanoaimants d'un vertex de type λ .

Le résultat du calcul est donné dans la figure II.18. A première vue, l'astroïde paraît bien plus complexe que l'astroïde d'un brin unique. Nous allons en décrire les différentes parties. Tout d'abord, nous concentrerons notre analyse sur les irréversibilités apparaissant autour de $H_x=0$ et $H_y=65\text{mT}$ qui s'apparentent à celles que nous avons observées sur le brin unique vertical. Ensuite, nous décrivons les autres parties de l'astroïde qui auront trait aux deux brins obliques. Dans un souci de clarté, nous ne décrivons que la partie droite, H_x positif, de l'astroïde de la figure II.18, la partie gauche, H_x négatif, pouvant être obtenue par symétrie.

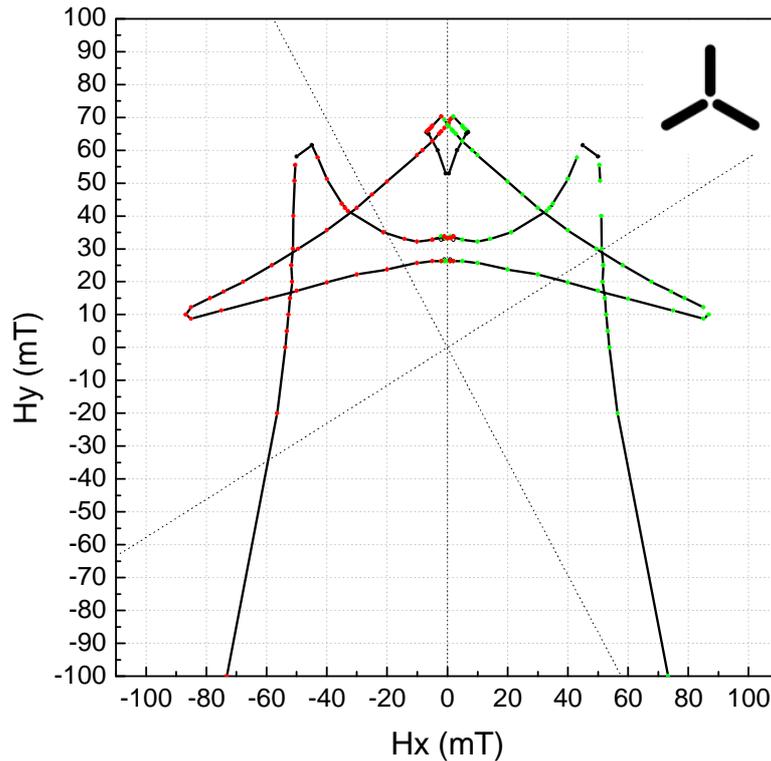


Figure II.18 Astroïde représentant les champs de renversement pour une configuration magnétique de départ λ_{180° . L'insert donne l'orientation du vertex par rapport aux champs (H_x , H_y).

2.1. Renversements d'aimantation pour $-20 < H_x < 20$ mT et $40 < H_y < 80$ mT

La zone rouge de l'astroïde est la zone de bistabilité du brin 1, le brin vertical du vertex (figure II.19). Tout comme dans le cas du brin unique (figure II.14), l'aimantation de bout de brin au niveau du vertex peut être orientée soit vers la gauche, soit vers la droite (cf. figure II.19) suivant le chemin en champ suivi pour rentrer dans cette zone. Si la composante H_x est négative alors l'extrémité du brin sera orientée vers la gauche ; si la composante H_x est positive alors l'extrémité sera orientée vers la droite.

En partant de cette zone de bistabilité, en augmentant le champ appliqué (flèche bleue), deux points de croisement existent avec l'astroïde (figure II.20). Dans les deux cas, le vertex passe d'une configuration λ_{180° à une configuration λ_{60° en renversant l'aimantation du brin 3 par une paroi « up ». Dans le cas du point de croisement ②, le bout de brin 1 est orienté vers la droite alors que pour le point de croisement ①, le bout de brin 1 est orienté à gauche. On retrouve les mêmes caractéristiques que pour le brin vertical unique.

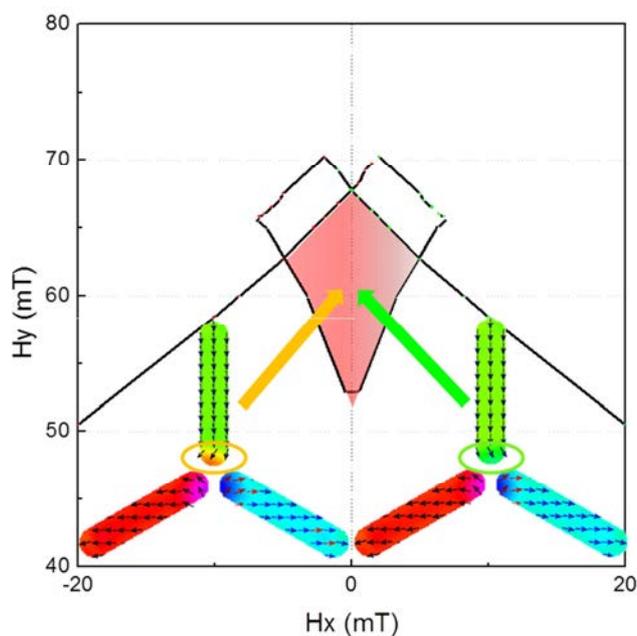


Figure II.19 Zoom sur la zone de bistabilité du brin 1. Dans cette zone (en rouge), l'aimantation du bout de brin 1 au niveau du vertex peut prendre deux orientations en fonction du chemin en champ pris pour rentrer dans cette zone. Les deux orientations sont entourées en jaune et en vert sur les configurations magnétiques.

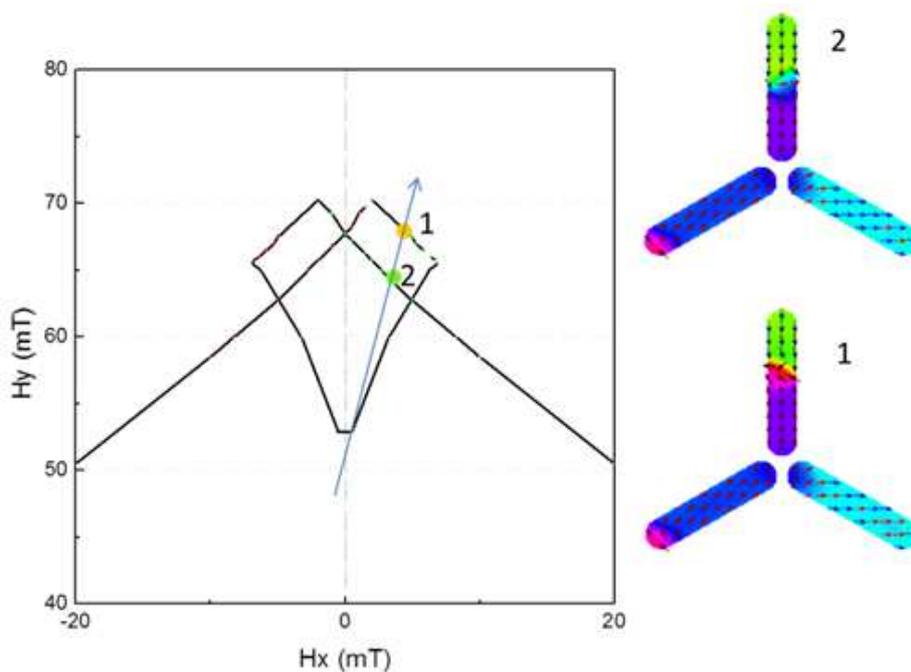


Figure II.20 Zoom sur la zone de bistabilité du bout de brin 1. En augmentant le champ appliqué (flèche bleue), deux points de croisement existent avec l'astroïde : ❶ renversement du brin 3 puis du brin 1 lorsque l'aimantation du bout de brin 1 est à gauche ; ❷ renversement du brin 3 puis du brin 1 lorsque l'aimantation du bout de brin 1 est à droite.

2.2. Renversements d'aimantation pour $0 < H_x < 100$ mT et $0 < H_y < 100$ mT

La partie de l'astroïde en violet est la zone de bistabilité de l'extrémité du brin 3. Cette dernière peut prendre une configuration « down » (aimantation vers le bas, configuration 1 de la figure II.21) ou une configuration « up » (aimantation vers le haut, configuration 2 de la figure II.21). Encore une fois, ces configurations dépendent de l'histoire en champ avec laquelle cette zone bistable a été abordée. En effet, si l'on rentre dans la zone de bistabilité en appliquant le champ selon la direction 1, la configuration de bout de brin « down » sera stabilisée dans cette zone. En revanche, si l'on rentre dans cette même zone avec le champ appliqué dans la direction 2, l'aimantation de bout de brin s'oriente en configuration « up ».

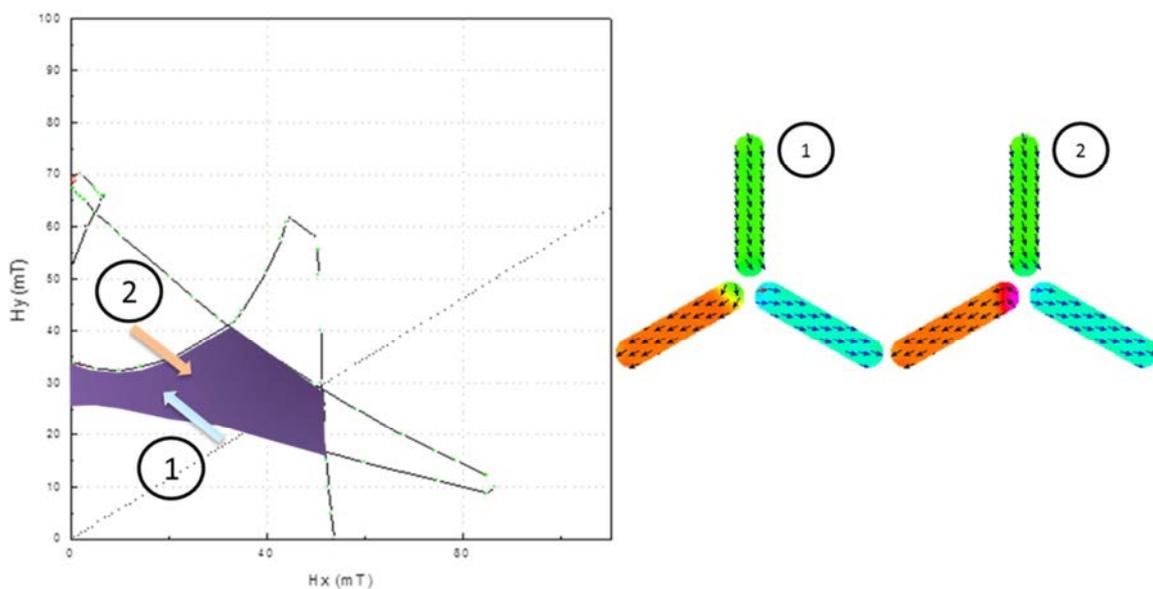


Figure II.21 Branches internes de l'astroïde délimitant la zone de bistabilité du brin 3. Configurations micromagnétiques obtenues en rentrant dans la zone de bistabilité par les frontières 1 et 2.

Regardons maintenant le mode de renversement de l'aimantation du brin 3 en fonction de sa configuration de bout de brin. La configuration magnétique du vertex va donc passer d'une configuration λ_{180° à une configuration λ_{120° .

Considérons que l'aimantation du bout du brin 3 est stabilisée up, il existe deux transitions pour lesquelles le brin renverse son aimantation, les transitions A et B (figure II.22a). Tout d'abord via la transition A, le brin renverse son aimantation par une paroi « up ». Dans la transition B, il va y avoir commutation de l'aimantation du brin en configuration « down » puis propagation d'une paroi « down ».

Si l'aimantation de bout de brin est stabilisée « down » dans la zone de bistabilité, les champs nécessaires au renversement de la configuration du brin 3 se trouvent le long des branches C et D de l'astroïde (figure II.22b). Tout d'abord via la transition C, le brin renverse son aimantation par une paroi « down ». Dans la transition D, il va y avoir commutation de l'aimantation du brin en configuration « up » puis propagation d'une paroi « up ».

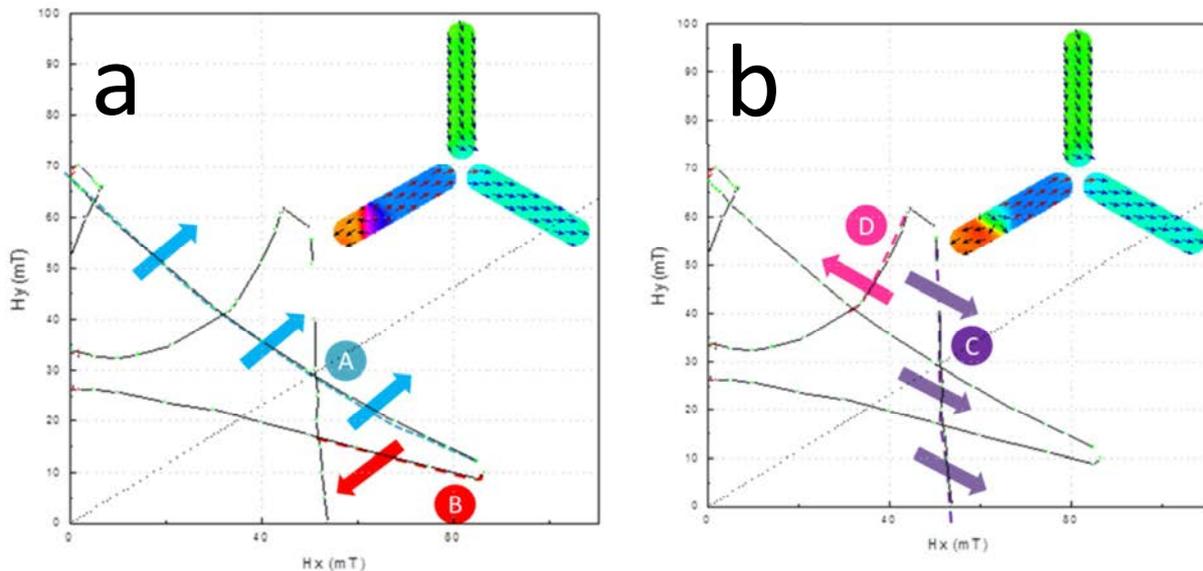


Figure II.22 Sections d'astroïde permettant une transition d'une configuration λ_{180° à une configuration λ_{120° . a) Renversement pour une configuration de bout de brin up ; b) renversement pour une configuration de bout de brin down.

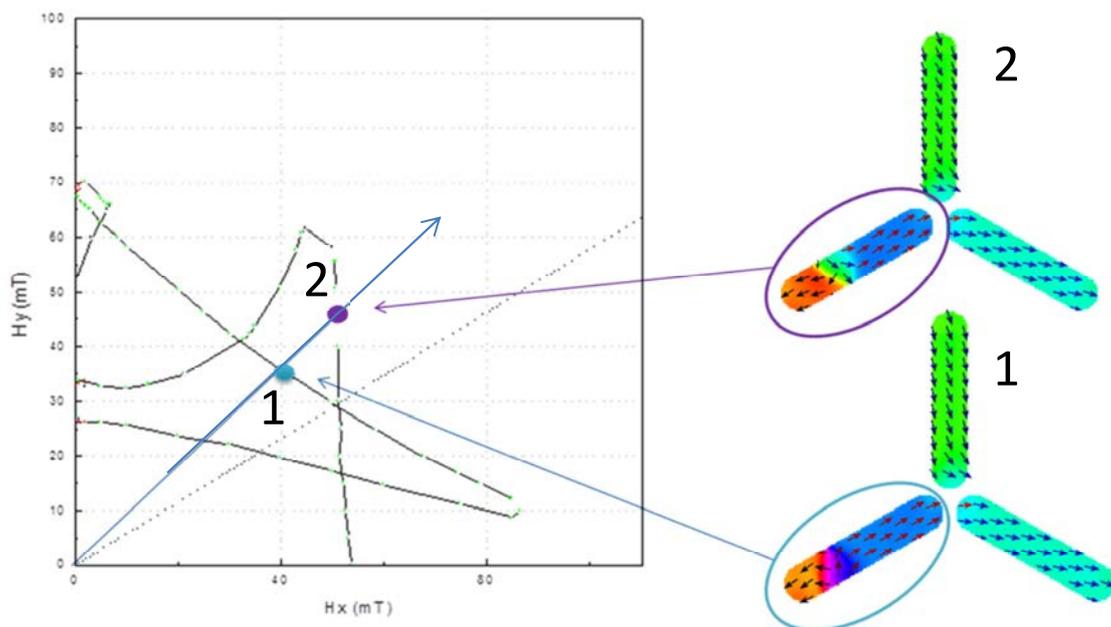


Figure II.23 Champs de renversement du brin 3 en fonction de l'orientation de l'aimantation de bout de brin.

Enfin, en partant de cette zone de bistabilité, en augmentant le champ appliqué (flèche bleue), deux points de croisement existent avec l'astroïde (figure II.23). Dans les deux cas, le vertex passe d'une configuration λ_{180° à une configuration λ_{120° en renversant l'aimantation du brin 3 : bout de brin « up » et propageant une paroi « up » en ❶ et bout de brin « down » et propageant une paroi « down » en ❷.

2.3. Mécanique de renversement des configurations permises à partir de l'état saturé λ_{180°

Dans un paragraphe précédent, nous avons montré les configurations qu'il était possible d'obtenir à partir d'un état λ_{180° .

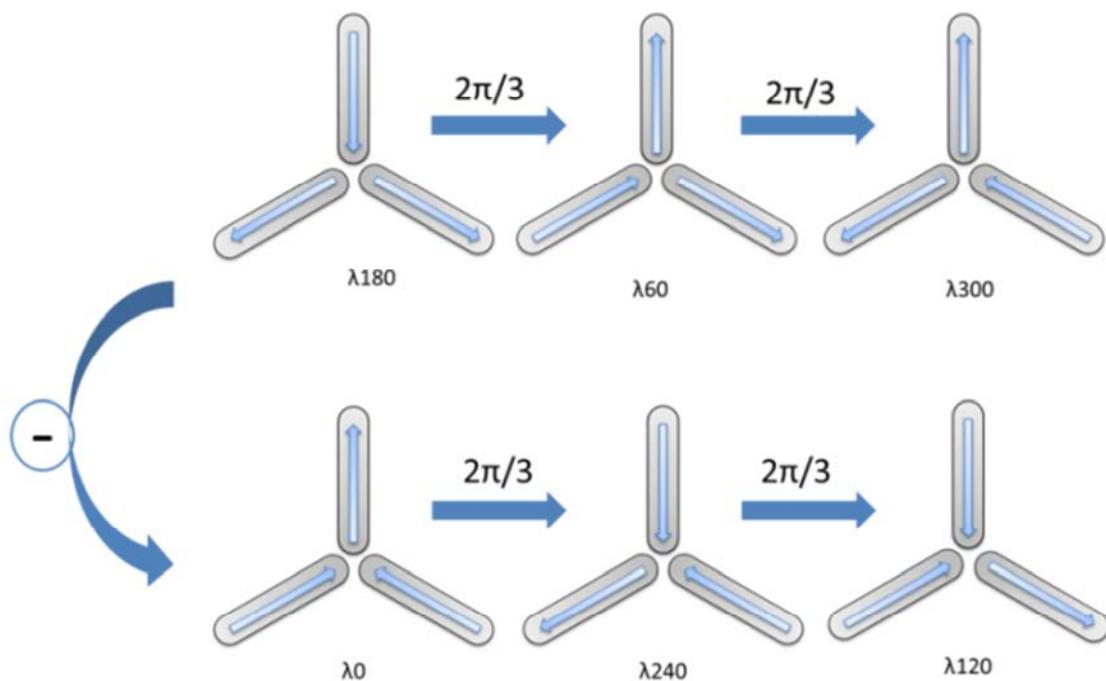


Figure II.24 Schéma illustrant les symétries à appliquer à partir de λ_{180° pour trouver les astroïdes des autres états permis.

Après avoir déterminé l'astroïde du vertex pour la configuration λ_{180° , il suffit d'appliquer une rotation de 120° pour obtenir tous les autres champs de renversement pour les configurations 1in/2out. Pour obtenir les astroïdes des autres états permis 2in/1out à partir de la configuration λ_{180° , il suffit d'inverser les aimantations de chaque brin (signe négatif sur les composantes de l'aimantation) pour avoir l'astroïde λ_0 , puis une rotation de 120° comme illustré sur la figure II.24.

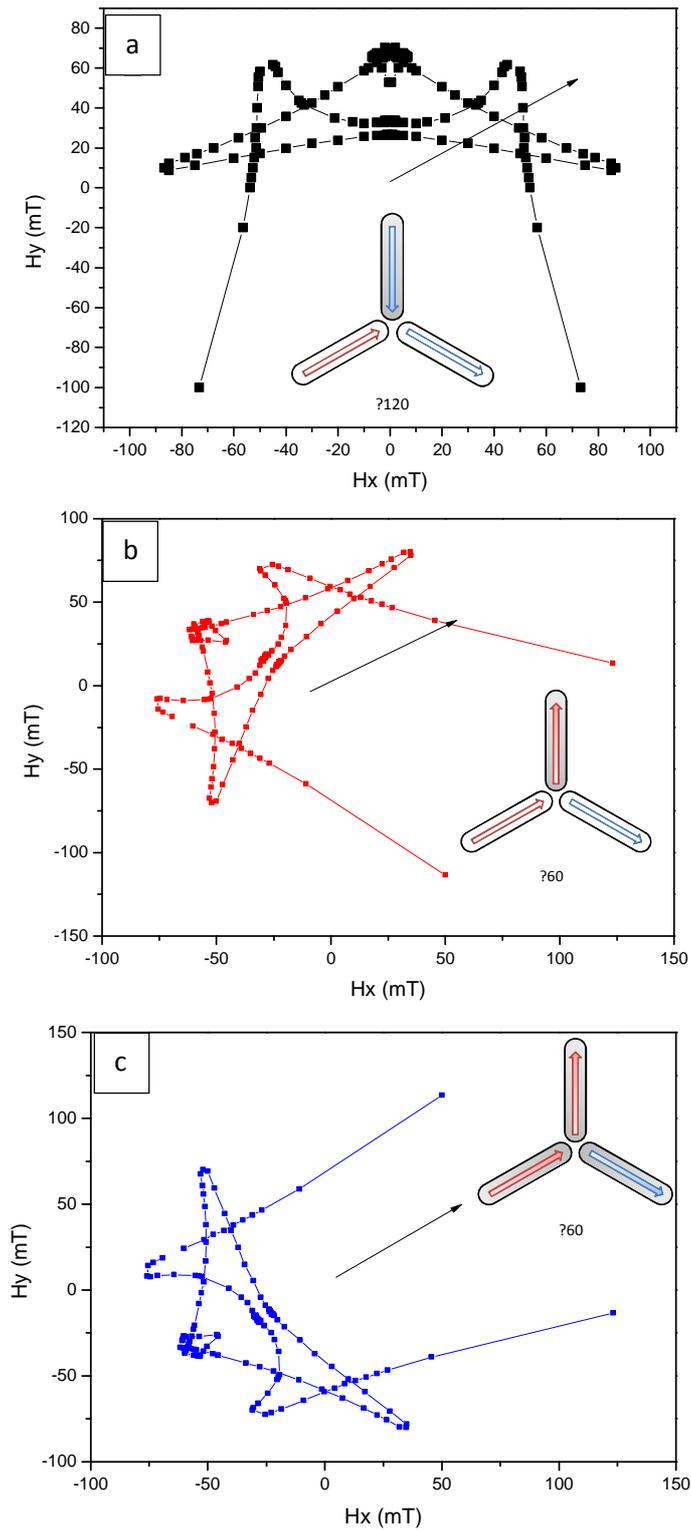


Figure II.25 Mécanisme de renversement d'un vertex en appliquant le champ toujours dans la même direction. a) astroïde du vertex saturé λ_{180° , la flèche montre la transition vers la configuration d'équilibre λ_{120° . b) astroïde de la configuration λ_{120° , la flèche montre la transition vers la configuration d'équilibre λ_{60° . c) astroïde de la configuration λ_{60° , la flèche montre que la configuration n'est pas modifiée.

Partons de la configuration λ_{180° et appliquons un champ magnétique dans une direction arbitraire, par exemple $H_x=50\text{mT}$ et $H_y=40\text{mT}$. Cette direction est représentée par la flèche sur la figure II.25a. Dans ce cas, le brin 3 renverse son aimantation par la propagation d'une paroi de bout de brin orientée « down ». La configuration stabilisée est λ_{120° et son astroïde est représentée sur la figure II.25b.

On constate sur cette astroïde que le brin vertical renverse son aimantation pour un champ $H_x=48$ et $H_y=38$ mT qui est un champ plus faible que le champ de renversement du brin 3 sur l'astroïde de la figure II.25a ($H_x=50\text{mT}$ et $H_y=40\text{mT}$). Ceci montre que le brin 3 entraîne le renversement du brin 1 par avalanche. La configuration magnétique du vertex la plus stable est λ_{60° , car l'astroïde de celle-ci montre que si l'on continue d'appliquer le champ dans la direction de départ il n'y a plus de croisement avec une des branches de l'astroïde donc plus de renversement d'aimantation et le vertex est saturé (Cf. figure II.25.c).

3. Astroïde de l'état interdit

Dans cette astroïde chaque couleur représente le renversement d'un brin, les sections de courbes noires représentent les champs de renversement du brin vertical 1, en vert ceux du brin gauche 3 et en rouge ceux du brin droit 2 (figure II.27a).

A champ nul, dans l'état interdit, les aimantations de bouts de brins ferment le flux en présentant une chiralité qui peut être dans le sens des aiguilles d'une montre (CW pour ClockWise) ou dans le sens inverse (CCW pour Counter ClockWise) (figure II.26). Comme dans l'astroïde de l'état permis, les champs de renversement du système diffèrent en fonction de l'aimantation des bouts de brins. Ainsi, le champ d'annihilation diffère en fonction de la chiralité de l'état interdit. Seules dans les zones représentées en bleu sur la figure II.27b, le système perd sa chiralité par le renversement de l'extrémité d'un élément et il n'existe alors qu'un seul champ de renversement possible.

Les zones numérotées de 1 à 3 représentent les zones de bistabilité des bouts de brins c'est-à-dire « up » et « down » pour les brins droit 2 et gauche 3, et droite et gauche pour le brin vertical 1. Prenons l'exemple de la zone 3, celle-ci représente les champs de renversement du brin gauche 3 en fonction de l'orientation de l'aimantation de son extrémité.

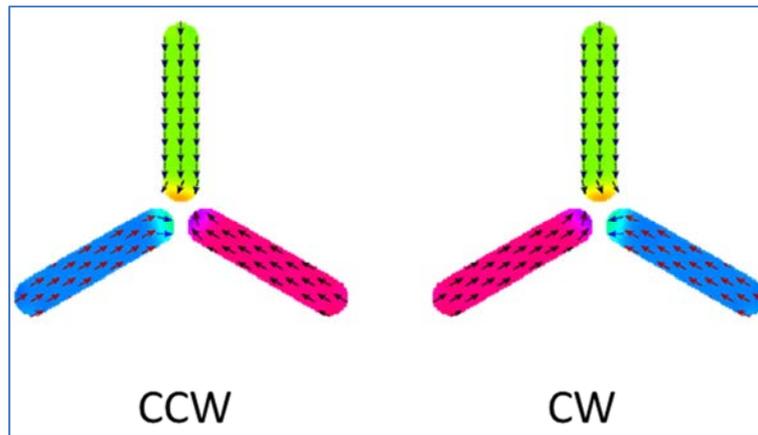


Figure II.26 Simulations micromagnétiques de l'état interdit présentant les deux chiralités : à gauche dans le sens antihoraire, à droite dans le sens horaire.

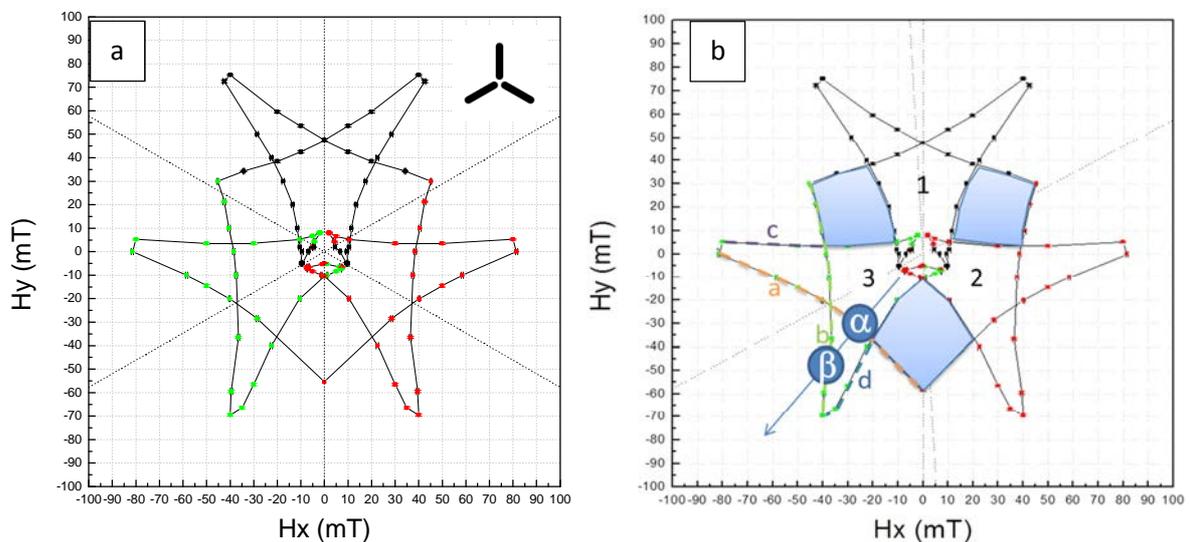


Figure II.27 a) astroïde de l'état interdit, les couleurs noir, vert et rouge représentent respectivement les champs de renversement pour le brin vertical 1, gauche 3 et droit 2 ; b) zones de bistabilité des bouts de brins 1, 2 et 3 repérées par les chiffres respectifs 1, 2 et 3; Les lettres a, b, c et d localisent les frontières pour lesquelles différents renversements d'aimantation sont possibles pour le brin 3 en fonction de la configuration de son bout au niveau du vertex.

3.1. Annihilation de l'état interdit avec une chiralité CW

Si la chiralité du vertex est CW alors l'extrémité du brin gauche est orienté « up », il y a alors deux possibilités : le brin se renverse par une paroi « up », dans ce cas on sort de l'astroïde par la section (b) ; si l'on applique le champ de façon à sortir de l'astroïde via la section (d) alors l'extrémité de l'élément commute de « up » à « down » et le renversement s'opère par la propagation d'une paroi « down ».

3.2. Annihilation de l'état interdit avec une chiralité CCW

En revanche, si la configuration de départ est stabilisée CCW alors l'extrémité du brin gauche est orientée « down » et dans ce cas l'élément renverse son aimantation par la section d'astroïde (a) ; la section (c) de l'astroïde correspond à une commutation de bout de brin « down » à « up » puis à un renversement de l'aimantation du brin, dans la foulée, par une paroi orientée « up ».

Par une rotation de 120° , des branches d'astroïde vertes, nous pouvons retrouver les champs de commutation et de renversement du brin vertical (dont la section d'astroïde est représentée en noir sur la figure II.27a) ainsi que ceux du brin droit (dont la section d'astroïde est représentée en rouge sur la figure II.27a). Ainsi si on applique un champ magnétique dans une direction donnée, l'annihilation de l'état interdit ne se fera pas à la même valeur de champ si sa chiralité est CW ou CCW à champ nul. Pour le brin 3, en augmentant le champ appliqué selon la flèche bleue de la figure III.27b, deux points de croisement existent avec l'astroïde : (α) renversement du brin 3 avec l'extrémité du brin 3 est orientée « down » ; (β) renversement du brin 3 avec l'extrémité du brin 3 est orientée « up ». Ce type d'histoire en champ permet de mettre en évidence la chiralité d'un état interdit, s'il existe. Il suffit de voir à l'échelle d'un réseau contenant plusieurs états interdits si deux champs d'annihilation existent...ceci permettrait de montrer que des états chiraux existent.

3.3. Existence des configurations de bout de brin ?

Cette étude montre que dans la géométrie kagomé, le renversement n'est pas simple. Ici nous nous sommes limités à l'étude d'un nœud de la maille kagomé. Cette étude a révélé dans ces systèmes mésoscopiques l'existence de degrés de libertés supplémentaires, les configurations de bout de brin. De plus, nous avons montré que le renversement de l'aimantation du système dépend fortement de la configuration des bouts de brin. C'est pourquoi il est nécessaire de faire une étude du couplage des éléments entre eux et d'étudier l'apparition de la chiralité en fonction de la distance entre les éléments.

D'un point de vue expérimental, ces configurations de bout de brin n'ont pas été rapportées à ce jour. Un début de preuve expérimentale peut être deviné dans les observations de microscopie Lorentz sur les glaces carrées [Pha 11]. Dans le cadre de cette thèse, nous avons essayé de montrer que pour les états interdits, deux distributions de champ de retournement existent. Les résultats sont donnés dans le chapitre 4 de ce travail de thèse.

Bibliographie chapitre micromagnétisme

- [BRO63] W. F. Brown, Jr. : Micromagnetics, Interscience Publishers, J. Wiley and Sons, New York (1963).
- [WEI07] P. Weiss, L'hypothèse du champ moléculaire et la propriété ferromagnétique, J. Phys. Rad., 4, 469, 1907.
- [KIT72] Kittel : Introduction à la physique de l'état solide. Dunod, Paris, (1972).
- [ASH76] N. W. Ashcroft et N. D. Mermin : Physique des solides. EDP Sciences, Les Ulis, (2002).
- [TRE00] E. du Trémolet de Lacheisserie Magnétisme. Editions EDP Sciences (2000)
- [KIT49] C. Kittel, Physical theory of Ferromagnetic Domains, Rev. Mod. Phys. 21, 541 (1949).
- [BRU93] P. Bruno, Physical origins and theoretical models of magnetic anisotropy, in 'Magnetismus von Festkörpern und grenzflächen', edited by P. H. Dederichs, P. Grünberg and W. Zinn, 24. IFF-Ferienkurs, pp. 24.1-24.28, Forschungszentrum Jülich (1993)
- [STO48] E. C. Stoner and E. P. Wohlfarth, Phil. Trans. R. Soc. A **240**, 599 (1948).
- [WER06] W. Wernsdorfer, Classical and quantum magnetization reversal studied in nanometer sized particles and clusters, Advances in Chemical Physics, Handbook of Advanced Magnetic Materials, pp 77-127 (2006). Springer ISBN 978-1-4020-7983-2.
- [FRE87] D. R. Fredkin, and T. R. Koehler, "Numerical Micromagnetics by the Finite Element Method," IEEE Transactions on Magnetics MAG-23, 3385 (1987)
- [BAG 91] A. BAGNÉRÉS-VIALIX, P. BARAS, J. B. ALBERTINI, 2D and 3D calculations of micromagnetic wall structures using finite elements», *IEEE Trans. on Magn.* 27,5, (1991)
- [SCH99] T. Schrefl and J. Fidler, "Modelling of exchange-spring permanent magnets," Journal of Magnetism and Magnetic Materials, vol. 177–181, 1999
- [SCH88] M. E. Schabes and H. N. Bertram. Magnetization processes in ferromagnetic cubes. Journal of Applied Physics, 1 :1347–1357, Août 1988.
- [NAK89] R. Nakatani and T. Kobayashi Changes in soft magnetic properties of Fe multilayered films due to lattice mismatches between Fe and intermediate layers J. Appl. Phys. **66**, 4338 (1989).

- [SCH91] Scheinfein MR, Unguris J, Blue JL, **Coakley KJ**, Pierce DT, Celotta RJ, Ryan PJ. Micromagnetics of domain walls at surfaces. *Phys Rev B Condens Matter*. (1991)
- [BER93] D. V. Berkov, K. Ramstock, A. Hubert, Solving micromagnetic problems - towards on optimal numerical, *Phys. Stat. Sol. a* **137**, 297 (1993).
- [KRI08] E. Kritsikis, J.-C. Toussaint, O. Fruchart, H. Szabolics and L. D. Buda-Prejbeanu, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 132508 (2008).
- [SZA08] H. Szabolics, J.-C. Toussaint, L. D. Buda-Prejbeanu, F. Alouges, E. Kritsikis and O. Fruchart, *IEEE Trans. Magn.* **44**, 3153 (2008).
- [MAN88] R.E. Uber and M. Mansuripur, "Magneto-optical measurement of anisotropy energy constant(s) for amorphous RE-TM alloys" *IEEE Trans. Mag.* **24**, 2461 (1988).
- [OOMMF] NIST, Oriented object micromagnetic framework, <http://math.nist.gov/oommf>.
- [RIA13] H. Riahi, F Montaigne, N Rougemaille, B Canals, D Lacour and M Hehn, Energy levels of interacting nano-magnets : Reducing discretization error when using finite difference methods *J. of Physics : Condensed Matter* **25**, 296001 (2013); Erratum *J. of Physics : Condensed Matter* **25**, 339602 (2013)
- [ROU13] N. Rougemaille, F. Montaigne, B. Canals, M. Hehn, H. Riahi, D. Lacour, and J.-C. Toussaint, Chiral nature of magnetic monopoles in artificial spin ice, *New Journal of Physics* **15**, 035026 (2013)
- [PHA11] C. Phatak, A. K. Petford-Long, O. Heinonen, M. Tanase and M. De Graef, Nanoscale structure of the magnetic induction at monopole defects in artificial spin-ice lattices, *Phys. Rev. B* **83**, 174431 (2011)

Chapitre III. Techniques et méthodes : élaboration et caractérisation des échantillons

Dans ce chapitre, les techniques expérimentales qui ont été mises en œuvre pour la réalisation des réseaux kagomé ainsi que leur étude topographique et magnétique sont exposées. Il est également exposé d'une part la méthode d'analyse des configurations et d'autre part les deux techniques expérimentales utilisées pour la détermination des configurations.

I- Méthodes d'élaboration des échantillons

Dans ce premier paragraphe, nous détaillons les méthodes utilisées pour la réalisation des réseaux kagomé. De manière tout à fait générale, il existe plusieurs méthodes de fabrication de réseaux d'éléments nanométriques à haute densité. Dans le cadre de cette thèse, nous avons choisi l'approche top-down en partant de films minces réalisés par pulvérisation cathodique, en réalisant le réseau de nanoéléments en combinant une étape de lithographie électronique, une étape de lift off d'aluminium pour la réalisation d'un masque de gravure et une étape de gravure ionique sèche pour transférer le motif d'aluminium dans la couche active magnétique. L'ensemble de ces notions seront décrites au cours de ce paragraphe.

Cette méthode, bien que comportant plusieurs étapes technologiques, permet notamment

- De ne pas limiter les conditions de croissance du matériau : ce dernier peut être déposé par n'importe quelle méthode de croissance, à n'importe quelle température en évitant la gravure, le fluage ou le durcissement de la résine utilisée en lithographie.
- De limiter les effets de collerettes ou bien, pire, l'impossibilité de dissoudre la résine dans le procédé lift off lors de l'utilisation de méthodes de dépôt non directionnelles

1. Le dépôt de la couche magnétique : la pulvérisation cathodique

Cette technique consiste à déposer sur un substrat des atomes ou grappe d'atomes arrachés à une cible à l'aide d'un plasma sous vide (figure III.1). Ce plasma est créé par une décharge obtenue en polarisant négativement la cible du matériau à déposer qui est placée dans une atmosphère gazeuse contrôlée composée d'atomes de gaz rare d'Ar. Pour initier le plasma, des électrons émis par émission thermo ionique de filaments de tungstène permettent l'ionisation d'un certain nombre d'atome d'Ar. Chaque collision entraîne l'apparition d'un ion positif Ar^+ et d'un électron supplémentaire qui à son tour va provoquer des ionisations. Un effet de cascade s'opère. Les ions positifs sont attirés par la cible polarisée négativement entraînant un bombardement de la cible du matériau à déposer. L'énergie de ces ions doit être supérieure à une valeur critique appelée seuil de pulvérisation sans quoi, aucune émission d'atome n'est possible.

Deux modes de polarisation sont possibles et leur utilisation dépend de la nature du matériau à pulvériser. La polarisation en tension continue, dite DC, permet de pulvériser uniquement les matériaux conducteurs. Dans le cas de cibles non métalliques, une accumulation de charges positives peut apparaître à la surface de la cible ce qui diminue au fur et à mesure le taux de pulvérisation de la cible. On utilise alors la polarisation en mode radiofréquence ou RF. L'alternance de la polarisation sur la cible permet l'évacuation des charges positives accumulées sur la cible. Afin d'augmenter la vitesse de dépôt, les ions positifs du plasma sont confinés au voisinage de la cible à l'aide d'un champ magnétique créé par un aimant situé sous la cathode appelé magnétron.

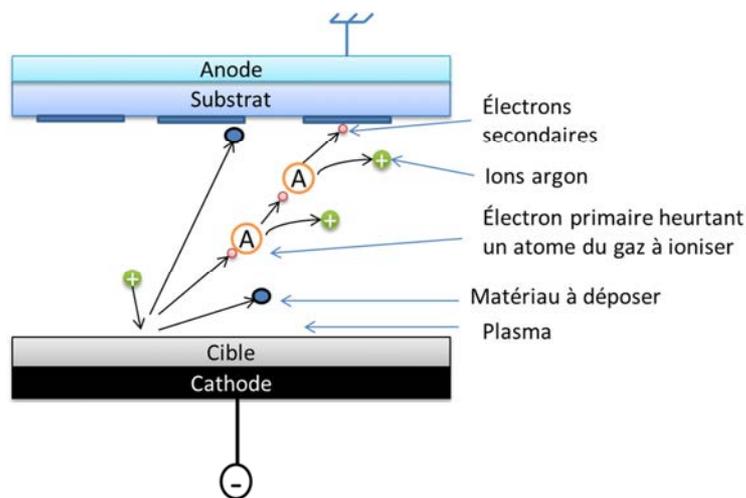


Figure III.1 Schéma du principe de fonctionnement de la pulvérisation cathodique

Dans le cadre de cette thèse, les multicouches sont déposées par pulvérisation cathodique sur substrat de silicium dopé. Ce substrat a été choisi car il permet notamment l'évacuation

des charges lors de l'imagerie XPEEM. Le substrat est recouvert de 5nm de tantale, Ta, servant d'une part de couche d'accroche au matériau magnétique et permet d'autre part de limiter la diffusion du Si dans la multicouche. Le matériau magnétique est ensuite déposé avec une épaisseur de 10nm. Enfin, la couche magnétique est protégée par 2,5 nm de ruthénium, Ru. L'épaisseur de cette couche de protection a été optimisée avant le démarrage de la thèse, suffisamment fine pour conserver un contraste en microscopie XPEEM sans avoir à décaper la surface et suffisamment épaisse pour prévenir l'oxydation de l'échantillon tout au long de sa vie et notamment durant les étapes de micro et nanotechnologies. Ce dernier est plus résistant aux divers développeurs utilisés dans les différentes procédures technologiques. Ainsi, les multicouches auront pour structure Si/Ta(5nm)/FM(10nm)/Ru(2.5nm) (figure III.2).

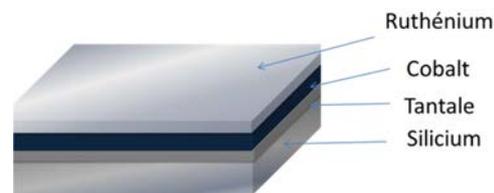


Figure III.2 Illustration des couches déposées par pulvérisation cathodique

2. Les matériaux magnétiques utilisés pour la réalisation des nanostructures

Même si l'accent a été mis sur l'étude de nanostructures à base de cobalt (Co), d'autres matériaux ont également été synthétisés.

Le cobalt

Les couches Ta(5nm)/Co(10nm)/Capping sont étudiées depuis plus de 15 ans au laboratoire [MAL04]. Il a été largement démontré que, pour les épaisseurs choisies, le Ta est amorphe et le Co possède une texture fcc(111) avec des tailles de grains typiques de 10nm. Ce matériau possède donc une fluctuation locale de l'anisotropie dans le plan de la couche. Du point de vue des caractéristiques magnétiques, une aimantation à saturation de 1400 emu/cm^3 et un champ d'anisotropie H_k de 27 Oe ont été mesurés. D'un point de vue magnétique, le cycle d'aimantation est carré avec une rémanence 1 dans une direction donnée par la géométrie du dépôt.

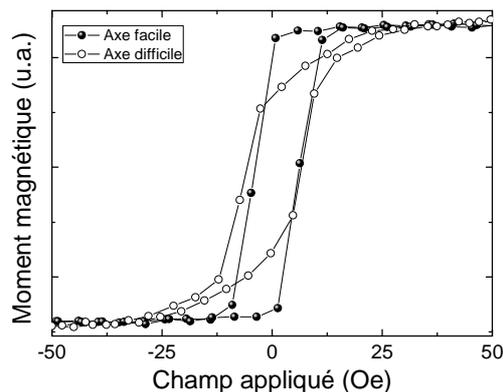


Figure III.3 Cycle d'aimantation mesuré sur une couche de Co selon son axe facile et difficile

Le cobalt – fer - bore

De manière plus récente, des couches Ta(5nm)/Co₄₀Fe₄₀B₂₀(10nm)/Capping ont été étudiées pour la réalisation de jonctions tunnel magnétiques à base de MgO réalisées en pulvérisation cathodique [Ber10]. Le dépôt des couches de l'alliage CoFeB est réalisé à partir d'une cible commerciale, de composition Co₄₀%Fe₄₀%B₂₀% en pourcentages atomiques. Le pourcentage de bore est choisi, supérieur à 10 %, afin que la couche de CoFeB déposée soit amorphe. Avec cette composition, le matériau ne possède donc pas de cristallite et donc de dispersion de champs d'anisotropie locaux. Du point de vue des caractéristiques magnétiques, une aimantation à saturation de 1000 emu/cm³ et un champ d'anisotropie H_k de 24 Oe ont été mesurés. D'un point de vue magnétique, le cycle d'aimantation est carré avec une rémanence 1.

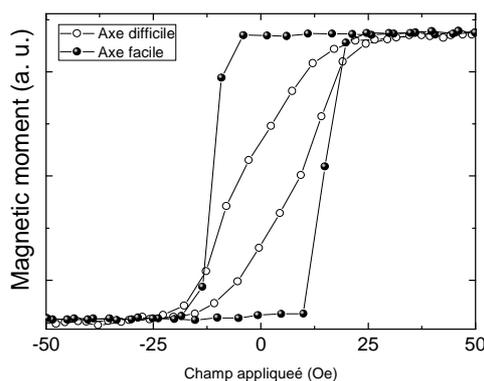


Figure III.4 Cycle d'aimantation mesuré sur une couche de CoFeB selon son axe facile et difficile

Le cobalt – gadolinium

Afin de pouvoir tester des désaimantations thermiques, nous avons également synthétisé un matériau dont la température de Curie est basse, typiquement inférieure à 200°C. Pour cela, des couches Ta(5nm)/Co_xGd_{1-x}(10nm)/Capping ont été étudiées. Cet alliage d'une terre rare

(Gd) et d'un métal de transition (Co) constituent un composé ferrimagnétique dont l'aimantation totale, l'anisotropie, l'amortissement etc... peuvent être modifiés en fonction de la concentration x sur de très larges gammes. Les deux sous réseaux de Co et de Gd sont couplés antiferromagnétiquement et ce couplage résulte de l'hybridation des porteurs 5d de la terre rare (lourde) avec les moments 3d majoritaires du métal de transition. Pour chaque composition, deux températures caractéristiques sont mises en évidence : la température de Curie, T_c , au-delà de laquelle l'aimantation est nulle et la température de compensation magnétique, T_{comp} , pour laquelle les moments magnétiques totaux du Co et du Gd se compensent. Plus la concentration x est petite, plus T_{comp} est grande et T_c est petite. Au-delà de $x=0.685$, T_{comp} n'existe plus.

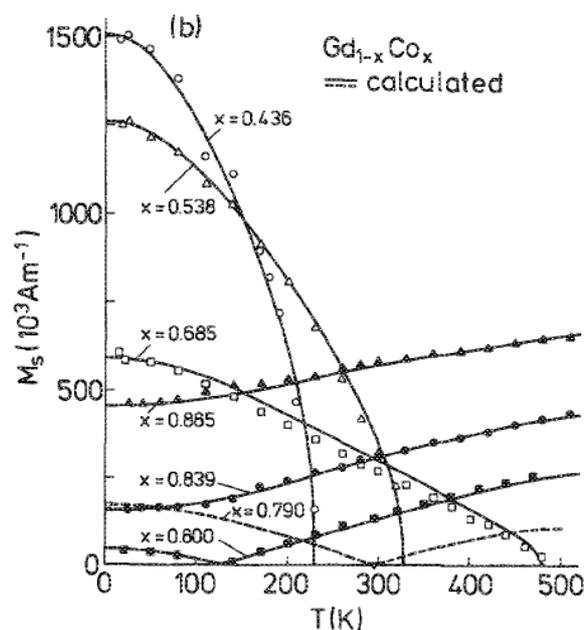


Figure III.5 Variation de l'aimantation avec la température pour l'alliage Co_xGd_{1-x} en fonction de x [HAN89]

Le dépôt des couches de l'alliage Co_xGd_{1-x} est réalisé à partir de la co-pulvérisation d'une cible de Co et d'une cible de Gd en géométrie confocale dans un bâti de pulvérisation ultravide. Le contrôle de x est fait en modifiant les puissances RF des alimentations des deux cibles. En référence au travail de Hansen et al. [HAN89], des concentrations autour de 0.7 ont été étudiées.

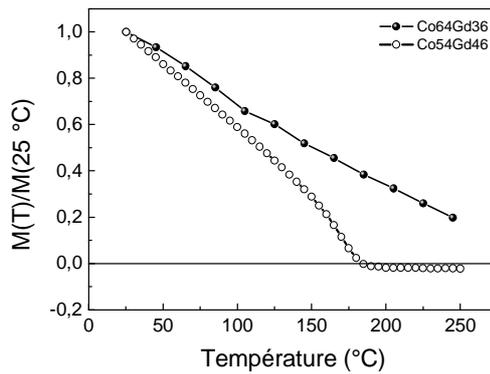


Figure III.6 Variation de l'aimantation avec la température pour des concentrations de CoGd différentes

3. La nano-structuration des réseaux

3.1. Marques d'alignement et repérage des réseaux

Avant de réaliser la lithographie électronique et la définition des réseaux, des marques d'alignement sont réalisées par photolithographie. Ces marques ont différentes utilités

- permettre les réglages de la mise au point du microscope électronique à balayage (MEB) pour les lithographies.
- permettre un repérage des réseaux avec un nombre à 2 chiffres (un chiffre pour la ligne, un chiffre pour la colonne).
- faciliter une découpe des échantillons en carré de 1 cm de cotés (dimensions maximales pour le microscope XPEEM). Les groupes de marques d'alignement sont en effet espacés de 5 mm dans la direction X et Y.

Les différentes étapes aboutissant au transfert de motif des marques d'alignement sont illustrées sur la figure III.8. L'échantillon est d'abord recouvert par une couche de résine dont la surface est durcie en la plongeant dans un solvant aromatique tel que le chlorobenzène (2). La résine est ensuite insolée à travers un masque, par des rayons UV (3). Les parties de résine insolée deviendront plus solubles dans la solution développeur que les parties non insolées. La partie durcie en surface quant à elle est moins soluble dans le développeur que les parties non insolées et non durcies. Ainsi, après développement de la résine, un profil de la résine en forme de « casquette » (4) est obtenu. Dans l'étape suivante, une couche de Ta/Pt est déposée par pulvérisation cathodique. Le profil casquette favorise la discontinuité de cette couche (5). Enfin, la résine est retirée à l'acétone afin de révéler le motif (6). Cette dernière étape s'appelle le *lift off*.

A la fin de ce procédé, il ne reste sur la couche magnétique que les croix d'alignement et les chiffres. Ces derniers sont constitués de Ta/Pt : Ta pour permettre une bonne accroche sur la surface de la couche magnétique ; Pt afin d'obtenir le plus grand contraste en microscopie électronique pour le repérage des motifs et des croix sous la couche de résine pour la lithographie électronique.

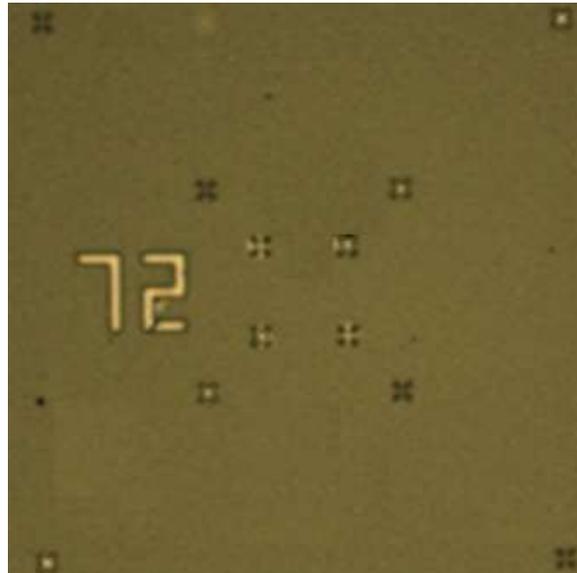


Figure III.7 Photo des chiffres et croix d'alignement

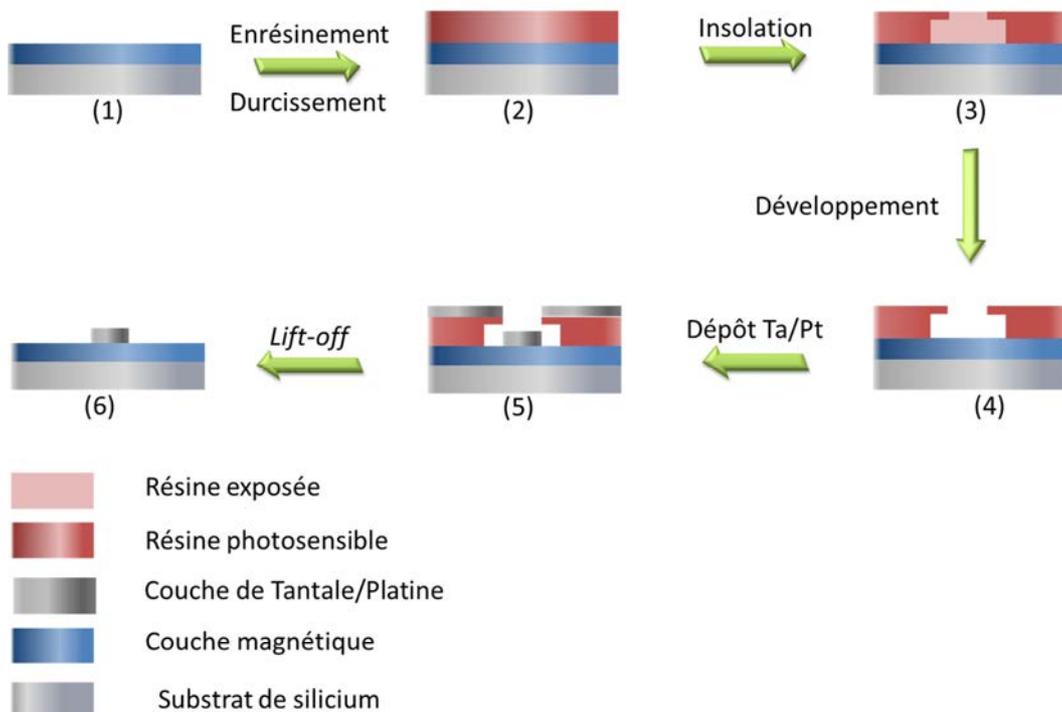


Figure III.8 Schéma illustrant le procédé de définition des marques d'alignement

3.2. Principe de la lithographie électronique

La lithographie électronique est une technique qui permet de réaliser des motifs haute résolution à partir d'un film de résine photosensible [BRI08]. Par rapport à la photolithographie, celle-ci permet une plus haute résolution spatiale allant jusqu'au nanomètre. Cette différence tient dans la longueur d'onde du rayonnement utilisé mais aussi au fait qu'aucun masque n'est utilisé. En effet, en lithographie électronique, un faisceau électronique adressé par un logiciel permet de reproduire dans la résine le motif choisi par l'opérateur. Le prix à payer pour cette haute résolution est la lenteur de la technique : contrairement à la photolithographie où les différentes zones sont insolées simultanément, ici le faisceau d'électrons dessine progressivement le motif à transférer. Dans la pratique, la résolution n'est pas déterminée seulement par la taille du spot du faisceau mais aussi et surtout par l'interaction électron-matière dans la résine et le substrat dont il faut tenir compte notamment lorsque les motifs sont très proches [BRI08].

L'exposition de la résine au faisceau d'électrons provoque des modifications chimiques de celle-ci. Cette exposition donne lieu à des différences de solubilité ou de vitesse d'attaque chimique de la résine entre zones exposées et non-exposées. Le motif dessiné lors de l'exposition pourra donc être révélé par différence de solubilité tout comme dans la lithographie optique.

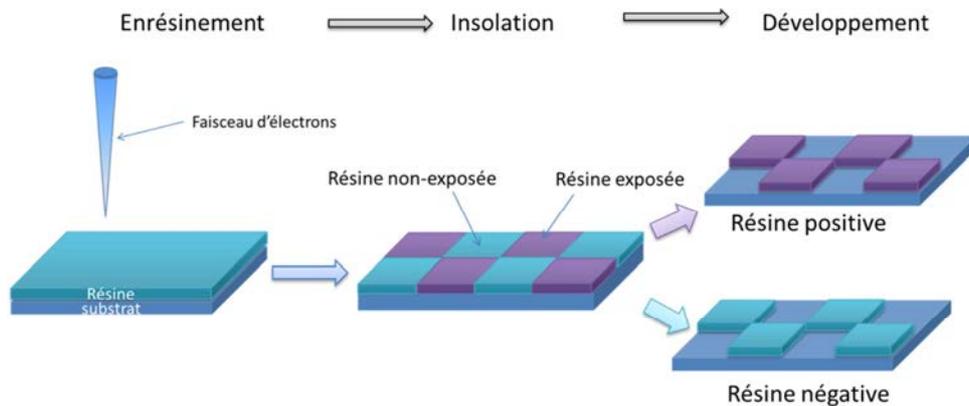


Figure III.9 Schéma représentant la lithographie électronique. Un faisceau d'électrons est utilisé pour insoler la résine.

En lithographie électronique, la dose est définie comme étant la quantité de charges déposées sur la résine. Ce facteur est défini au début de la lithographie et dépend essentiellement de la résine, de la taille et l'environnement du motif. Il est possible de définir trois types de dose : surfacique, linéique et ponctuelle. Plus le motif est fin et plus il sera judicieux d'utiliser une dose linéique plutôt que surfacique. Dans notre cas, avec des objets de taille latérale égale à 100nm, nous avons choisi d'utiliser les doses linéiques.

La résine utilisée est une bicouche PMMA/MMA dont la couche superficielle est plus dure que la couche sous-jacente. Cette méthode, comme en photolithographie, confère à la résine un profil en casquette après développement. Une fois les réseaux dessinés par lithographie électronique dans la résine, une couche d'aluminium servant de masque à la gravure est déposée par évaporation thermique.

3.3. Masque d'aluminium obtenu par évaporation thermique

La technique d'évaporation thermique consiste à chauffer par effet Joule un matériau. Ce dernier s'évapore et des atomes du matériau vont se condenser sur le substrat. Pour cela, le matériau à déposer est placé dans un creuset en tungstène dans lequel un courant passe afin d'obtenir le chauffage. Cette technique est applicable notamment pour le dépôt d'aluminium car la température d'évaporation de ce métal est inférieure à la température de fusion du creuset en tungstène. L'épaisseur nominale de la couche d'aluminium est de 100nm.

Le profil casquette de la bicouche PMMA/MMA favorise la discontinuité de la couche d'aluminium. Le *lift off* de la résine révèle les motifs. A la fin de ce procédé, il ne reste sur la couche magnétique que des motifs d'aluminium qui serviront de masque pour la gravure des motifs dans la couche magnétique.

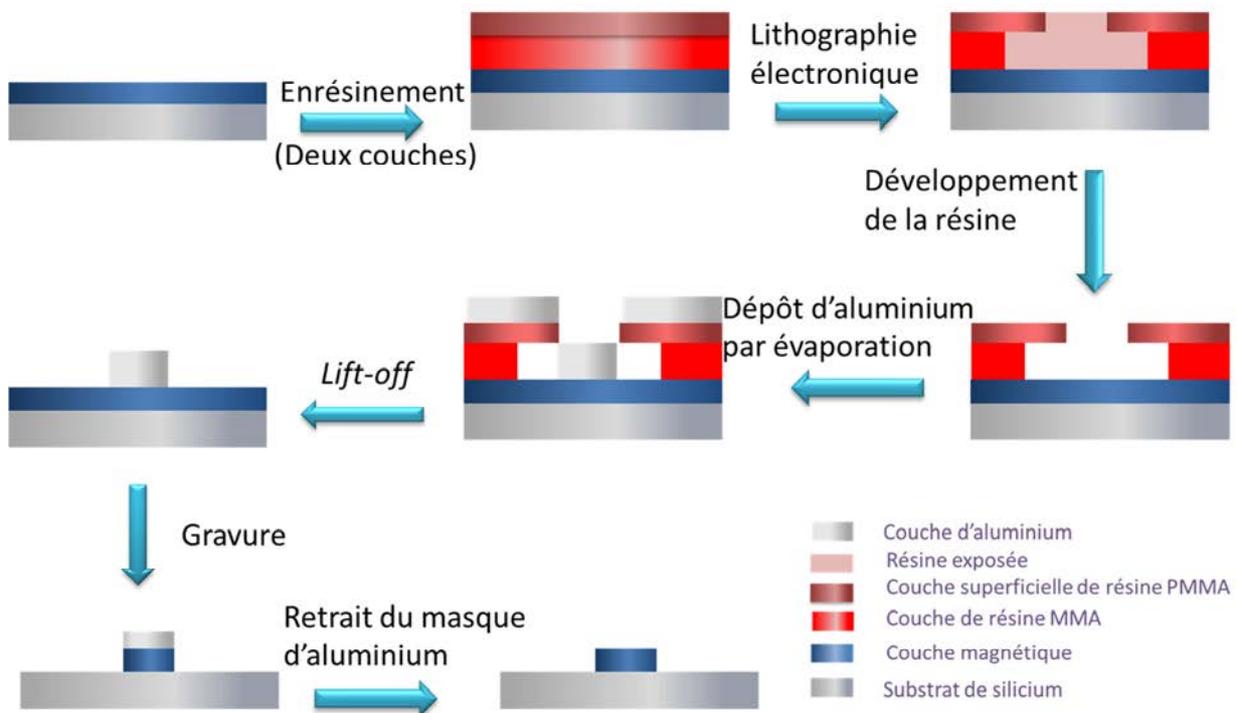


Figure III.10 Réalisation du masque d'aluminium déposé par évaporation thermique. Le masque permet de protéger des zones de la couche magnétique lors de la gravure Ar.

3.4. Définition des réseaux : la gravure sèche IBE pour Ion Beam Etching

Dans son principe, la technique de gravure IBE est identique à celle de la pulvérisation cathodique décrite plus haut : envoyer des atomes de gaz rare pour décapier une surface. Ici, la cible est remplacée par l'échantillon à graver. De plus, le plasma est créé dans un canon possédant une optique d'extraction et de focalisation : le faisceau est directionnel. Cette technique permet une gravure directionnelle, non sélective d'un point de vue chimique et disponible au laboratoire.

L'échantillon ainsi réalisé est soumis au faisceau d'atomes de gaz rare. Toute la surface de l'échantillon est décapée, l'aluminium des zones protégées et la couche magnétique des zones non protégées. Nous avons pris soin à choisir l'épaisseur d'aluminium telle qu'il reste de l'aluminium dans les zones protégées alors que dans les zones non protégées, le matériau magnétique ait disparu. Ainsi, les motifs définis dans l'aluminium sont transférés dans la couche magnétique. A la fin de la gravure, le masque d'aluminium est retiré dans une base MF319. L'aluminium doit être retiré pour obtenir le contraste magnétique en microscopie XPEEM ou MFM.

3.5. Optimisation des doses

Comme nous pouvons le voir sur la figure III.11, les échantillons sont constitués de plusieurs séries de réseaux ou chaque série est obtenue pour une dose linéique donnée. Chaque série comprend six réseaux hexagonaux fermés, six réseaux carrés fermés, six réseaux hexagonaux avec brins pendants ainsi que six réseaux carrés avec brins pendants. Sur l'échantillon imagé, 21 séries sont représentées où la dose augmente d'une série à l'autre. Au-dessus de chaque série figure le temps d'exposition du faisceau.

Les différentes doses avec lesquelles sont réalisés les réseaux de l'échantillon sont calculées en appliquant à la dose nominale un facteur de dose. Pour chaque série, la dose augmente à chaque fois d'un facteur 0,5 par rapport à la dose nominale.

Une caractérisation par microscopie à force atomique post procédé permet d'estimer les dimensions des objets et de détecter des anomalies liées à la gravure (voir détails de la technique plus loin dans le chapitre). Après retrait du masque d'aluminium, on peut constater que la hauteur des éléments est plus importante que l'épaisseur d'origine de la couche magnétique déposée. Cela signifie alors que le substrat de silicium a été gravé au-delà de la couche magnétique. Cela n'a pas d'incidence sur la microscopie XPEEM mais cette sur gravure doit être limitée dans le cas du MFM.

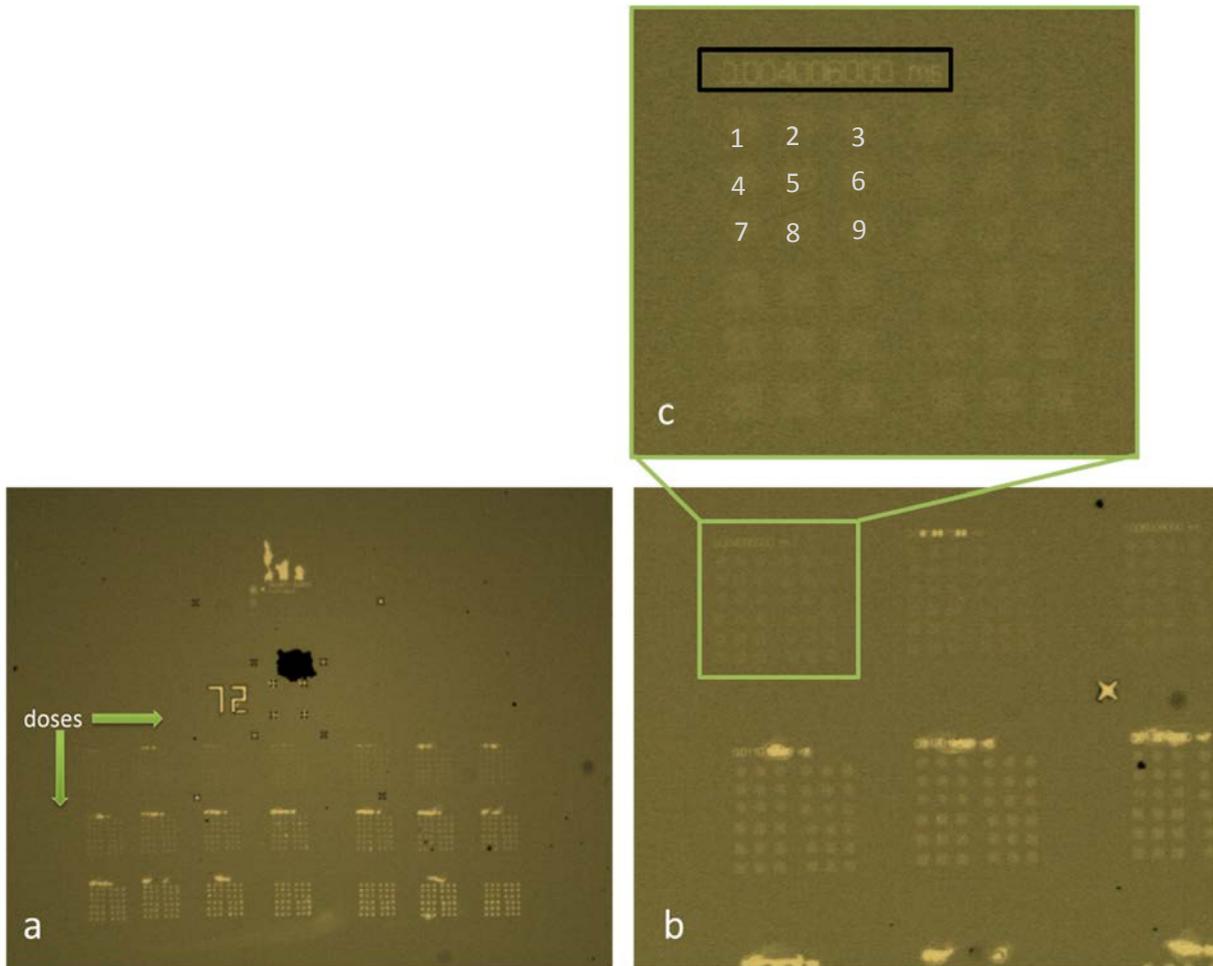


Figure III.11 Images de microscopie optique d'un échantillon avec les différents réseaux pour les différentes doses

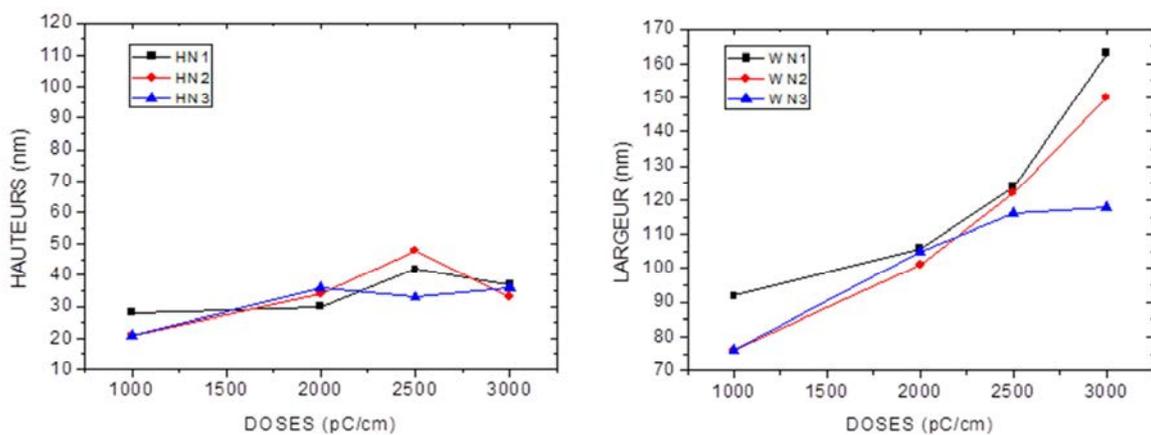


Figure III.12 Hauteurs et largeurs des éléments en fonction des doses appliquées sur la résine.

D'autre part, la largeur (ainsi que la longueur) des éléments constituant le réseau augmente avec la dose. Ceci est important car suivant la dose, les éléments seront connectés, à bonne distance ou bien trop éloignés les uns des autres.

Sur la figure III.13, un réseau correspondant à trois doses différentes est représenté. Sur le réseau à 3000 pC/cm, on voit que certains brins sont connectés. Pour la dose de 2000pC/cm, les brins ne sont pas connectés et même relativement éloignés. La dose à 2500 pC/cm est bien adaptée car les brins sont toujours très proches sans jamais être connectés.

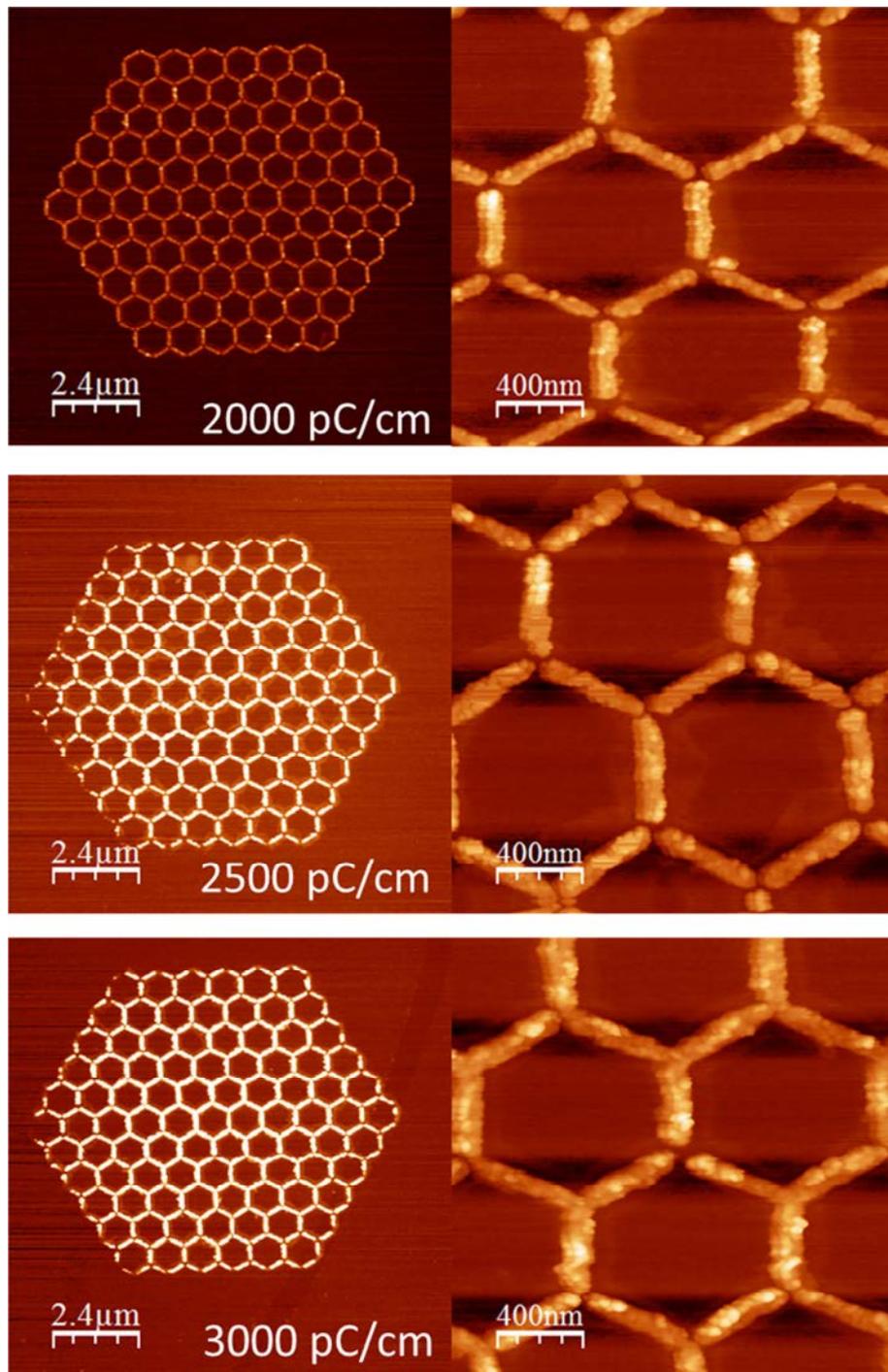


Figure III.13 Comparaison de trois réseaux réalisés avec des doses différentes.

II- Méthodes de caractérisation topographique et magnétique

1. Caractérisation locale topographique et magnétique : microscopie à force atomique (AFM) et magnétique (MFM)

Dans le développement des nanotechnologies, les développements techniques ont joué un rôle prépondérant tant dans les procédés de nanofabrication que dans l'observation. Dans les années 80, le microscope à effet tunnel (STM) a révolutionné le monde de la microscopie, puisqu'au lieu de reconstituer une image à l'aide d'une onde lumineuse ou électronique (microscopie optique ou électronique), l'image est reconstituée en balayant une surface à l'aide d'une pointe. Depuis, d'autres microscopies en champ proche à sonde locale ont été mises au point puisque différentes interactions peuvent exister entre une pointe et une surface. L'intérêt de la microscopie à sonde locale réside dans sa résolution latérale puisqu'elle n'est que d'une dizaine de nanomètre. Idéalement, une pointe est constituée de quelques atomes et permet de sonder une surface localement. De plus, en champ proche, les phénomènes de diffraction n'existent pas.

1.1. Principe de fonctionnement du microscope à force atomique

A l'image d'une canne d'aveugle, le microscope à force atomique (AFM) utilise une pointe montée sur un levier qui en balayant la surface de l'échantillon retrace sa topographie.

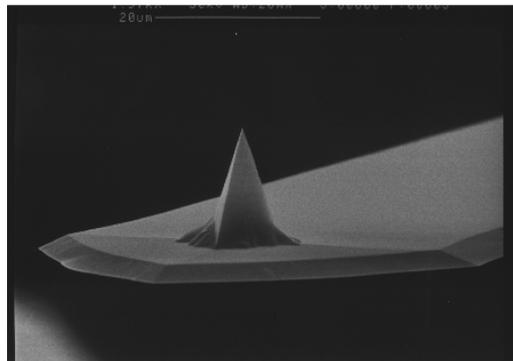


Figure III.14 Image d'un système pointe-micro-levier analogue à celui utilisé lors de nos mesures

Un laser est réfléchi sur la face arrière du levier supportant la pointe et atteint un photo-détecteur constitué de quatre quadrants. La déflexion du levier induite par une modification de la topographie entraîne une modification de la position du laser et donc du signal électrique issu des diodes. Le signal de topographie est ainsi transformé en signal électrique. C'est le mode à hauteur constante.

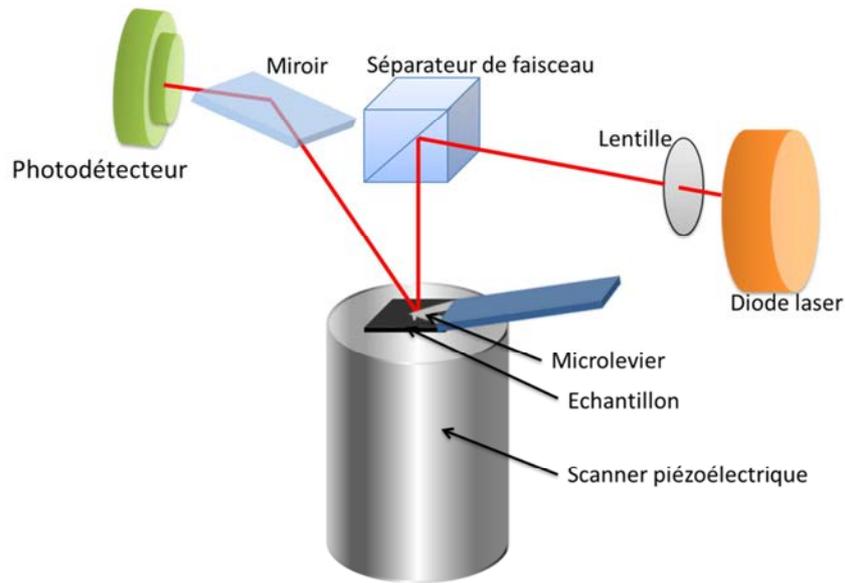


Figure III.15 Principe de fonctionnement du microscope à force atomique

Un autre mode de fonctionnement consiste à conserver la position du laser sur le photodétecteur, et donc du signal électrique issu des diodes, constante. Pour cela, la position du levier est modifiée perpendiculairement à la surface par l'application d'une tension sur un actuateur piézoélectrique. La force de la pointe sur la surface est alors maintenue constante. C'est le mode à force constante, le mode qui a été utilisé dans le cadre de cette thèse. C'est le déplacement de l'actuateur piézoélectrique et donc la tension appliquée sur le matériau piézoélectrique qui donne la topographie de la surface.

1.2. Principe de fonctionnement du mode tapping

Les mesures AFM ont été réalisées en mode tapping c'est un mode dynamique dans lequel le système est excité à sa fréquence de résonance. Dans ce mode, plusieurs quantités peuvent être mesurées comme le décalage de la fréquence de résonance, le déphasage ou encore l'amplitude. En appliquant le principe fondamental de la dynamique au système pointe/levier, et en développant au premier ordre la force agissant sur la pointe on obtient [HEH97]:

$$f_r = f_0 \sqrt{1 - \frac{1}{k} \frac{\partial F_z}{\partial z}}$$

Avec f_0 la fréquence de résonance du levier en l'absence d'interactions et k sa constante de raideur. On peut alors écrire le décalage en fréquence et le déphasage :

$$\frac{\Delta f_r}{f_r} = \frac{1}{2k} \frac{\partial F_z}{\partial z}$$

et

$$\Delta\Phi = \frac{Q}{k} \frac{\partial F_z}{\partial z}$$

Avec Q le facteur de qualité de la résonance du levier et $\Delta\Phi$ est la variation de phase par rapport au signal d'excitation. Une mesure de $\Delta\Phi$ ou Δf_r nous donnera $\frac{\partial F_z}{\partial z}$.

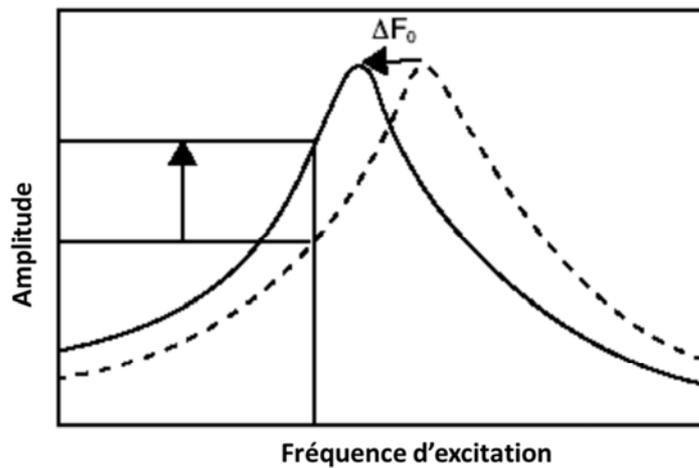


Figure III.16 Variation de l'amplitude à fréquence d'excitation fixée (image issue du manuel d'utilisation)

1.3. Principe de fonctionnement du microscope à force magnétique

La microscopie à force magnétique (MFM pour Magnetic Force Microscopy) est basée sur le principe de la microscopie à force atomique. La pointe est recouverte de quelques dizaines de nm d'un matériau magnétique, ce qui permet de mesurer l'interaction magnétique entre la pointe et la surface en plus des interactions interatomiques.

La figure III.17 montre le principe du MFM, la pointe balayant la surface interagit avec le champ de fuite de la surface. Celui-ci, généré par la structure en domaines magnétiques de l'échantillon, exerce une force sur la pointe qui, elle-même est attachée au micro levier. Les champs de fuite de l'échantillon peuvent avoir plusieurs origines. L'une pouvant être les inhomogénéités spatiales de l'aimantation M en un point ($\rho = \text{div } M \neq 0$) avec ρ la densité volumique de charges magnétiques fictives. La densité de pôles magnétiques à la surface

quant à elle est donnée par $\sigma = M \cdot n \neq 0$, celles-ci ne se manifestent que lorsque l'aimantation n'est pas parallèle à la surface.

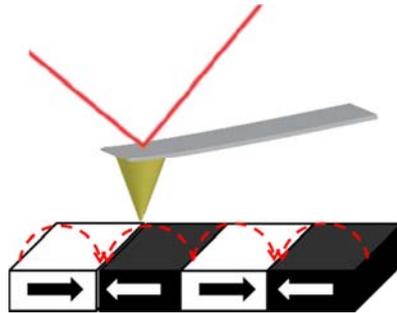


Figure III.17 Schéma du principe de base du microscope à force magnétique

Les forces mesurées par le MFM sont d'ordre magnétostatiques et résultent de l'interaction entre les dipôles magnétiques de la pointe et ceux de la surface de l'échantillon. Cette force s'exprime sous la forme :

$$\vec{F}(r) = -\overrightarrow{\text{grad}}(\vec{m}_1 \cdot \vec{H})$$

Où \vec{m}_1 est le moment magnétique de la pointe et \vec{H} le champ de fuite de l'échantillon.

Si la pointe est aimantée selon z alors on a :

$$\frac{\partial F_z}{\partial z} = \mu_0 m_z \frac{\partial^2 H_z}{\partial z^2}$$

m_z est la composante selon z du moment magnétique de la pointe. La dérivée seconde du champ de fuite de l'échantillon est donc mesurée dans le mode tapping.

1.4. Nécessité du mode 'lift'

L'utilisation de pointes magnétiques complexifie l'interprétation des images puisque nous allons avoir la superposition de l'interaction magnétique et de la topographie. Il nous faut donc trouver le moyen de décoller les forces / gradients de forces d'origine topographique et la force / gradient de force d'origine magnétique.

Supposons l'échantillon constitué d'un matériau indéformable, la force d'interaction entre la pointe et la surface dérive en bonne approximation du potentiel de type Lennard-Jones.

$$V = 4\epsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r} \right)^6 \right]$$

A ce potentiel doit être rajouté le potentiel provenant de l'interaction magnétique entre la pointe et la surface. Lorsque la pointe est loin de la surface, seule la composante attractive est significative et alors les forces de Van der Waals varient en $1/r^7$. La force magnétique, quant à elle, varie en $1/r^4$. Nous pouvons raisonnablement espérer que, au voisinage de la surface mais pas trop près, la seule contribution vue par la sonde soit de type Van der Waals alors que loin de la surface ce soit la contribution des forces magnétiques qui prédomine.

Expérimentalement, il est cependant difficile de trancher entre la prédominance de l'une ou l'autre force pour les distances entre pointe et échantillon utilisées expérimentalement. C'est pourquoi, un protocole a été mis au point pour retrancher le signal topographique du signal magnétique. C'est le mode lift qui consiste à balayer la surface deux fois, une première en mode tapping qui permet de retracer la topographie de la surface. Et une deuxième fois à hauteur de vol qui est une hauteur constante au-dessus du premier passage sur la surface.

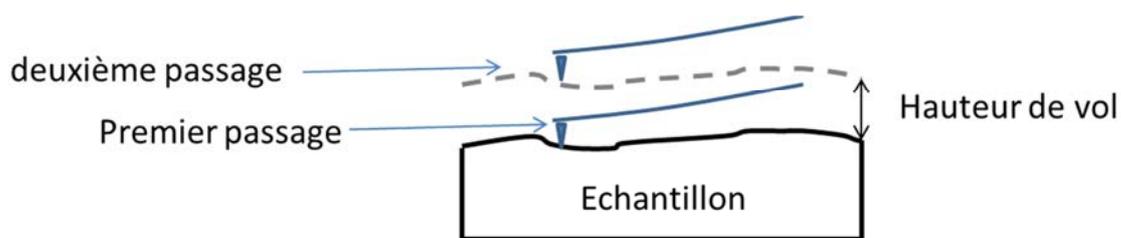


Figure III.18 Représentation schématique du mode lift : la pointe magnétique effectue un premier passage en mode tapping sur l'échantillon puis un deuxième à une hauteur de vol plus élevée retraçant le profil, ainsi les forces magnétiques prédominent.

Dans un premier temps, la sonde parcourt une ligne dans le mode AFM. La fréquence d'oscillation du cantilever est maintenue constante à l'aide de l'électronique de rétroaction en variant la distance entre la pointe et l'échantillon. Le premier parcours de la pointe définit la topographie de l'échantillon car la distance entre la pointe et l'échantillon est de l'ordre du nanomètre et le signal mesuré est uniquement issu des forces de Van der Waals. La ligne AFM est conservée dans la mémoire de l'ordinateur.

Dans un second temps, à la fin de la ligne, la pointe est soulevée et maintenue à une hauteur de vol constante de la surface définie par la première mesure de topographie. Le signal électrique mesuré sur la ligne AFM est réinjecté dans l'élément piézo-électrique qui suit alors le parcours ligne hachurée de la figure III.18 et la rétroaction est coupée. On mesure alors la variation d'amplitude de vibration du cantilever qui est proportionnelle à la dérivée seconde du champ de fuite. C'est ainsi qu'artificiellement, en considérant que les forces de

Van der Waals ne varie pas lorsque la distance entre la pointe et l'échantillon change, nous pouvons retrancher le signal topographique du signal mesuré.

Dans le cadre de nos analyses, la hauteur de vol a été fixée à 30 nm. Celle-ci correspond au meilleur compromis entre la résolution latérale et la hauteur à laquelle la pointe ne risque pas de toucher l'échantillon.

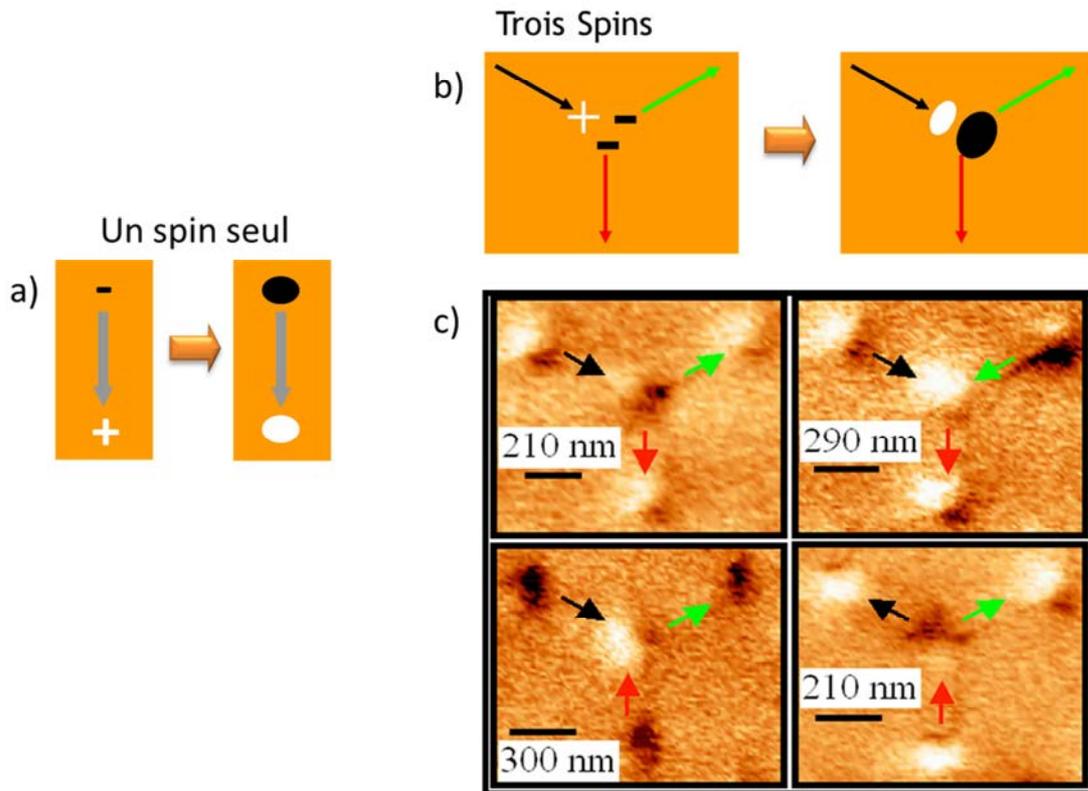


Figure III.19 Illustration du contraste magnétique. a) illustration d'un barreau magnétique unique monodomaine avec ses charges de surface et le contraste MFM associé : l'aimantation va de la tache noire vers la tache blanche ; b) illustration d'un système à 3 brins respectant la règle de la glace avec un spin entrant et deux sortants. Le vertex présente deux charges négatives et une charge positive. Le contraste MFM est alors constitué d'une tache noire plus étendue que la tache blanche ; c) images MFM d'un réseau kagomé sur lesquelles figurent quatre vertex avec des configurations magnétiques différentes. Ces images mettent en évidence les différences de contraste d'une configuration à l'autre.

1.5. Les contrastes magnétiques issus des réseaux kagomé

Les réseaux étudiés sont constitués de nano-aimants mesurant 90nm de large sur 470 nm de long. Grâce aux charges de surface apparentes au sein du barreau magnétique dans les réseaux déconnectés, nous pouvons donner une direction d'aimantation comme cela est visible dans la figure III.19.

Dans la description de la microscopie à force magnétique nous avons présenté l'interaction entre la pointe magnétique et le champ de fuite de l'échantillon. Nous aurions pu présenter l'inverse c'est-à-dire l'interaction entre le champ de fuite de la pointe et l'aimantation de l'échantillon. Il y a donc une interaction réciproque entre la pointe et l'échantillon et la configuration magnétique de la pointe peut être influencée par celle de l'échantillon et inversement. Il se peut alors que la configuration magnétique de l'échantillon change sous l'action du champ de fuite de la pointe. Afin de s'assurer que les configurations ne sont pas perturbées lors de la mesure MFM, nous avons dans un premier temps mesuré la configuration magnétique d'échantillons sur synchrotron (en XPEEM). Ces mêmes configurations ont été mesurées au MFM. La figure III.20 illustre la comparaison entre les images MFM et XPEEM, le réseau numérisé rend compte de la compatibilité entre les configurations magnétiques imagées par les deux techniques.

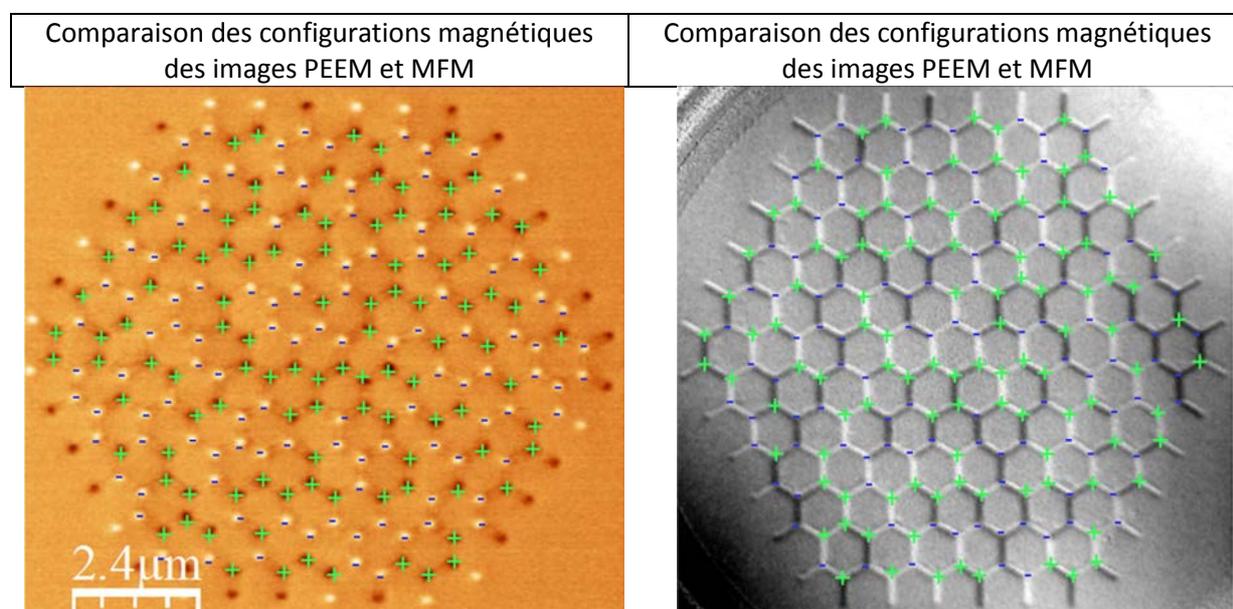


Figure III.20 Image MFM et X-PEEM de réseaux connectés. L'image MFM ne permet pas de remonter à la configuration magnétique de chaque brin mais seulement aux charges effectives au niveau de chaque vertex. Sur ces images, la cartographie des charges est comparée.

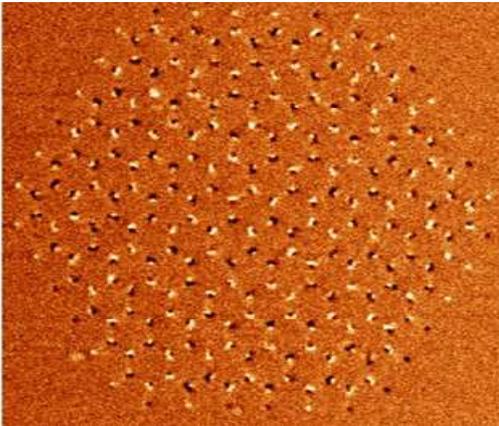
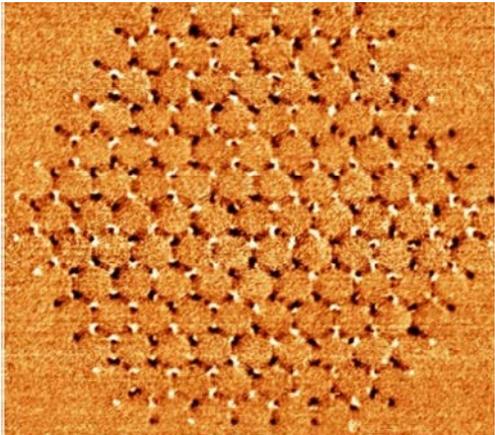
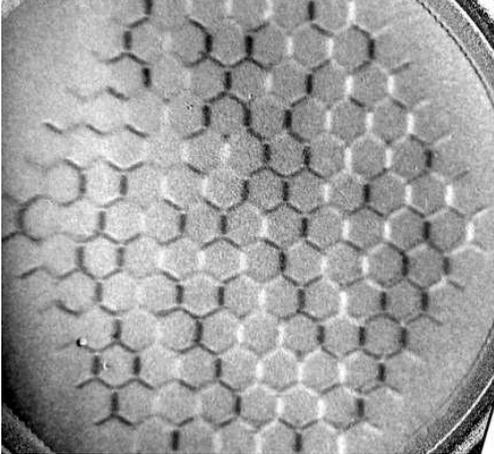
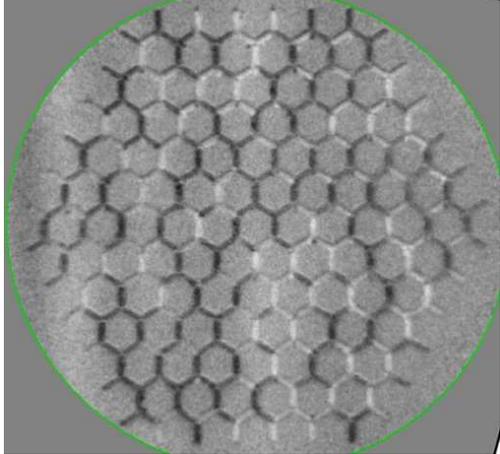
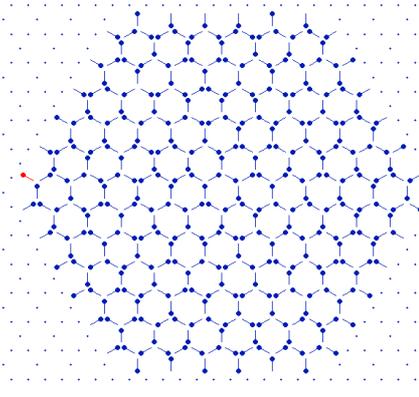
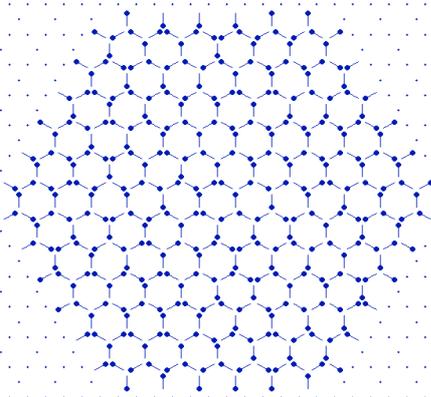
Réseau CoFeB 80%	Réseau Co 80%
	
Image MFM 10 μ m	Image MFM 10 μ m
	
Image PEEM 10 μ m	Image PEEM 10 μ m
	
Comparaison PEEM et MFM	Comparaison PEEM et MFM

Figure III.21 Comparaison d'images MFM et XPEEM. a) deux réseaux l'un en Co l'autre en CoFeB mesurés en MFM ; b) l'image X-PEEM de ces deux réseaux au seuil du Co ; c) numérisation et comparaison de la configuration magnétique de l'image MFM et X-PEEM. Le brin dont l'orientation du moment magnétique diffère d'une image à l'autre apparaît en rouge.

1.5.1. Cas des réseaux connectés

La microscopie MFM sur des réseaux connectés ne permet pas de remonter directement à la configuration magnétique de l'échantillon mais uniquement aux charges effectives du réseau. Après avoir établi la cartographie des charges effectives du réseau, on constate que la mesure de l'image MFM n'a pas modifié l'emplacement des charges sur le réseau.

1.5.2. Cas des réseaux déconnectés

Sur la figure III.21 sont reportées les mesures MFM et XPEEM sur deux réseaux, l'un en CoFeB et l'autre en Co. Les deux ont été imagés dans un premier temps en X-PEEM puis sous MFM. En dernière ligne figurent les numérisations comparées. Sur cette figure, deux réseaux sur huit ont été illustrés, tous les réseaux mesurés sont parfaitement compatibles. Seul un brin d'un réseau CoFeB n'a pas conservé sa direction d'aimantation. Cela signifie que sur huit réseaux composés de 342 brins, seul un brin a renversé son aimantation sous MFM (soit 1 brin sur 2736).

Pour conclure, la technique utilisée pour imager les réseaux kagomé sur synchrotron est une technique fiable et non invasive qui permet de remonter directement à l'aimantation du système sans le perturber. L'inconvénient de cette technique est qu'elle est très peu accessible puisqu'elle est située sur synchrotron. En ce qui concerne la microscopie à force magnétique, nous avons montré que celle-ci ne perturbait pas la configuration magnétique de nos réseaux en Co et CoFeB et qu'elle permet de remonter aux configurations dans le cas des réseaux déconnectés. **Par conséquent, une grande partie des expériences présentées seront faites au laboratoire sous MFM, sur des réseaux déconnectés, notamment pour les études de renversement d'aimantation sous champ magnétique qui sont extrêmement longues à réaliser en XPEEM.**

2. Microscopie de surface XPEEM

Dans ce chapitre nous présenterons sommairement la microscopie XMCD-PEEM sachant que les détails de la technique peuvent être trouvés dans la référence [MOU10]. L'acronyme signifie en anglais : *X-ray Magnetic Circular Dichroism – Photoemission Electron Microscopy*. Cette microscopie est basée sur l'émission de photoélectrons par un matériau soumis à un rayonnement électromagnétique. Cette technique consiste à détecter les électrons photo émis suite à la désexcitation d'un niveau de cœur ce qui permet d'avoir une sélectivité chimique en choisissant le seuil d'absorption de l'élément à imager. Ces électrons sont à leur tour collectés par une colonne d'optique électronique pour ensuite former l'image finale. Compte tenu de leur libre parcours moyen, ces électrons peuvent provenir d'une distance d'environ 5 à 10 nm sous la surface : la microscopie X-PEEM est donc une technique essentiellement sensible à la surface des échantillons. La résolution latérale de l'instrument est déterminée par l'optique électronique. Les meilleures résolutions obtenues sont de l'ordre 20 nm avec des rayons X.

Le dichroïsme circulaire magnétique permet de déduire la valeur et la direction du moment magnétique. Pour un matériau illuminé par des rayons X, le XMCD correspond à la différence d'absorption des rayons X polarisés circulairement droite et gauche. L'image est obtenue à partir de deux images l'une en polarisation circulaire droite I^+ et l'autre en polarisation circulaire gauche I^- . La figure III.22 présente une image magnétique. L'image est obtenue en enregistrant deux images, une en polarisation circulaire droite et l'autre en polarisation circulaire gauche. Sur l'image asymétrique $\frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-}$, les zones sombres et claires correspondent aux domaines où l'aimantation est respectivement orientée parallèlement ou antiparallèlement à la direction de propagation des photons incidents. Les régions grises correspondent aux zones où l'aimantation est perpendiculaire.

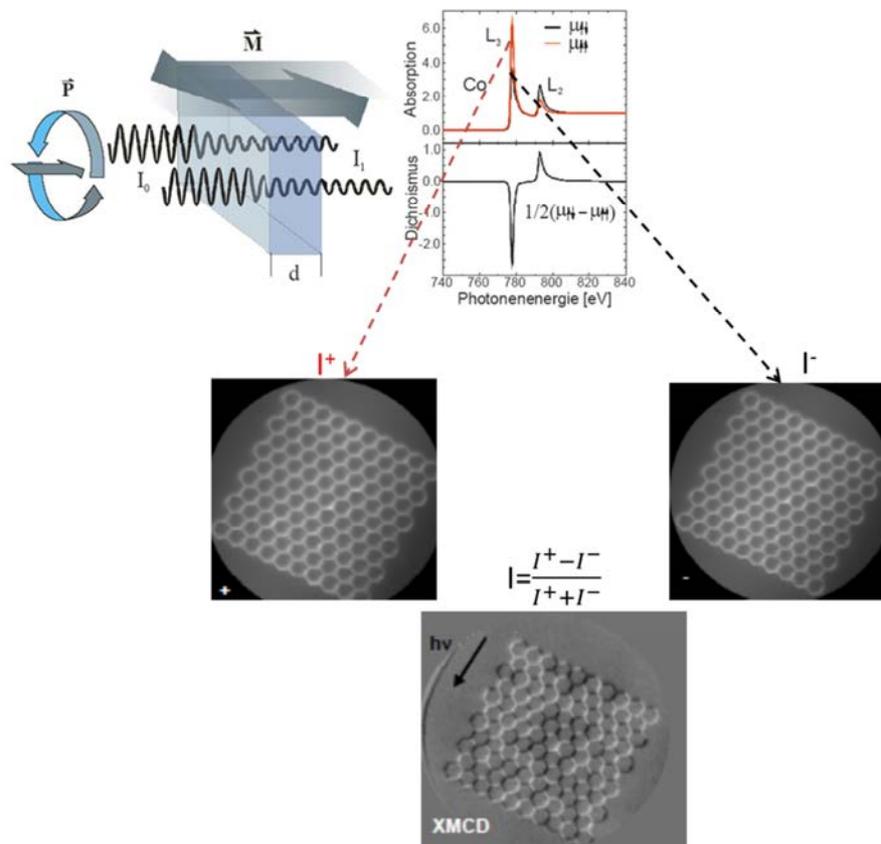


Figure III.22 Images magnétiques enregistrées au seuil L_3 du Co en polarisation circulaire droite et gauche (Spectre et dessin : <http://www.mf.mpg.de/de/abteilungen/schuetz/popup.php?lang=de&content=image&type=specific&name=xmcd5>)

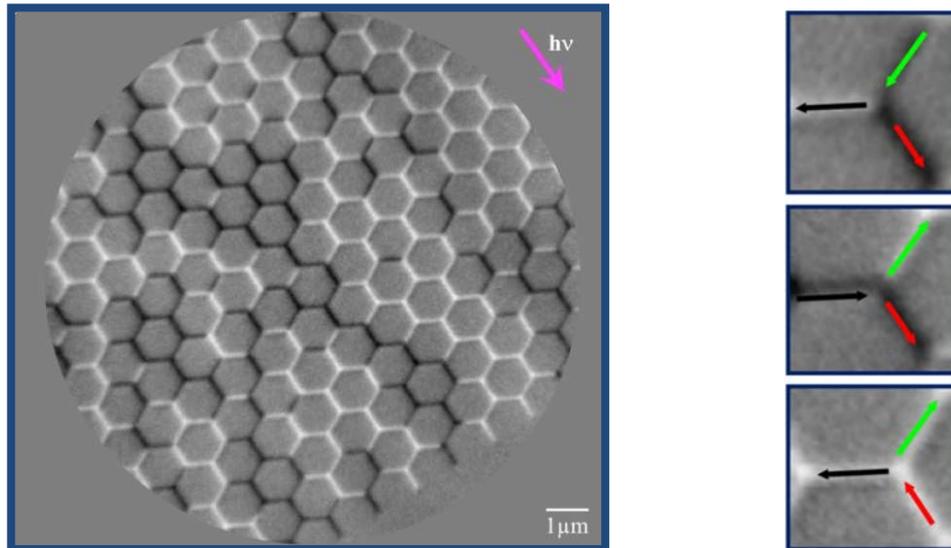


Figure III.23 Image magnétique d'un réseau kagomé avec représentation de la configuration magnétique de trois vertex différents.

3. Traitement des données – numérisations des configurations

Un programme Labview réalisé au laboratoire permet de numériser la configuration magnétique des réseaux mesurée par l'une des techniques de microscopie. L'interface de ce programme est présentée sur la figure III.24. Elle est constituée de flèches vertes se superposant à l'image obtenue en microscopie dont nous voulons numériser la configuration. Les paramètres tels que le nombre de flèches, leurs positions ainsi que leurs tailles sont ajustables de façon qu'à chaque élément du réseau corresponde une flèche. Ce programme permet tout aussi bien de traiter les images réalisées en X-PEEM qu'en MFM. Ce programme permet aussi de réaliser des comparaisons de deux configurations magnétiques.

Une fois les réseaux numérisés, nous pouvons extraire les paramètres physiques du système tels que l'aimantation du réseau, les différents coefficients de corrélation, l'énergie du système dans l'approximation du dipôle ponctuel et ceci grâce à des sous programmes capables de sommer vectoriellement les flèches ou d'extraire le nombre total d'interactions de chaque type. Il est également possible de détecter les mécanismes de renversement et notamment la mise en évidence de cascades.

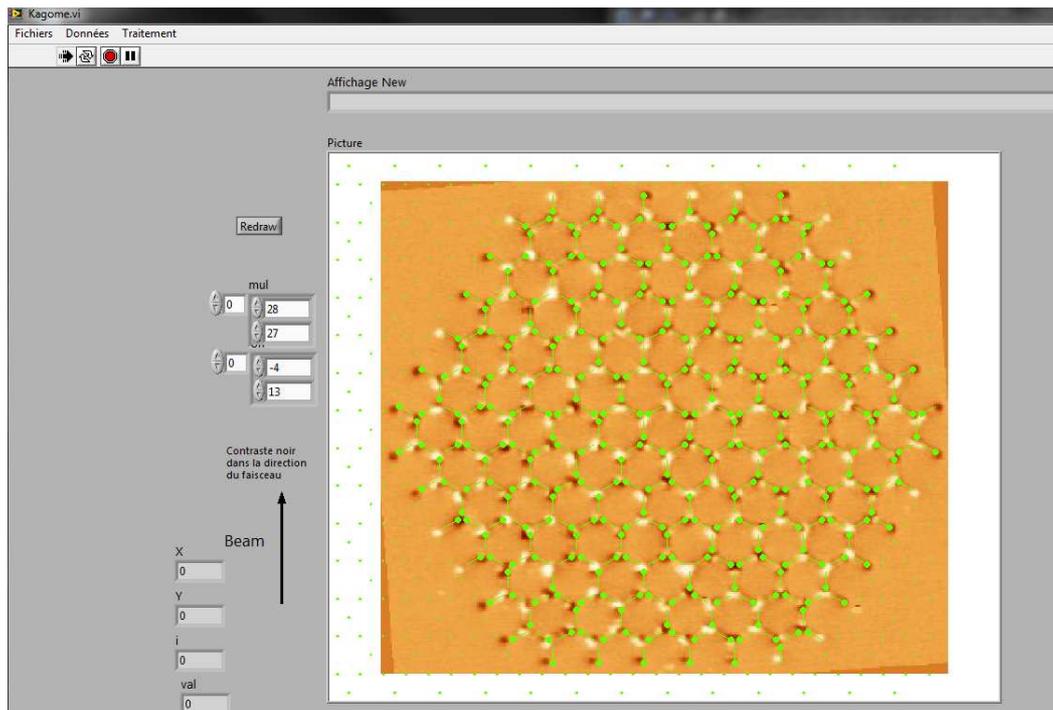


Figure III.24 Interface du programme LabView permettant la numérisation des configurations mesurées.

Bibliographie chapitre techniques et méthodes

[MAL04]

Grégory Malinowski, réalisation de capteurs reposant sur le transport tunnel dépendant du spin dans des hétérostructures Métal/Isolant. Thèse de l'Université de Lorraine. Soutenue le 20 Décembre 2004.

[BER10]

Julien Bernos, précession et cohérence de spin dans les dispositifs à électronique de spin. Thèse de l'Université de Lorraine. Soutenue le 20 Octobre 2010.

[HAN89]

P. Hansen, C. Clausen, G. Much, M. Rosenkranz and K. Witter, Magnetic and magneto-optical properties of rare-earth transition-metal alloys containing Gd, Tb, Fe,Co, J. Appl. Phys. 66, 756 (1989).

[BRI08]

Joel Briones Hernandez, anisotropie magnétique induite par modulation de surface et étude de la propagation de parois de domaines dans des nanostructures magnétiques. Thèse de l'Université de Lorraine. Soutenue le 10 novembre 2008.

[MOU10]

Souliman El Moussaoui, étude par microscopies en rayonnement synchrotron des propriétés structurales et magnétiques des couches minces et microstructures MnAs/GaAs(100). Thèse de l'Université Paris Diderot (Paris 7). Soutenue le 9 septembre 2010.

[HEH97]

Michel Hehn, élaboration, études des propriétés structurales et magnétiques de couches et réseaux de plots submicroniques à base de cobalt. Thèse de l'Université de Strasbourg. Soutenue le 24 janvier 1997.

Chapitre IV. Renversement du réseau kagomé à direction de champ fixe

Dans ce chapitre, nous allons présenter les mécanismes de renversement d'aimantation des réseaux kagomé. Dans un premier paragraphe seront comparés les travaux de trois auteurs ayant joué un rôle majeur dans l'avancée des études sur les glaces de spins artificielles. Nous étudierons donc les travaux de Mengotti et al. [MEN10] concernant le renversement d'aimantation dans des réseaux kagomé déconnectés. Ensuite, nous parlerons des travaux de Ladak et al. [LAD10] dans lesquels des réseaux kagomé connectés renversent également leur aimantation par avalanche et enfin nous parlerons des travaux de Schumann et al. [SCH10] dans lesquels l'aimantation se renverse par formation de domaines de charges. Après avoir présenté ces travaux, nous comparerons les mécanismes de renversement d'aimantation des échantillons présentés dans le chapitre II à ces derniers, puis nous analyserons l'apparition et l'annihilation des états interdits par la règle de la glace en fonction des astroïdes présentées dans le chapitre II. Enfin, nous discuterons ces résultats.

I- Renversement de l'aimantation des réseaux kagomé dans la littérature

Dans les études pionnières menées sur le renversement d'aimantation dans les réseaux kagomé (LAD10, MEN10), des états interdits par la règle de la glace ainsi que des états appelés monopoles et anti-monopoles ont été observés. Les monopoles sont des équivalents magnétiques aux charges électriques qui avaient été prédits par Dirac, mais qui n'avaient jamais encore été observés jusqu'alors. Un analogue classique aux monopoles magnétiques a été mis en évidence dans le pyrochlore [CAS08]. Dans ce matériau peuvent émerger des paires de monopoles, charges topologiques opposées à très basse température et les expériences menées sur les glaces de spins artificielles type kagomé fournissent des détails sur les renversements d'aimantation dans de ce type de réseaux où les éléments peuvent être connectés ou non. L'idée de base ici est de préparer l'échantillon dans un état saturé par l'application d'un champ magnétique et de recenser les réponses aux champs de renversement du réseau. Pour cela, différentes techniques d'imageries comme le XPEEM ou

le MFM ont été utilisées. Dans les études menées par Ladak et Mengotti, le renversement d'aimantation se fait par avalanche. Les chaînes ainsi formées commencent et se terminent par des monopoles qui s'éloignent l'un de l'autre au fur et à mesure que le champ augmente comme dans le pyrochlore (cf. figure IV.1.b).

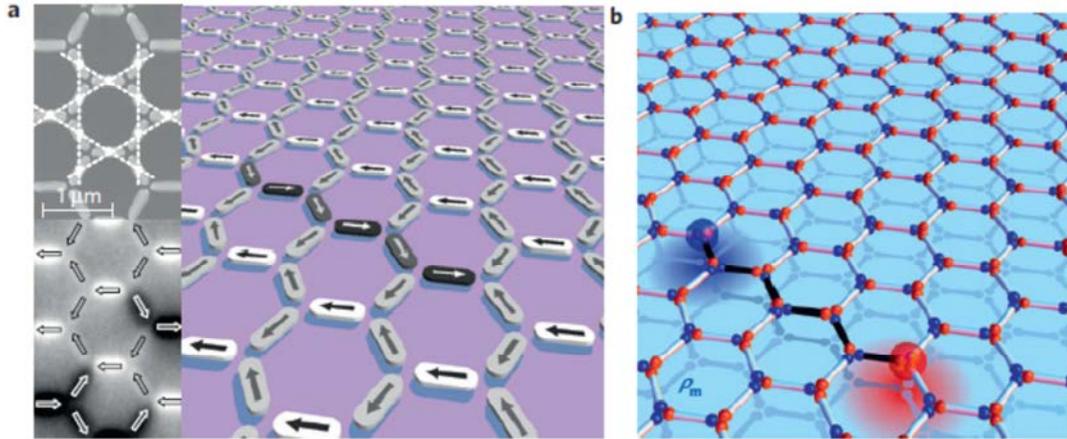


Figure IV.1 Monopoles émergents et chaîne de Dirac associée dans une glace de spin kagomé artificielle. a) vue schématique d'un réseau nano-lithographié composé d'éléments de permalloy avec un axe d'anisotropie le long des éléments constituant le réseau, l'aimantation des éléments est indiquée par les flèches sur le réseau. Initialement, ce réseau est aimanté vers la gauche et l'application du champ de renversement induit la formation de chaîne de Dirac avec deux monopoles à ses extrémités. La couleur appliquée sur chaque élément correspond au contraste de l'image XMCD, ce contraste est la mesure de l'orientation de l'aimantation. Dans l'encart gauche supérieur figure une image MEB avec la maille kagomé superposée en pointillés, dans l'encart gauche inférieur figure l'image XMCD correspondant à l'image MEB ; le contraste uniforme associé à chaque élément montre qu'ils sont monodomaines et permet de déterminer sans ambiguïté l'orientation de l'aimantation le long de chaque élément. b) distribution de charges à chaque vertex correspondante aux moments magnétiques.

Dans l'exemple de la figure IV.1.a, les renversements d'aimantation sont initiés par un brin orienté à 60° par rapport à la direction du champ appliqué puis, par avalanche, ce renversement entraîne celui de l'aimantation du brin parallèle à la direction du champ. Ainsi, les deux charges générées (monopoles) en renversant le premier élément s'éloignent tout en restant reliées par une chaîne de dipôles renversés que l'on appelle chaîne de Dirac. Dans le tableau de la figure IV.2, on voit que les monopoles peuvent être formés en renversant l'aimantation de l'un des trois éléments d'un vertex, le renversement d'aimantation d'un des deux éléments non-aligné avec le champ peut provoquer le renversement de l'élément parallèle au champ appliqué par interaction dipolaire entre premiers voisins et le renversement de l'aimantation de l'élément parallèle peut alors entraîner celui d'un des deux autres : il y a formation d'une chaîne.

En appliquant un champ magnétique, le renversement d'un dipôle unique mène à l'inversion de la charge magnétique de ses pôles, qui induit une formation de paires de monopole-anti monopole sur deux sites voisins. Le monopole (anti-monopole) correspond à une variation de charge $\Delta Q = 2q$ ou $-2q$, respectivement, par rapport à la configuration initiale de charge d'un vertex. Cet état initial est présenté dans la colonne I de la figure IV.2 et nous l'appellerons dans la suite λ_{180} . C'est l'état à partir duquel les chaînes de Dirac sont formées comme le montre la figure IV.1.ab : la paire de monopole-anti monopole peut se séparer en s'éloignant de plus en plus par renversement des dipôles le long d'un chemin continu appartenant à une chaîne de Dirac qui n'altèrent pas l'ordre de charges initial (figure IV.2 colonne III). Quand un monopole d'une charge donnée balaie l'échantillon alors celui-ci passe par des vertex avec une charge $\pm q$.

Deux lignes ont été ajoutées à la figure IV.2 afin de faire la correspondance avec notre façon de nommer les vertex. L'axe de référence dans ce cas est celui du champ appliqué. Le sens positif est choisi comme étant le sens opposé au champ de saturation. A ce stade, on voit qu'il est possible de distinguer deux types de vertex : ceux ayant une forme en Y et ceux ayant une forme en λ . Aussi, c'est naturellement que le nom d'un vertex commencera par Y ou λ selon sa géométrie. Ensuite, un indice sera associé à ce nom afin de préciser la configuration magnétique qu'il supporte. Cet indice est simplement l'angle entre l'axe de référence et la somme des aimantations des trois brins formant le vertex. Ainsi, les éléments saturés vers la gauche forment des Y_{180} ou λ_{180} (colonne I). Les vertex saturés dans la direction du champ sont alors nommés Y_0 ou λ_0 . Les auteurs ont réalisé un réseau glace de spin kagomé artificielle en permalloy par lithographie électronique, les éléments constituant ce réseau sont épais de 20nm et la distance entre vertex est de 500nm. Ces réseaux ont été réalisés par pulvérisation cathodique et lift-off tandis que les nôtres sont en cobalt et ont été gravés comme décrit dans le chapitre « techniques expérimentales ».

Les images XMCD mettent clairement en évidence sur la figure IV.3 la formation de chaînes de dipôles renversés avec l'augmentation du champ.

Dans les expériences menées par Ladak [LAD10], les mêmes renversements par chaînes ont été observés dans des réseaux kagomé connectés. En effet, dans ce type de réseau, le renversement attendu aurait été par nucléation et propagation de parois de domaines magnétiques à travers le réseau. Cependant, les auteurs ont observé la formation de monopoles et de chaînes de Dirac ainsi que la présence d'états interdits qui sont les états de plus haute énergie. Dans le renversement d'aimantation par avalanche du réseau, la charge magnétique est conservée le long de la chaîne de dipôles. Les défauts (monopoles) apparaissent uniquement lorsque la charge magnétique est piégée au niveau d'un vertex. Les auteurs ont montré que la présence de monopoles était due au piégeage de parois de domaines au niveau des vertex.

	I. Initial state	II. Mobile monopole (MP)		III. Vertex on a Dirac string	IV. Not observed	V. Trapped MP		
Moments								
Dumbbell								
λ	180	240	120	OUT	300	60	IN	0
Q_α	-q	+q	-3q	-q	+3q	+q		
ΔQ_α	0	+2q	-2q	0	+4q	+2q		
Moments								
Dumbbell								
γ	180	240	120	IN	300	60	OUT	0
Q_α	+q	-q	+3q	+q	-3q	-q		
ΔQ_α	0	-2q	+2q	0	-4q	-2q		

Figure IV.2 Identification des monopoles durant le renversement d'aimantation. Représentation schématique de toutes les configurations de vertex ainsi que de leur représentation « dumbbell » et des monopoles associés. Le niveau de gris utilisé indique la correspondance avec le contraste XMCD. La charge totale Q_α pour chaque configuration de vertex ainsi que la différence de charges $\Delta Q_\alpha = Q_\alpha - Q_{0,\alpha}$ relative à la configuration de charge initiale $Q_{0,\alpha}$ (réalisée à partir de l'état initial saturé avec toutes les aimantations pointant vers la gauche (colonne I)). En appliquant le champ de renversement, les moments magnétiques se renversent individuellement et sont représentés par des flèches jaunes. Un monopole mobile existe lorsqu'un seul moment se renverse autour d'un vertex (colonne II). Lorsque deux moments en tête-à-queue se renversent, ceci ne change pas la charge magnétique associée au vertex ($\Delta Q_\alpha = 0$) et une configuration intervenant à l'intérieur d'une chaîne de Dirac est obtenue (colonne III). Le renversement de deux moments tête bèches n'est jamais rencontré (comme le prévoit la théorie). La colonne V montre un état dont tous les moments sont renversés. Cet état décrit un défaut de charge piégé sur une chaîne de Dirac et qui ne peut plus se déplacer même si le champ appliqué continu d'augmenter [MEN10].

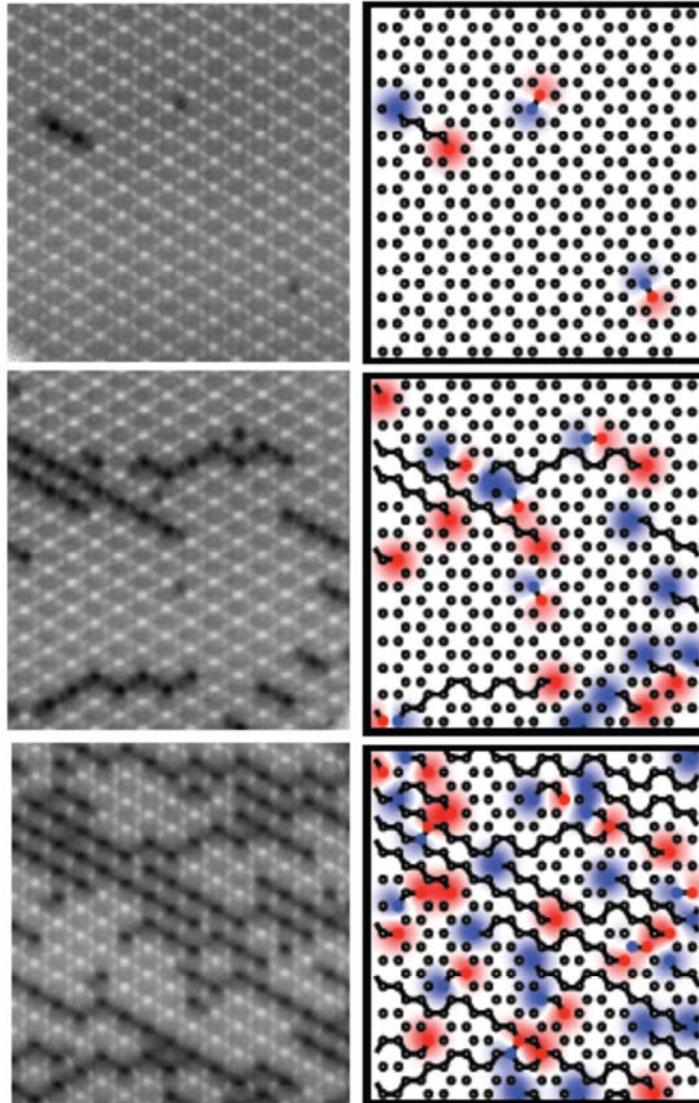


Figure IV.3 Renversement d'aimantation dans un réseau nid d'abeille saturé par création et propagation d'avalanches de paires de charges magnétiques opposées, séparées par une chaîne de Dirac (observation directe en XMCD : images de gauche). A droite, carte des ΔQ associées montrant le changement progressif de la charge magnétique des vertex. De haut en bas sont montrés les renversements d'aimantation pour des champs appliqués allant de 85% à 99% du champ coercitif H_c [MEN11].

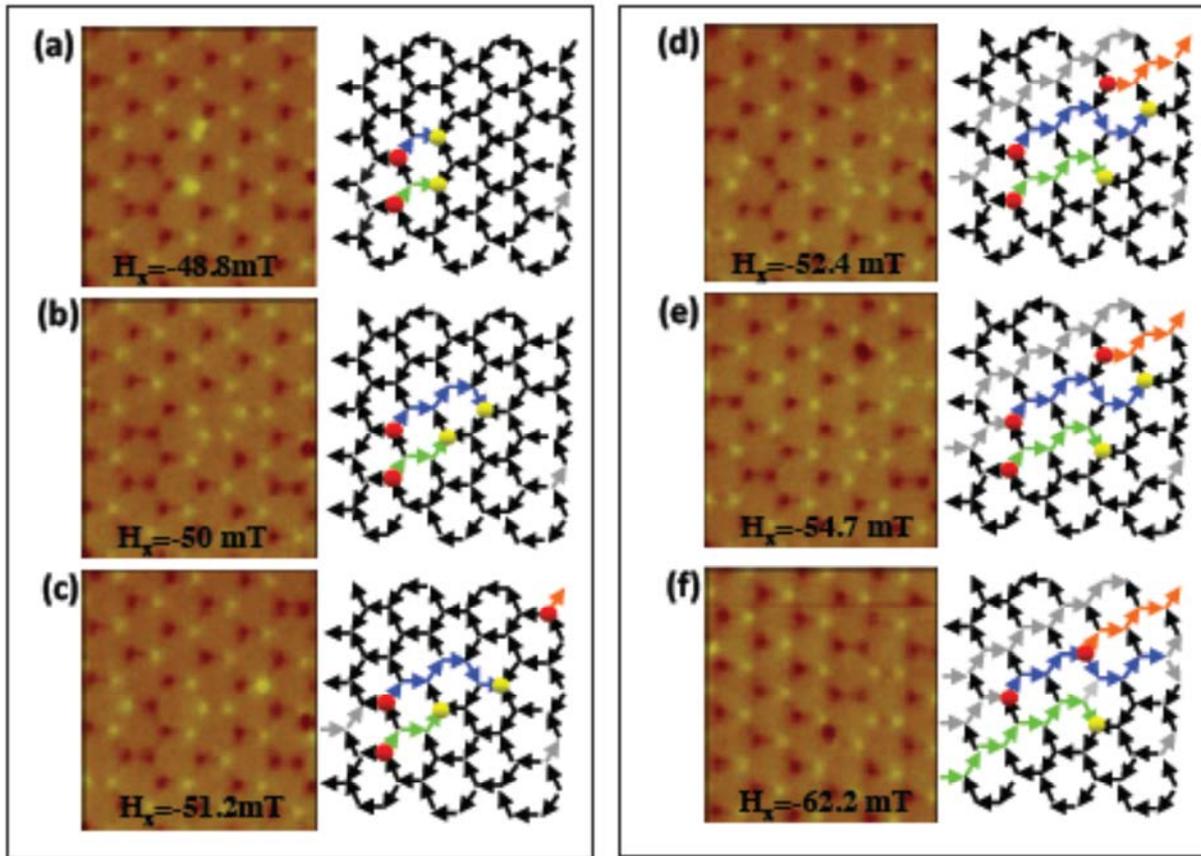


Figure IV. 4 Observation expérimentale des défauts de charges magnétiques et de leur mobilité à travers le système dans le processus de renversement d'une glace de spin artificielle nid d'abeille de cobalt : à gauche, les images MFM et à droite, leurs représentations sous forme de flèches. L'état du système est mesuré pour différentes valeurs de champ lorsque le champ augmente. (a) deux défauts avec $|\Delta Q|=2q$ en jaune ($Q=3q$) en rouge ($Q=-q$). Les flèches de couleurs représentent les chaînes de renversement de spins. (b) le mouvement des charges magnétiques implique l'extension des chaînes. (c) apparition d'un nouveau défaut en rouge, (d) initiation d'une chaîne par le mouvement du dernier défaut. (f) le défaut est bloqué par la chaîne initiée par un autre défaut [LAD10].

La figure IV.5 illustre la mécanique de renversement d'aimantation du réseau au niveau d'un vertex λ . Le vertex est saturé avec un champ appliqué verticalement, la configuration de départ est donc $\lambda 180$. La première étape du renversement nous montre la génération de monopoles avec l'apparition de vertex $\lambda 120$ et $\lambda 240$. Ces vertex apparaissent en renversant un des deux brins obliques à la direction du champ magnétique. Ensuite les paires monopoles anti-monopoles se séparent et restent reliées par une chaîne de Dirac dont les configurations de vertex caractéristiques sont les $\lambda 60$ et $\lambda 300$, ces deux types de vertex sont issus du renversement d'un brin oblique et du renversement d'un brin adjacent et parallèle au champ.

Le processus de renversement d'aimantation des réseaux étudiés par Ladak et Mengotti est résumé par la figure IV.5.

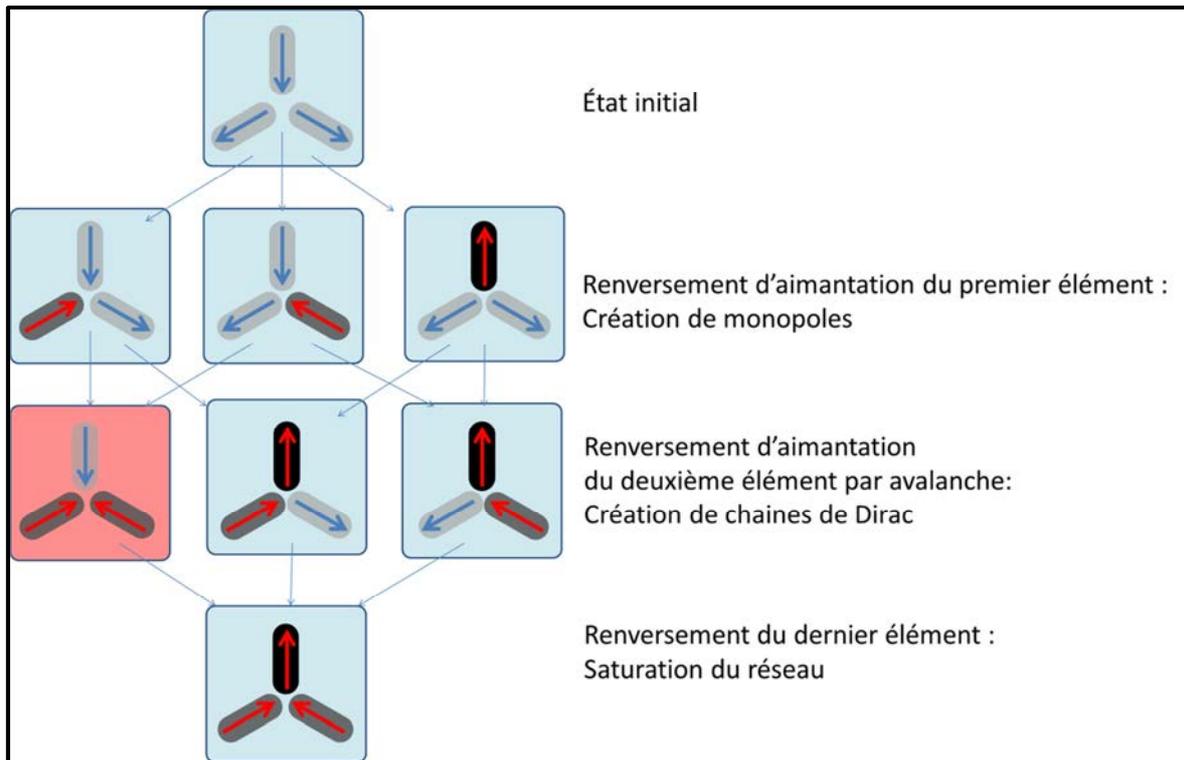


Figure IV.5 Schéma de synthèse des résultats de Mengotti et Ladak. Dans cette étude, un des deux éléments obliques se renverse dans un premier temps puis entraîne le renversement de l'élément vertical et inversement. Le renversement du réseau se fait ensuite par élévation des chaînes de Dirac. Les configurations dont l'encadré est en rouge sont les configurations non observées.

Schumann et al. ont réalisé des réseaux kagomé de Fe polycristallin avec différentes dimensions (figure IV.6 [SCH10]).

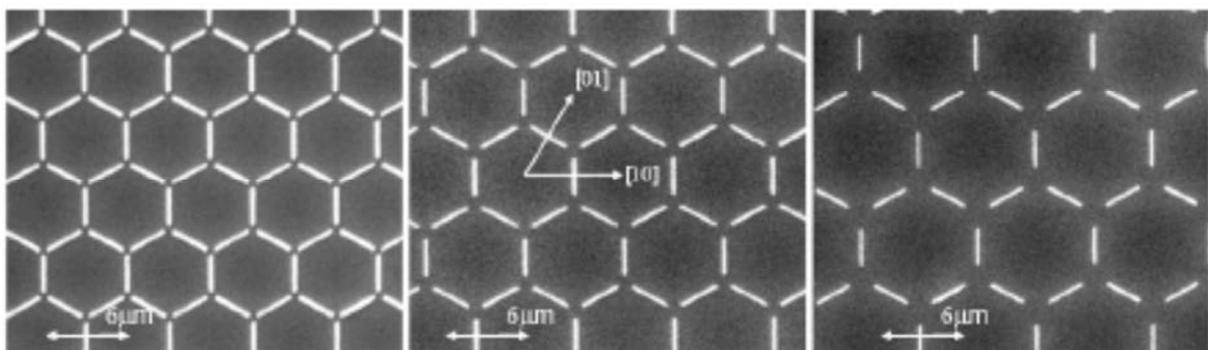


Figure IV.6 Image MEB de petites sections d'un réseau kagomé avec différentes périodicités et différentes tailles de séparation entre les éléments du réseau. Ceux-ci possèdent une longueur de $3\mu\text{m}$ et une largeur de $0,3\mu\text{m}$, les flèches indiquent les vecteurs de base du réseau.

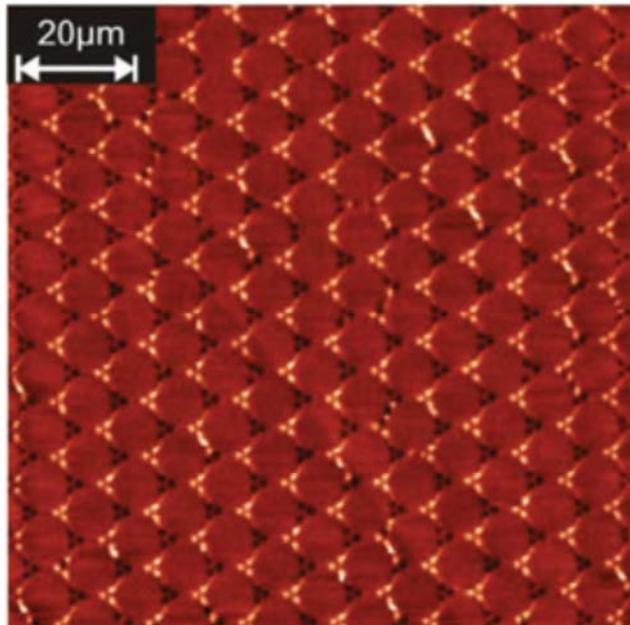


Figure IV.7 Image MFM du réseau kagomé possédant un espace inter-vertex de $0,8\mu\text{m}$ avec une orientation $[11]$ à la valeur du champ coercitif. Dans les trois réseaux, l'ordre de charges au niveau des vertex peut être identifié.

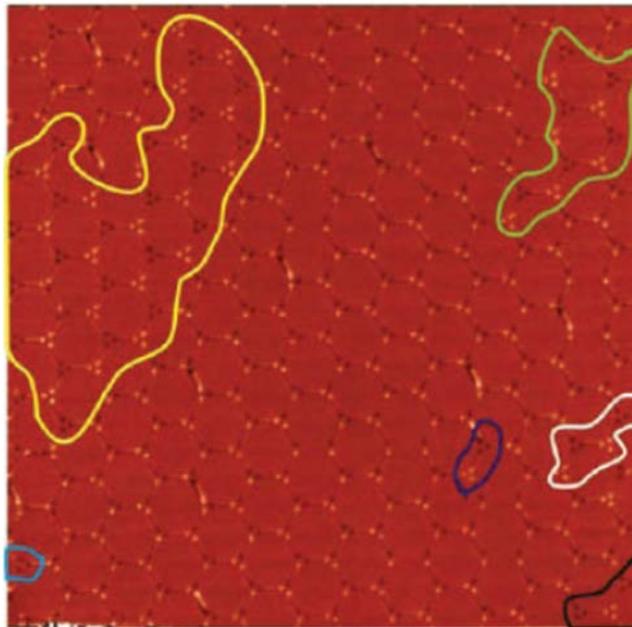


Figure IV.8 Formation de domaines de charges ± 3 sur un réseau dont les éléments sont séparés de $0,8\mu\text{m}$ pour un champ de 600G .

A saturation, les réseaux présentent un ordre de charge $\pm 1q$. Pour un champ approchant la valeur de champ coercitif, l'élément parallèle au champ appliqué renverse son aimantation avant les deux autres. A la différence des réseaux kagomé étudiés par les autres groupes, ces expériences ont montré une abondance d'états $+3/-3$ (Cf. figure IV.7). L'ordre de charges ± 3 commence à apparaître sous forme de domaines de charges. La figure IV.8 montre un exemple de formation de domaines de charges. Une fois le champ coercitif atteint, les éléments non alignés sur le champ renversent leur aimantation, le réseau est enfin saturé dans la direction du champ appliqué. Le tableau de la figure IV.9 recense les mécanismes de renversement d'aimantation au sein du réseau.

Dans notre système de notation, l'ordre de charge $\pm 3q$ correspond aux états $\lambda_{out}/\gamma_{in}$. Le système part d'un état désaimanté pour ensuite se renverser en générant des domaines de charges correspondants à des états interdits par la règle de la glace, ces domaines sont illustrés sur la figure IV.8 . Contrairement aux expériences de Mengotti et Ladak, les réseaux ne se renversent pas par avalanche mais par expansion de domaines de charges.

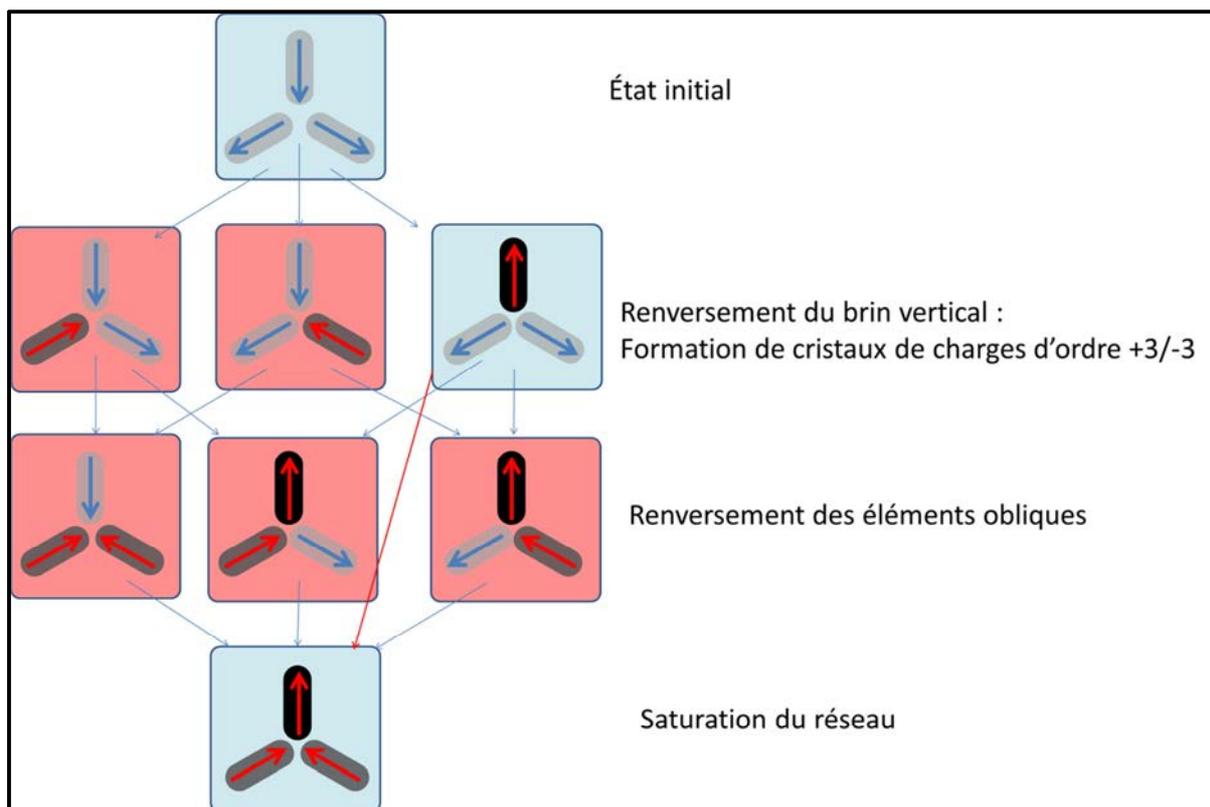


Figure IV.9 Schéma de synthèse des résultats de Schumann et al. Dans un premier temps, l'élément aligné avec le champ se renverse afin de former un cristal de charges. Ensuite, les deux autres éléments se renversent simultanément au champ coercitif pour saturer le réseau. Les configurations dont l'encadré est en rouge sont les configurations non observées.

II- Renversement de l'aimantation dans les réseaux kagomé fabriqués dans le cadre de la thèse

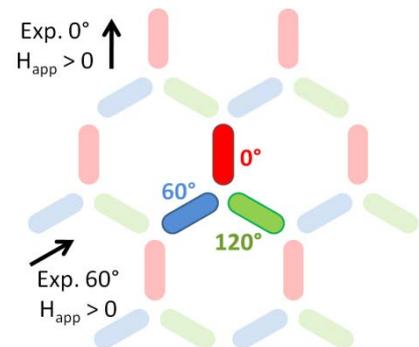
Dans notre cas, l'échantillon étudié 2359-72 est réalisé en cobalt. Sa fabrication ainsi que ses caractéristiques sont décrites dans le chapitre III. Le réseau étudié est le réseau 5 de la série, défini avec une dose linéique de 2000PC/cm. Dans la même veine que les expériences de Ladak, Mengotti et Schumann, nos expériences ont donné des résultats tout à fait différents.

Dans un premier temps seront décrits les protocoles expérimentaux. Ensuite, les résultats seront exposés puis discutés.

1. Retournement des aimantations du réseau

Dans l'esprit des expériences présentées précédemment, nous avons étudié le processus de renversement de l'aimantation de notre réseau kagomé. Cette étude a été menée pour deux directions d'application du champ magnétique. L'analyse du processus de renversement sera menée en deux temps. Tout d'abord, nous regarderons chaque sous-réseau 0° , 60° et 120° de façon indépendante. Puis, une analyse du retournement d'aimantation en terme de population de vertex Y et λ sera présentée.

Une première étape de cette étude consiste à saturer le réseau en appliquant un champ de - 2 kOe Oe sur celui-ci. Le réseau est ensuite caractérisé par MFM afin de vérifier que l'aimantation est bien saturée. Une image MFM typique est présentée en figure IV.10.a. Il est notable sur cette image que l'état magnétique du réseau est parfaitement ordonné (alternance périodique de contrastes noir et blanc). Chacun des sous-réseaux 0° , 60° et 120° a alors son aimantation globale saturée dans la direction du champ et seuls des vertex de type Y_{180} et λ_{180} sont présents. À partir de ce point, la mécanique de renversement d'aimantation peut être étudiée en augmentant le champ appliqué par pas de 50 Oe. À chaque pas de champ, une image MFM est prise puis numérisée (selon la procédure décrite dans le paragraphe 3 du chapitre III ce qui permet une analyse des différentes configurations magnétiques). Ces expériences ont été réalisées pour deux directions de champ magnétique à priori équivalente: 0° et 60° . Le schéma ci-contre explicite notre façon de nommer les sous-réseaux ainsi que les directions dans lesquelles le champ magnétique a été appliqué au cours des deux expériences comparées dans la suite.



L'image de la figure IV.10.b a été prise après avoir appliqué un champ de -1,12 kOe. L'état ordonné après saturation est détruit. Au premier regard, il est possible de constater la

présence d'états interdits '3in' et '3out' caractérisés par la présence d'un fort contraste unique au centre de certains vertex. Cependant, une analyse plus fine est nécessaire afin de bien appréhender les processus de renversement d'aimantation au sein de ce réseau.

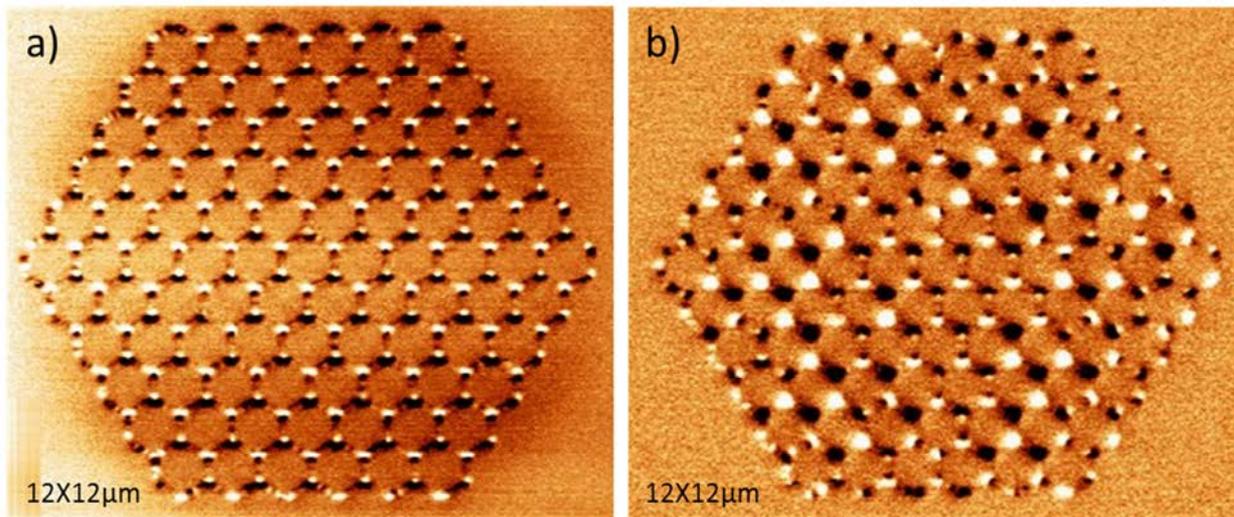


Figure IV.10 Image MFM du réseau 5 EPL0 2359-72 dose 2000 PC/cm, a) le réseau est saturé à -2 kOe. b) Image MFM après application d'un champ de 1,12 kOe.

1.1. Point de vue global

Dans un premier temps, nous ne faisons pas la distinction entre les sous réseaux et regardons l'évolution du nombre d'éléments qui voient leur aimantation inchangée en fonction du champ magnétique appliqué. Les résultats de cette analyse sont présentés en figure IV.11 pour les deux directions étudiées.

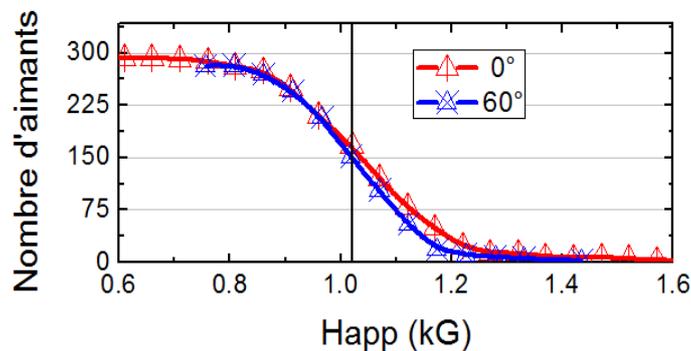


Figure IV.11 Nombre d'éléments qui voient leur aimantation inchangée en fonction du champ magnétique appliqué pour les deux directions d'application du champ magnétique.

Pour des faibles valeurs de champ magnétique appliqué (<0.8 kOe), la configuration magnétique du réseau reste inchangée : l'aimantation du réseau reste saturée dans la direction initiale de saturation. Lorsque la valeur du champ magnétique augmente, on observe un retournement progressif de l'aimantation des éléments composant le réseau. Pour une valeur de champ magnétique égale à 1.02 kOe, la moitié des éléments ont vu leur aimantation se retourner. Finalement, l'intégralité des aimants a changé de configuration pour un champ magnétique appliqué supérieur à 1.4 kOe. À ce stade, le comportement du réseau présente la symétrie attendue : mise à part une saturation plus difficile dans le cas d'un champ appliqué à 0° , les comportements observés sont similaires.

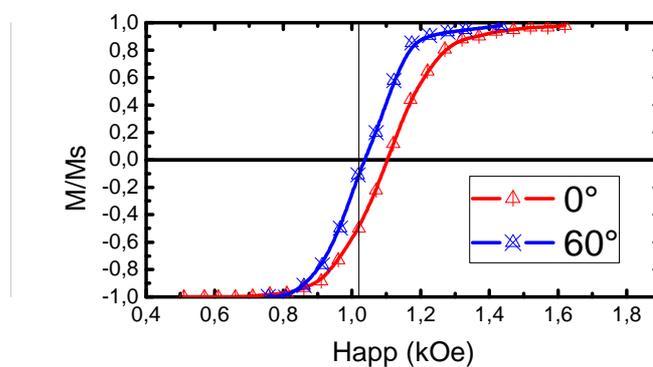


Figure IV.12 Aimantation globale normalisée du réseau en fonction du champ magnétique appliqué dans les deux directions d'étude.

Nous avons ensuite étudié l'aimantation globale du réseau en fonction du champ magnétique appliqué. Son évolution est représentée sur la figure IV.12. Cette fois, une différence de comportement apparaît en plus de la saturation à plus haut champ lorsque le champ est appliqué à 60° . Si dans le cas où le champ magnétique est appliqué à 60° l'aimantation est nulle pour un champ proche de 1.02 kOe (la moitié des éléments ont vu leur aimantation changer de direction) cela n'est pas le cas en ce qui concerne l'expérience à 0° : l'aimantation s'annule pour une valeur de champ égale à 1.12 kOe. La différence de comportement relevée en comparant les évolutions en champ magnétique d'une part du nombre d'éléments dont l'aimantation reste inchangée et d'autre part de l'aimantation normalisée du réseau nous indique que les populations d'éléments dont l'aimantation est retournée pour une valeur de champ magnétique donnée ne sont pas équivalentes dans le cas de nos deux expériences. Cela peut être confirmé visuellement en regardant directement sur le réseau quelles aimantations se sont retournées pour une valeur de champ magnétique appliqué égale 1.02 kOe (moitié des éléments retournés).

1.2. Analyse sous réseau par sous réseau

La figure IV.13 fait apparaître en rouge les aimantations dont la direction a changé lors de l'application d'un champ magnétique de 1.02 kOe dans les deux cas étudiés : champ appliqué à 0° et champ appliqué à 60°.

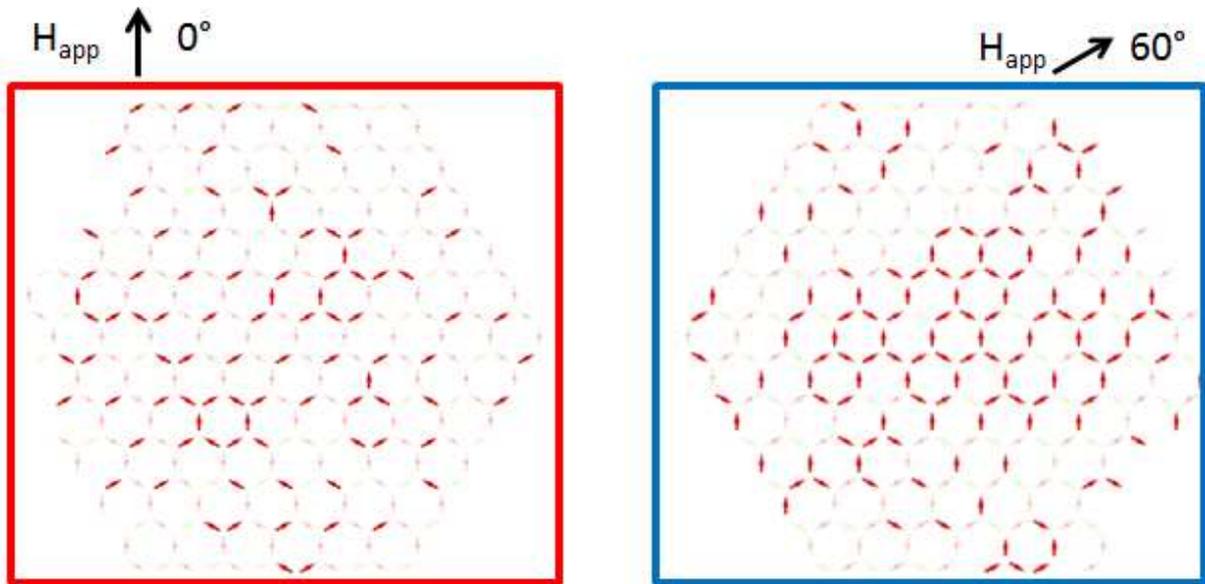


Figure IV.13 Aimantations dont la direction a changé pour un champ appliqué de 1.02 kOe. A gauche, 0° ; à droite, 60°.

Dans le cas d'un champ magnétique appliqué à 0°, on constate visuellement que ce sont majoritairement les éléments ayant une direction oblique à celle du champ magnétique qui ont vu leur aimantation se retourner. Dans le cas d'un champ magnétique appliqué à 60°, un nombre plus important d'éléments dont le grand axe est aligné parallèlement à la direction du champ a vu leur aimantation changer de direction.

Une analyse quantitative de cette observation peut être effectuée en distinguant cette fois les aimants en fonction de leur orientation (ce qui caractérise leur appartenance à un sous réseaux particulier). La figure IV.14 présente une telle analyse. Le nombre d'éléments sous réseau par sous réseau qui voient leurs aimantations inchangées en fonction du champ magnétique est reporté sur un graphique en fonction de l'intensité du champ magnétique appliqué.

Dans le cas de l'expérience 0° : le champ est appliqué dans la direction du sous réseau 0°. Le renversement d'aimantation s'effectue de la manière suivante : le sous réseau 60° voit son retournement prendre place en premier ; dans un deuxième temps, c'est le sous réseau 120° qui s'aimante dans le sens du champ appliqué et finalement le sous réseau 0° complète le

retournement de l'aimantation du réseau kagomé. Ce sont donc tout d'abord les aimantations des éléments dont le grand axe est oblique qui se retournent (60° et 120°), vient ensuite le retournement de l'élément dont le grand axe est parallèle à la direction du champ magnétique appliqué (0°).

Dans le cas de l'expérience 60° : le champ est appliqué dans la direction du sous réseau 60° . Le renversement d'aimantation s'effectue de la manière suivante : sous réseau 0° puis sous réseau 120° et finalement sous réseau 60° . Comme dans l'expérience 0° , ce sont donc majoritairement les éléments obliques au champ dont l'aimantation se retourne en premier.

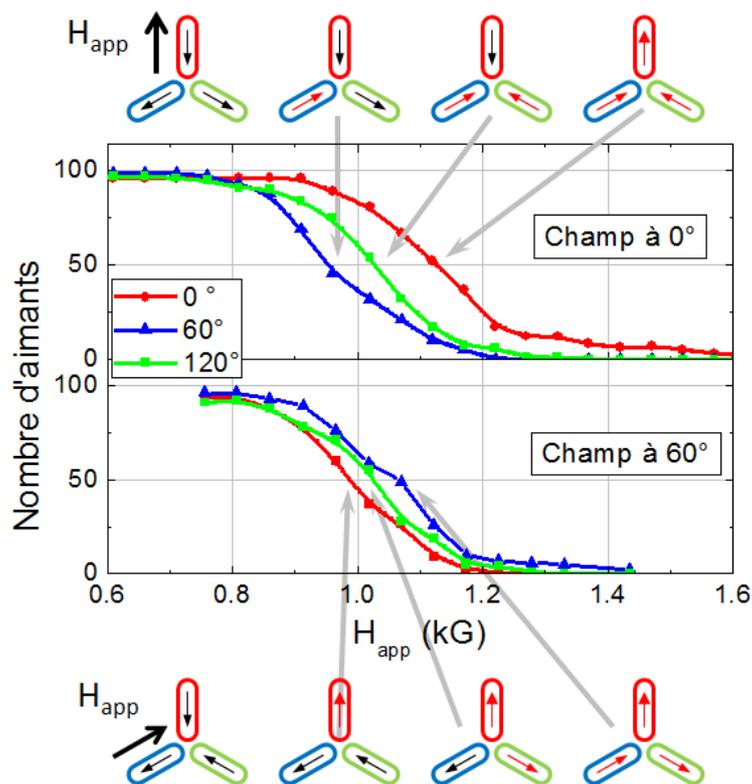


Figure IV.14 Analyse sous réseau par sous réseau du nombre d'éléments dont la direction d'aimantation a changé en fonction du champ appliqué.

Par contre dans l'expérience 60° , le retournement des aimantations des trois sous réseaux s'effectue dans une gamme de champ magnétique plus restreinte que dans l'expérience à 0° . Pour un champ magnétique de 1.02 kOe où la moitié des éléments ont vu leur aimantation changer de direction, cette demi population est composée essentiellement d'éléments obliques au champ dans le cas de l'expérience à 0° alors que l'expérience à 60° la proportion d'éléments dont le grand axe est aligné avec le champ est augmentée.

Dans le but de pousser plus loin l'analyse, il est possible de discuter des mécanismes de retournement d'aimantation de nos réseaux en termes de population de vertex. Cela permet de voir s'il existe une corrélation entre proches voisins dans le retournement des aimantations des sous réseaux.

1.3. Analyse en terme de vertex Y et λ

La figure IV.15 présente les populations de vertex de type Y et λ en fonction du champ magnétique appliqué pour les deux expériences réalisées.

1.3.1. Champ appliqué à 0°

Au départ le réseau est saturé: un seul type de vertex Y existe, les Y_{180} . Les aimantations de chacun des nano-aimants sont globalement orientées selon la direction négative du champ magnétique appliqué (voir figure IV.15a). Lorsque la valeur du champ magnétique augmente, la population de vertex Y_{180} chute au profit d'une augmentation simultanée des population Y_{120} et Y_{240} . Ce changement de population s'effectue par retournement de l'aimantation d'un élément dont le grand axe est oblique par rapport à la direction du champ (sous réseau 60° et 120°) comme le montre le schéma en haut à gauche de la figure IV.15a. Ensuite, pour des valeurs de champ plus élevées, un nouveau type de vertex Y fait son apparition au sein du réseau. C'est un état interdit pas les règles de la glace : Y out ! L'apparition de cet état est due au retournement au sein d'un même vertex Y des deux éléments dont le grand axe est oblique à la direction du champ magnétique (sous réseau 60° et 120°). Finalement, pour des valeurs de champ magnétique appliqué suffisamment hautes, le réseau prend progressivement sa configuration saturée : il y a apparition des vertex Y_0 par retournement des aimantations des éléments appartenant au sous réseau 0° .

Remarquons tout d'abord qu'au cours du processus de retournement observé, aucun vertex de type de Y_{in} n'est observé. Autrement dit, dans cette expérience, jamais un aimant du sous réseau dont les éléments ont leur le grand axe aligné avec la direction du champ (0°) voit son aimantation changer de direction en premier. De plus, le retournement des aimantations du sous réseau 0° ne s'effectue au sein d'un vertex que lorsque les éléments des sous réseaux 60° et 120° du même vertex ont vu leur aimantation changer de direction. Cela se manifeste par l'absence de vertex de type Y_{60} et Y_{300} au cours du mécanisme de retournement (vertex sur fond rouge dans le schéma résumant le retournement de la figure IV.15a). La même analyse est possible en s'intéressant cette fois aux populations de vertex de type λ et cette analyse amène la même remarque : le retournement des aimantations du sous réseau 0° ne s'effectue au sein d'un vertex que lorsque les éléments des sous réseaux 60° et 120° du même vertex ont vu leur aimantation changer de direction (figure IV.15b).

1.3.2. Champ appliqué à 60°

Comme dans le cas 0°, le réseau est saturé au début de l'expérience: un seul type de vertex Y existe les Y_{240} . Les aimantations de chacun des nano-aimants sont globalement orientées selon la direction négative du champ magnétique appliqué (voir figure IV.15c). Lorsque la valeur du champ magnétique augmente, la population de vertex Y_{240} chute au profit d'une augmentation simultanée des populations Y_{300} et Y_{180} . Ce changement de population s'effectue par retournement de l'aimantation d'un élément dont le grand axe est oblique à la direction du champ (sous réseau 0° et 120°) comme le montre le schéma de la figure IV.15c. Ensuite, pour des valeurs de champ plus élevées a contrario du cas 0°, deux nouveaux types de vertex Y apparaissent au sein du réseau Y_{in} et Y_0 . L'apparition du vertex Y_{in} est comme dans le cas 0° due au retournement au sein d'un même vertex Y des deux éléments dont le grand axe est oblique à la direction du champ magnétique (cette fois les sous réseau 0° et 120°). Le vertex Y_0 doit son apparition au retournement de l'aimantation de l'élément dont le grand axe est aligné avec la direction du champ (éléments du sous réseaux 60°) alors qu'au sein du vertex l'aimantation de l'élément du sous réseau 0° a déjà changé de direction. Finalement, pour des valeurs de champ magnétique appliqué suffisamment hautes, le réseau prend progressivement sa configuration saturée : apparition des vertex Y_{60} par retournement des aimantations des éléments appartenant soit au sous réseau 60° (destruction des Y_{in}) soit au sous réseau 120° (destruction des Y_0). L'analyse des populations de vertex de type λ amène aux mêmes observations que l'analyse des populations de vertex de type Y. A l'instar de l'expérience à 0°, au cours du processus de retournement, jamais un aimant du sous réseau dont les éléments ont leur le grand axe aligné avec la direction du champ voit son aimantation changer de direction en premier. A contrario de l'expérience à 0°, lorsque le champ est appliqué à 60°, il arrive qu'un élément dont le grand axe est aligné avec la direction du champ magnétique appliqué voit son aimantation changer de direction alors que les aimantations des éléments "obliques" ne sont pas toutes deux retournées. Cela amène à l'apparition de vertex Y_0 au cours du retournement.

L'analyse des populations de vertex en fonction du champ magnétique appliqué fait ressortir trois points importants.

- i) Quelle que soit la direction de champ magnétique étudiée, mener l'étude sur les vertex de type Y ou de type λ est équivalent.
- ii) Deuxièmement, les éléments dont le grand axe est aligné avec la direction du champ ne voient jamais leurs aimantations changer de direction dans la première étape du processus de retournement.
- iii) Les mécanismes de retournement à 0° et à 60° diffèrent. Cela est très surprenant compte tenu de la symétrie ternaire du système étudié.

Une fois ces points mis en évidence, nous pouvons aisément comparer le comportement de notre système à ceux publiés dans la littérature. C'est l'objet de la section suivante.

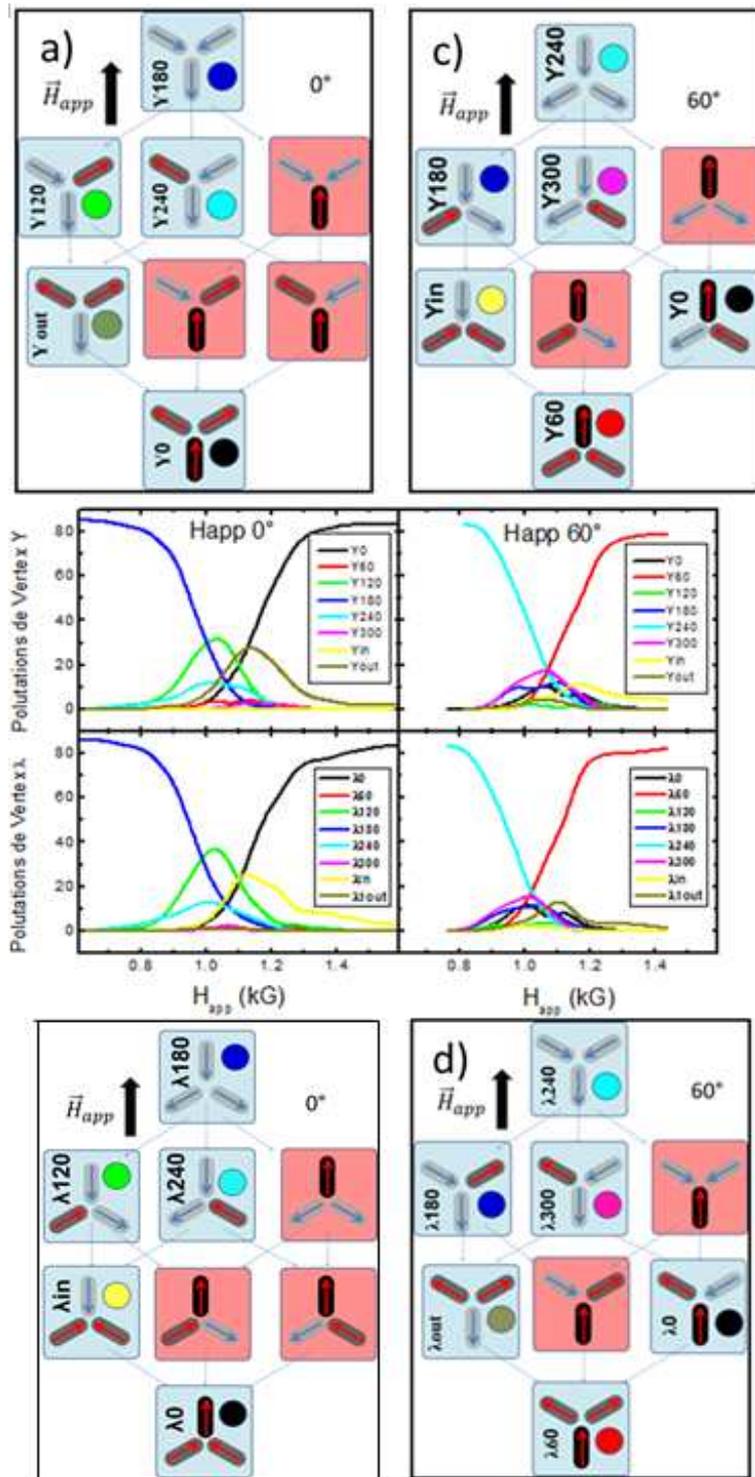


Figure IV.15 Population des vertex Y et λ en fonction du champ magnétique appliqué pour deux directions d'application du champ magnétique. Attention ! Les notations Y et λ sont toujours présent dans le repère absolu (direction du champ à 0°), c'est pour cette raison que dans la description de l'expérience à 60° , les motifs apparaissant comme des Y sont en fait des λ et inversement. Pour s'en convaincre il suffira au lecteur d'effectuer une rotation de 60° du motif Y_{240} de la figure c. La forme Y sera restaurée et la somme vectorielle des trois aimantations pointent bien dans la direction 240° . L'intérêt de cette représentation réside dans la comparaison plus aisée avec les autres expériences (voir partie suivante).

2. Comparaison par rapport à l'état de l'art

La figure IV.16 permet de comparer les processus de retournement des aimantations observés au sein du réseau étudié à ceux publiés précédemment dans la littérature. Avant toutes choses, il convient de noter ici qu'aucun des groupes ayant mené des études similaires n'a rapporté avoir exploré deux directions de champ magnétique différentes. De plus, parmi les trois études déjà publiées, deux mécanismes différents ont été observés.

La majeure différence entre nos résultats et ceux des autres groupes intervient dès la première phase du processus. En effet, dans notre cas, quelle que soit la direction du champ magnétique appliqué (0° ou 60°), jamais l'élément dont le grand axe est aligné avec la direction du champ voit son aimantation changer de direction durant cette première étape. Cela se reflète dans l'absence de vertex λ_{out} dans les cas 0° et de vertex λ_{in} dans le cas 60° . Le processus publié par Schuman et ses collaborateurs: formation de vertex λ_{in} sur de grandes surfaces du réseau n'est reproduit par aucune de nos expériences. L'expérience menée à 60° peut être considérée comme similaire à celles menées par Mengotti/Ladak au sens où nous observons également des vertex de type λ_0 . Il existe néanmoins de nombreuses différences : au cours des expériences de Mengotti/Ladak, des vertex de type λ_{in} sont présents alors que ceux-ci sont absents dans notre cas. L'expérience à 0° quant à elle ne présente aucune similitude avec les cas précédemment étudiés.

Dans le cas de notre situation expérimentale, les simulations micromagnétiques présentées au chapitre II prévoient un retournement initié par l'aimantation d'un élément dont le grand axe est oblique par rapport à la direction du champ magnétique appliqué celui-ci entraînant ensuite le retournement de l'aimantation de l'aimant ayant son grand axe aligné avec la direction du champ magnétique appliqué. De façon plus synthétique, le système passe d'une configuration λ_{180} à une configuration λ_{60} avant d'atteindre son état saturé λ_0 dans le cas d'un champ magnétique appliqué à 0° . Dans le cas d'un champ magnétique appliqué à 60° , cela se traduit par la séquence : $\lambda_{240} \rightarrow \lambda_0 \rightarrow \lambda_{60}$. Ce type de processus est donc compatible avec la situation expérimentale observée à 60° .

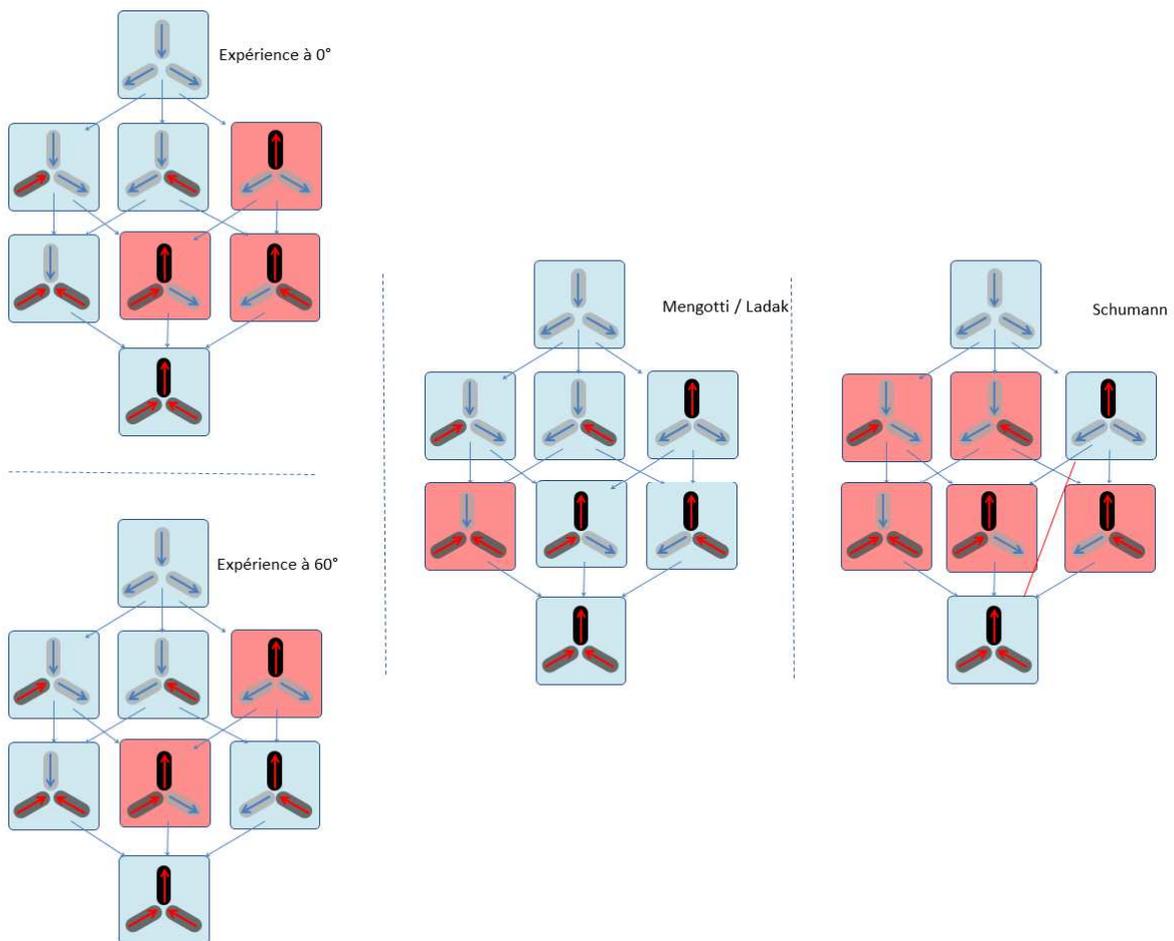


Figure IV.16 Schémas de comparaison des mesures obtenues en laboratoire avec celles de différents auteurs cités selon des protocoles expérimentaux similaires. a) mesure à 0° du réseau 2359-72. b) mesure du réseau 2359-72 à 60° , la configuration encadrée en tirets souligne le fait que cette population est minoritaire. c) mesures de Mengotti et Ladak. d) mesures de Schumann.

3. Origine de la brisure de symétrie ternaire

Nous avons montré précédemment que le processus de retournement d'aimantation du réseau étudié différait selon que le champ était appliqué à 0° ou 120° . Ce comportement n'est bien sûr pas attendu dans un système ayant une symétrie ternaire. Cela nous a logiquement poussé à comprendre l'origine de cette brisure de symétrie. Dans la suite, nous tentons donc d'identifier les raisons pour lesquelles notre réseau présente ce comportement atypique. Deux phénomènes différents peuvent être à l'origine de la brisure constatée : une anomalie dans la morphologie du réseau et l'existence d'une anisotropie magnétique de volume. Dans un premier temps, nous allons caractériser finement la topographie du réseau afin d'y relever toutes traces de différence avec le réseau idéal pouvant générer une telle brisure de symétrie. Puis, dans un second temps, par le biais de simulations

micromagnétiques, nous étudierons l'impact d'une anisotropie de volume sur le processus de retournement d'un bloc de base du réseau.

3.1. La piste topographique

Il s'agit ici de déterminer s'il existe des différences morphologiques entre chacun des sous réseaux de nano-aimants. Pour se faire, il convient de mesurer la hauteur, l'orientation, la largeur, la longueur et la position des nano-aimants en distinguant leur appartenance à un sous réseau particulier. La forme des bouts des nano-aimants constitue également un facteur qu'il conviendra de prendre en compte. Deux techniques d'imageries ont été utilisées pour mener à bien cette caractérisation : la microscopie à force atomique (AFM) et la microscopie électronique par balayage (SEM ou MEB). En préalable à toute mesure, une calibration de chaque instrument est réalisée. La figure IV.17 présente à la fois une image AFM et une image MEB du réseau kagomé. Sur ces images, nous avons superposé en rouge le squelette du réseau idéal construit de façon numérique.

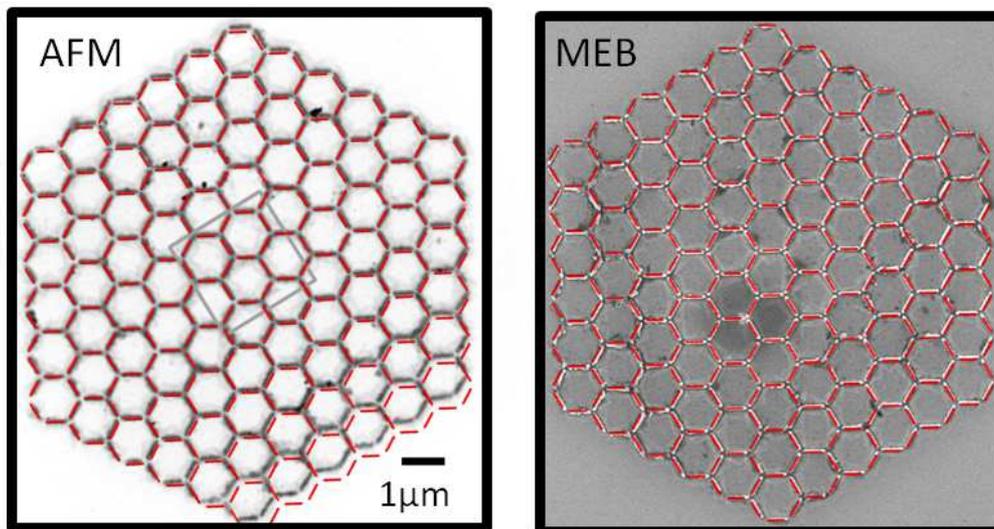


Figure IV.17 Images AFM et MEB comprenant chacune une superposition du réseau idéal en rouge.

Au premier regard, il apparaît que l'image AFM souffre d'une distorsion. Ceci n'est pas le cas de l'image MEB. La distorsion observée est probablement due à un léger glissement de l'échantillon au cours de l'acquisition. Nous avons donc utilisé l'image AFM uniquement pour la détermination de la hauteur des nano-aimants. L'exploitation de l'image MEB nous donnera accès aux autres caractéristiques morphologiques. Dans les deux cas, les images obtenues sont analysées avec le logiciel libre Gwyddion. Celui-ci permet la détection par seuillage haut et bas des éléments du réseau. Une fois les éléments correctement identifiés, il est possible de distinguer chacun des sous réseaux grâce à l'orientation de la longueur des nano-aimants le composant.

3.1.1. Hauteurs

Issues de l'image AFM, les distributions de hauteurs des nano-aimants sont représentées par des histogrammes sur la figure IV.18. En moyenne, la hauteur du réseau 0° est de 25 nm alors que celles des sous réseaux 60° et 120° sont égales à 26 nm (Les écarts type de ces distributions sont respectivement de 1, 2 et 2nm).

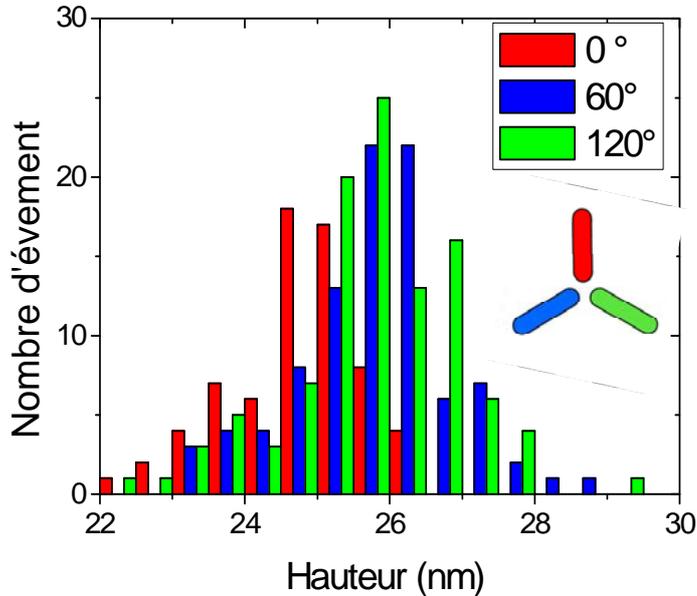


Figure IV.18 Histogramme représentant les distributions de hauteurs des nano-aimants de chaque sous réseau.

Il existe donc une faible différence de hauteur entre le sous réseau 0° et les autres. Pour déterminer les autres caractéristiques morphologiques, nous avons utilisé l'image MEB, la détection des nano-aimants se faisant cette fois par seuillage sur les contrastes.

3.1.2. Orientation

La figure IV.19 présente les histogrammes de distribution des écarts d'orientations des grands axes des éléments classés par sous réseau. Les écarts moyens sont de 2° , 0.5° et 0.5° pour les sous réseaux 0° , 60° et 120° . Les écarts types associés à ces distributions sont de 3° , 2° et 2° . En ce qui concerne l'orientation des éléments, il n'existe donc pas de différence majeure entre sous réseaux.

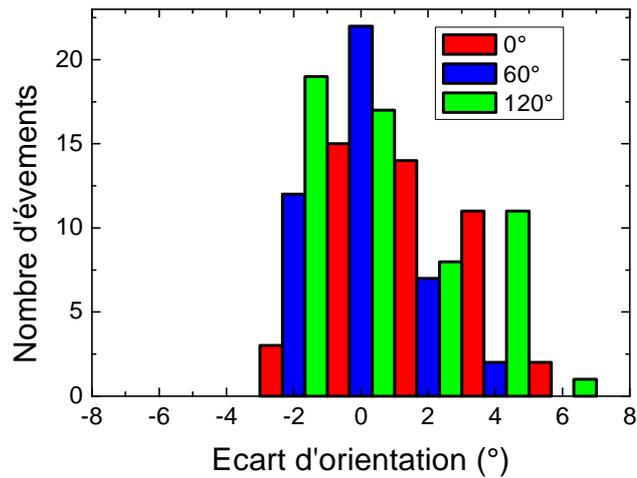


Figure IV.19 Histogramme représentant les distributions d'orientation des nano-aimants de chaque sous réseau.

3.1.3. Ecart aux positions idéales

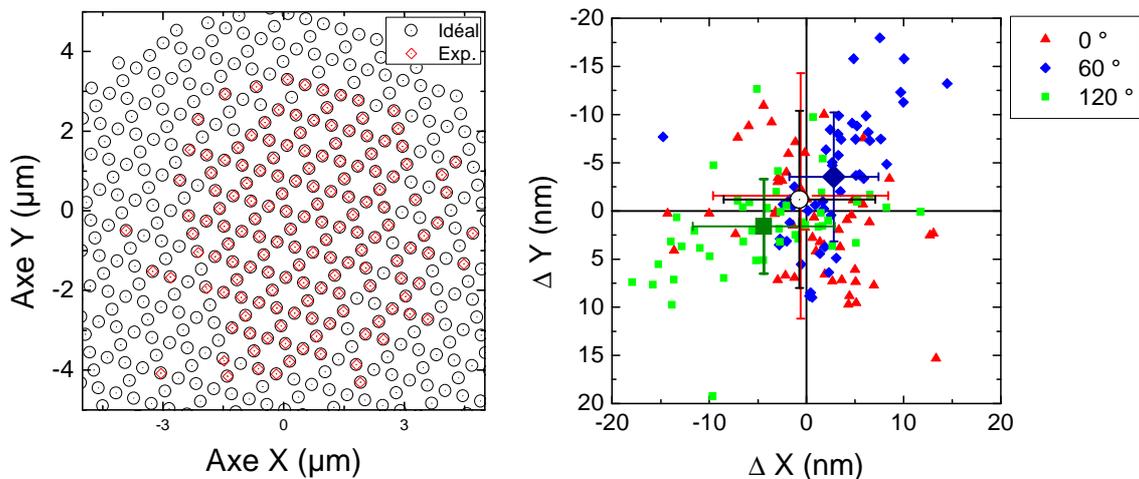


Figure IV.20 Gauche : Positions des centres idéaux et des centres expérimentaux après ajustements. **Droite** : Ecart entre positions expérimentales et positions idéales, moyennes de ces écarts et écarts types.

Toujours à partir de l'image MEB, il est possible d'extraire la position des centres des nano-aimants. Ceci va nous permettre de déterminer l'écart entre la position idéale et la position expérimentale. Grâce au logiciel Mathematica, nous avons ajusté un réseau idéal sur le réseau expérimental. L'algorithme construit dans ce but a pour objectif de minimiser la somme des valeurs absolues des écarts de position en laissant comme degrés de liberté au

réseau idéal la rotation, la translation en X et en Y ainsi que l'homothétie. Une fois l'ajustement effectué, il est possible de déterminer les écarts en X et Y (notés ΔX et ΔY) de chaque élément du réseau par rapport à sa position idéale. Une fois encore nous avons regardé ces écarts sous réseau par sous réseau. La partie gauche de la figure IV.20 montre les positions des centres des nano-aimants du réseau expérimental (\diamond) ainsi que celles des centres du réseau idéal (\odot) après ajustement. La partie droite de cette figure présente des nuages de points correspondant aux écarts en X et Y à la position idéale, pour chaque sous réseau ($\blacktriangle 0^\circ$, $\blacklozenge 60^\circ$ et $\blacksquare 120^\circ$). Les points de plus grande taille correspondent aux Δ moyens déterminés sous réseau par sous réseau (noté $\langle \Delta X \rangle$ et $\langle \Delta Y \rangle$). Les barres d'erreur représentent les écarts types de chacune des distributions. Le point \odot est la moyenne des ΔX et ΔY incluant les trois sous réseaux : $\langle \langle \Delta X \rangle \rangle = 1 \text{ nm} \pm 8 \text{ nm}$ $\langle \langle \Delta Y \rangle \rangle = 1 \text{ nm} \pm 9 \text{ nm}$. Ces valeurs moyennes égales à 1 nm constituent un indicateur de la bonne qualité de l'ajustement. Il faut noter les valeurs élevées mais similaires des écarts types associés aux deux directions X et Y. Un bruit imputé à l'algorithme de détection des centres ou à une réelle fluctuation de position dans le réseau expérimental peut être à l'origine des forts écarts types constatés.

La partie droite de la figure IV.20 montre une légère anisotropie (*i.e.* différence entre les écarts moyens des éléments 0° , 60° et 120°) qui peut être schématisée comme ci-contre. Dans ce schéma, les éléments de chaque sous réseaux ont été décalés de leur position idéale en prenant en compte les valeurs moyennes déterminées précédemment.

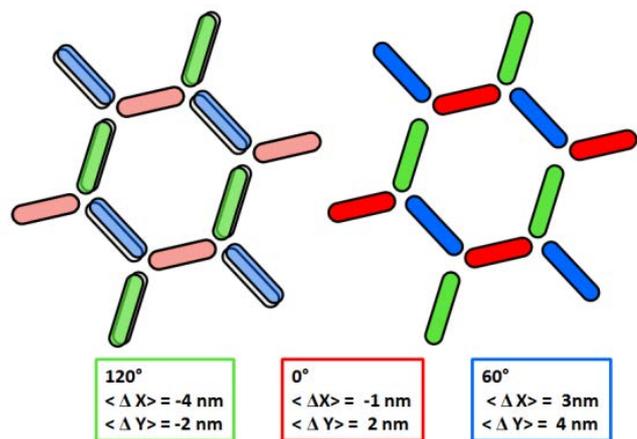


Figure IV. 21 Schéma illustrant le décalage des sous réseaux à leur position idéale

3.1.4. Longueur et largeur

Grâce au logiciel libre Gwyddion, il a été possible d'extraire de l'image la longueur, la largeur et l'orientation du grand axe pour chaque nano-aimant. La figure IV.22 présente les longueurs (L) et les largeurs (l) en fonction de l'orientation du grand axe des nano-aimants. Les larges droites bleue et rouge représentent les moyennes des distributions. Les droites les plus fines de même couleur sont les écarts types moyens des distributions. Pour chacun des sous réseaux (\bullet), aucune des moyennes ne s'écarte de façon importante ni de la longueur, ni de la largeur moyenne. Une lecture plus fine du graphique présenté en figure IV.22 indique que les éléments à 60° ont tendance à être plus courts que la moyenne ($\langle \Delta L \rangle = -6 \text{ nm}$), et que les éléments 120° ont tendance à être plus longs ($\langle \Delta L \rangle = +5 \text{ nm}$). Le plus gros écart à la largeur moyenne concerne le sous réseau 120° avec un $\langle \Delta l \rangle$ égale à $+3 \text{ nm}$.

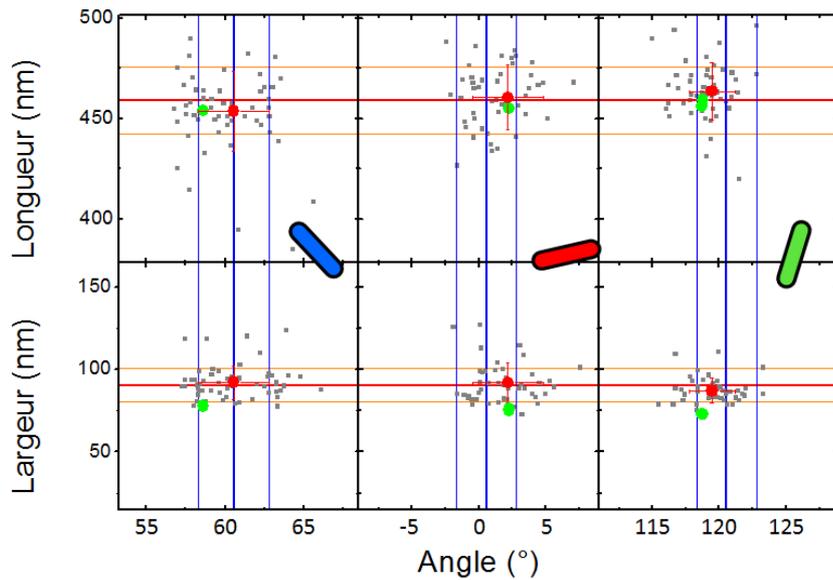
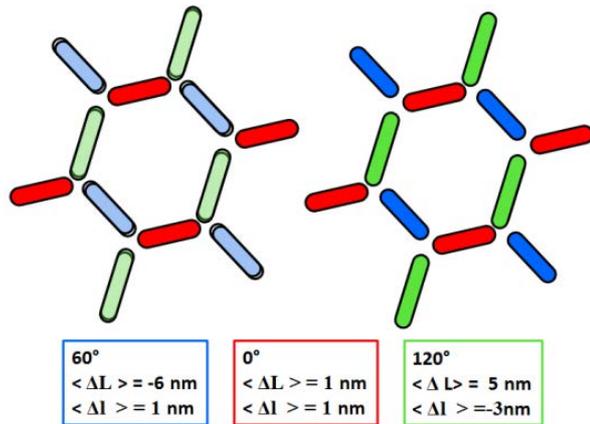


Figure IV. 22 Largeur et longueur des éléments constituant le réseau kagomé en fonction de l'orientation de leur grand axe.

Le schéma ci-contre donne une image du réseau expérimental moyen en prenant en compte les variations de largeurs et de longueurs sous réseau par sous réseau. Par exemple, les éléments nommés 60° (représentés en bleu) voient leurs longueurs réduites de 6 nm et leurs largeurs augmentées de 1 nm. Les décalages moyens en position déterminés dans la partie précédente sont également pris en compte dans cette représentation.



3.1.5. Forme des bouts d'éléments et images moyennées

Afin de déterminer si les formes des bouts de brins présentent des différences entre sous réseau ou même une asymétrie particulière, nous avons tout d'abord découpé l'image complète du réseau en sous images comprenant les deux types de vertex. La découpe en sous images est effectuée en utilisant le logiciel Mathematica. Les images découpées sont des carrés centrés grâce aux coordonnées des éléments fournis par Gwyddion (détection de centre d'îlots). La figure IV.23 présente à titre d'exemple un ensemble de 6 images. Au premier abord, il est difficile d'identifier une différence liée à un type d'élément.

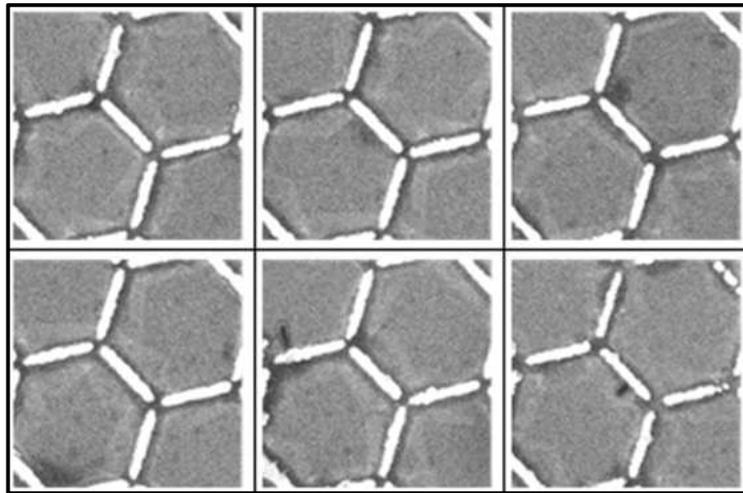


Figure IV.23 Exemple de 6 sous images comprenant les deux types de vertex

Ainsi, pour aller plus loin dans cette analyse, nous avons construit une image moyenne comprenant les deux types vertex (Y et λ) à partir des sous images. Ces images subissent ensuite un traitement de correction de décalage en utilisant le logiciel WSxM [GOM96].

Une fois ces décalages corrigés, nous avons effectué la moyenne sur plus de trente sous images. L'image moyennée est présentée sur la figure IV.24a. Afin de faire ressortir les bords des éléments, cette image en niveaux de gris est convertie en image ne comportant que deux niveaux de couleur (noir et blanc). L'image moyenne à deux niveaux de couleur (figure IV.24b) permet de voir s'il existe une déformation systématique de la forme des bouts de brins. Aucune différence notable n'est relevée. On notera tout de même que l'espacement entre les éléments 0° et 120° du vertex de type Y est plus faible que les autres espacements. Cette remarque est cohérente avec l'analyse présentée précédemment dont les tendances sont synthétisées dans le schéma de la figure IV.24c.

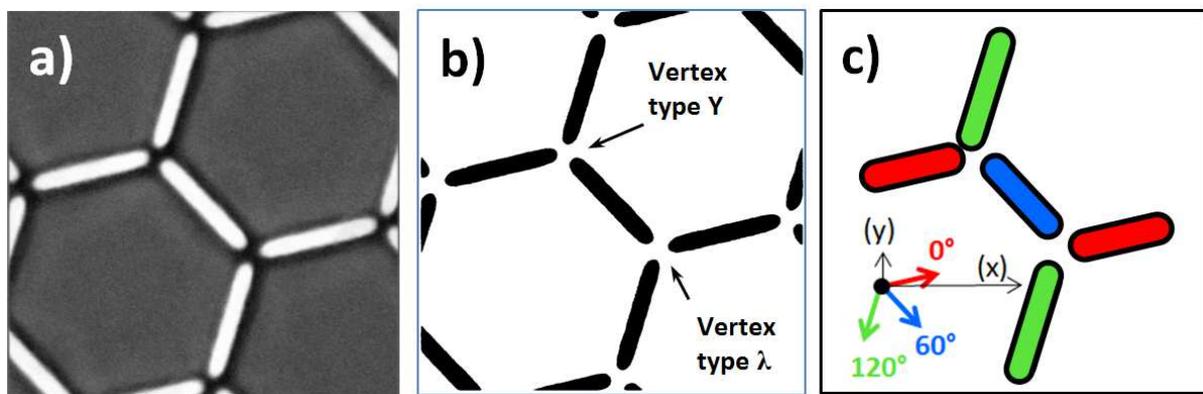


Figure IV.24 a) Image moyenne comprenant les deux types de vertex ; b) Image moyenne en deux niveaux de couleur ; c) Schéma synthétisant l'analyse précédente.

De même, il est possible de vérifier les tendances mesurées précédemment concernant les longueurs et les largeurs. Les points ● sur la figure IV.22 correspondent aux longueurs et aux largeurs déterminées à partir de l'image moyenne. Si les valeurs extraites de l'image moyenne sont généralement plus basses que celles obtenues en traitant le réseau élément par élément, les tendances constatées restent les mêmes : les éléments du réseau 120° sont globalement plus fins.

Dans le but de valider ou d'invalider un effet de la topographie du réseau, nous avons effectué des simulations micromagnétiques en gardant à l'esprit les tendances exposées précédemment.

3.1.6. Simulations micromagnétiques

Afin de voir l'impact de cette anisotropie topographique du réseau, nous avons donc réalisé des simulations OOMMF en niveaux de gris avec un masque dans lequel 2 brins sont décalés de 15 nm vers l'intérieur (brin 2 et 3 figure IV.25) du vertex et 1 brin est décalé de 15 nm vers l'extérieur (brin 1 figure IV.25). Le résultat de la simulation est donné figure IV.25.

On constate bien que le renversement de l'aimantation ne se fait pas de la même manière lorsque le champ est parallèle ou à 60° du brin qui est légèrement décalé vers l'extérieur. Lorsque le champ est parallèle au brin 1 décalé, le renversement se fait en 3 étapes qui correspondent au renversement dans l'ordre du brin oblique gauche (3), du brin parallèle au champ (1) et du brin oblique droit (2).

Lorsque le champ est à 60° du brin décalé, le renversement se fait en 2 étapes qui correspondent au renversement dans l'ordre des deux brins (2) et (3), suivi de celui du brin décalé (1).

Même si une anisotropie dans le renversement du réseau peut être reproduite, dans aucun de ces scénarios le brin aligné dans la direction du champ se retourne en dernier. Ce décalage ne peut donc pas être mis en cause pour expliquer l'anisotropie du renversement.

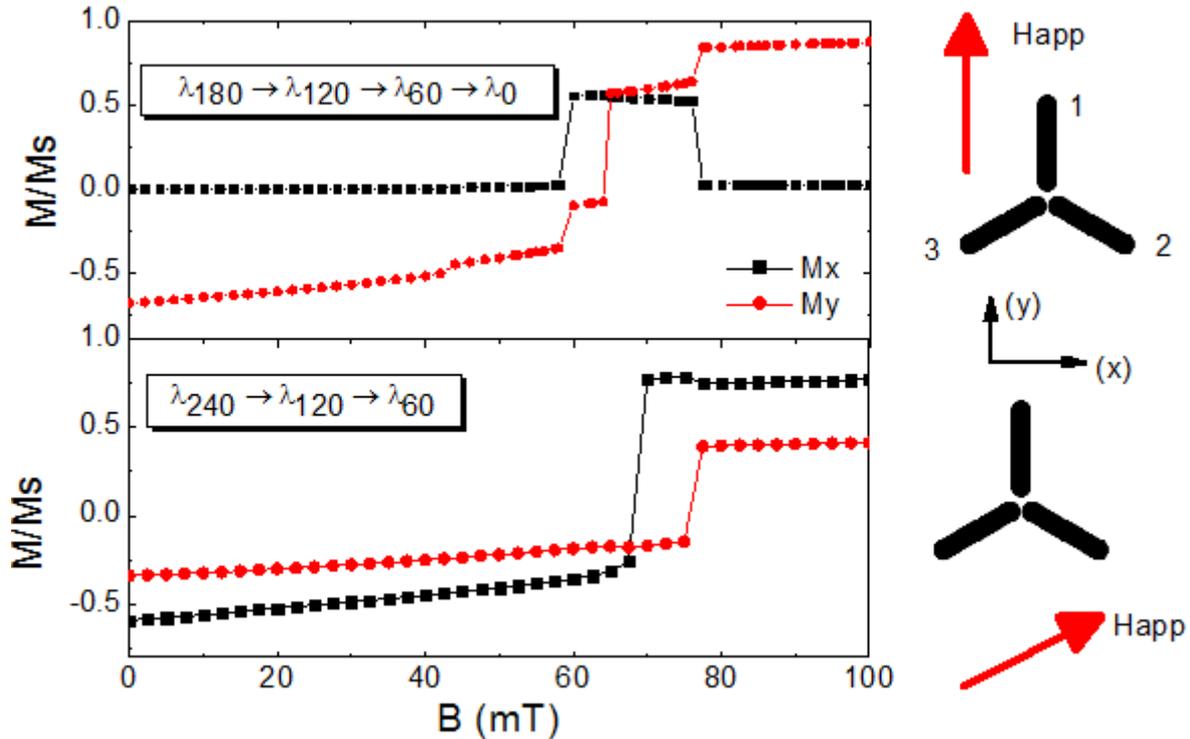


Figure IV.25 Retournement séquentiel de l'aimantation dans un vertex dont l'un des brins a été déplacé selon les mesures qui ont été faites de la topographie du réseau. Le champ est appliqué selon deux directions.

3.2. La piste de l'anisotropie de volume

Une autre source de la brisure de symétrie pourrait être l'anisotropie magnétique intrinsèque de la couche de cobalt. Nous avons vu dans le chapitre III que le champ d'anisotropie du cobalt était égal à 27 Oe. A l'aide des expressions du modèle de Stoner et Wohlfarth, nous en déduisons une anisotropie intrinsèque $K_u = 2 \times 10^3 \text{ J/m}^3$. Cette dernière provient essentiellement de la configuration du dépôt du cobalt.

Nous avons réalisé des simulations micromagnétiques en intégrant un axe d'anisotropie d'ordre 2 dans la couche de cobalt, qui sera identique à tous les aimants en intensité et en direction. Nous voyons dans la figure IV.26 qu'il existe une zone du diagramme de phase dans laquelle le comportement expérimental peut être reproduit. Ce dernier se situe dans la zone d'anisotropie positive, d'intensité supérieure à $2.2 \times 10^4 \text{ J/m}^3$. On voit qu'avec un champ appliqué à 0° un état interdit se forme par le renversement des deux brins non colinéaires à la direction d'application du champ. Cependant la valeur de l'anisotropie semble prohibitive aux vues des mesures faites sur la couche pleine. De plus, dans la configuration champ appliqué à 60° , la séquence de renversement n'est pas reproduite.

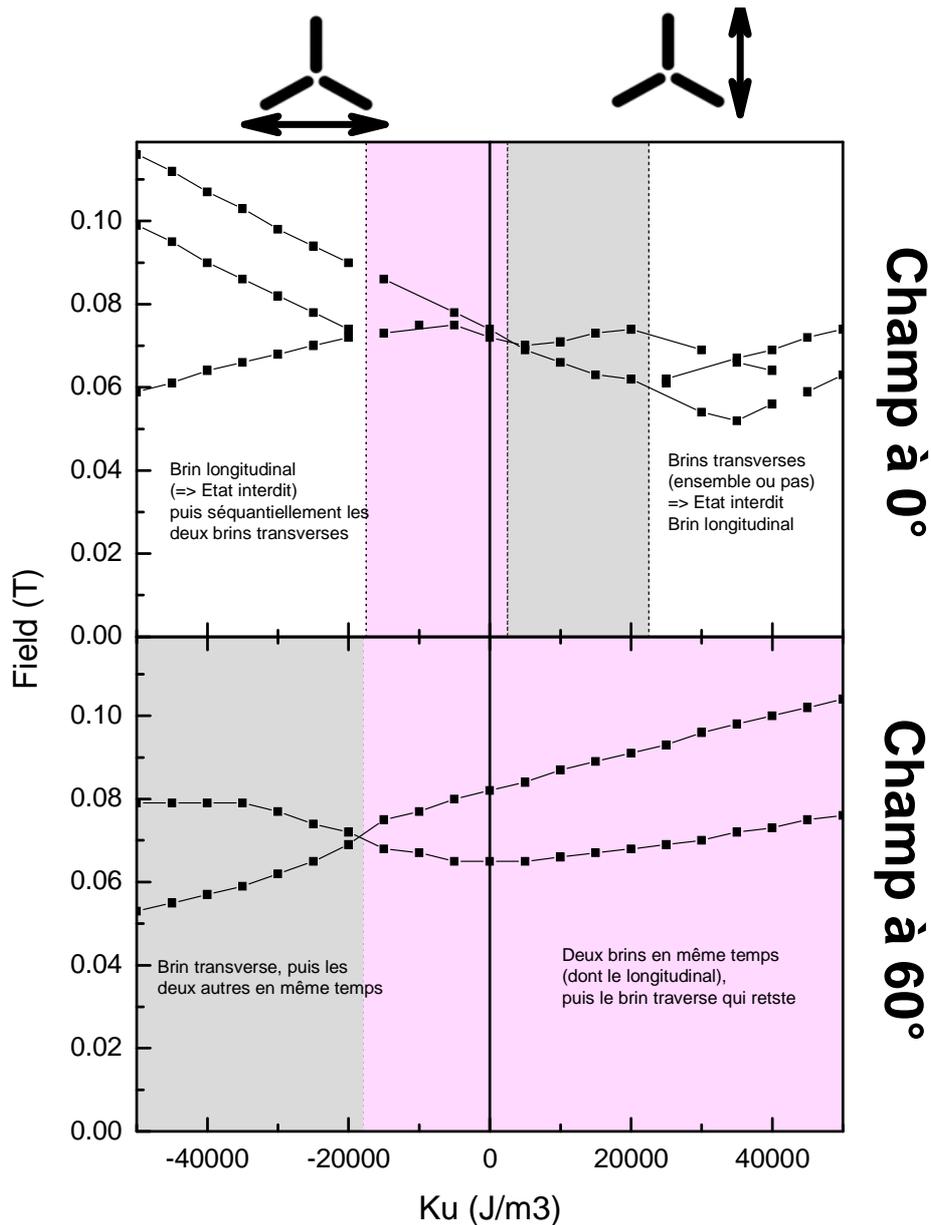


Figure IV.26 Champs de transitions entre les différentes configurations micromagnétiques lors du renversement du vertex en fonction de la direction d'anisotropie de la couche de cobalt, l'intensité de la constante d'anisotropie et la direction d'application du champ magnétique.

3.3. Convergence des deux approches

L'anisotropie de la topographie du réseau n'est pas en mesure de reproduire les étapes de retournement observées expérimentalement. L'introduction d'une anisotropie de volume pourrait expliquer le retournement tardif de l'élément aligné dans la direction du champ magnétique, cependant avec des valeurs de la constante d'anisotropie qui ne nous

paraissent pas raisonnables. Nous avons tenté de combiner les deux approches. A l'heure actuelle, nous n'avons pas trouvé de combinaison qui permette de reproduire les résultats expérimentaux.

III- Etude de la chiralité des états interdits : annihilation en fonction de l'angle d'application du champ magnétique

L'objectif de cette partie est de mettre en évidence expérimentalement la chiralité des états interdits dont la description est faite dans le chapitre II traitant le micromagnétisme. L'astroïde de l'état interdit montre la possibilité de sortir de cet état selon 3 directions en renversant un des trois brins (figure IV.27). Le parallèle entre les simulations et les expériences à 0° montre que l'état interdit est annihilé par le renversement du brin vertical (figure IV.27). Les simulations montrent que si l'on applique le champ magnétique avec un faible désalignement, alors l'état interdit s'annihilera avec une valeur différente selon que la chiralité soit CW ou soit CCW.

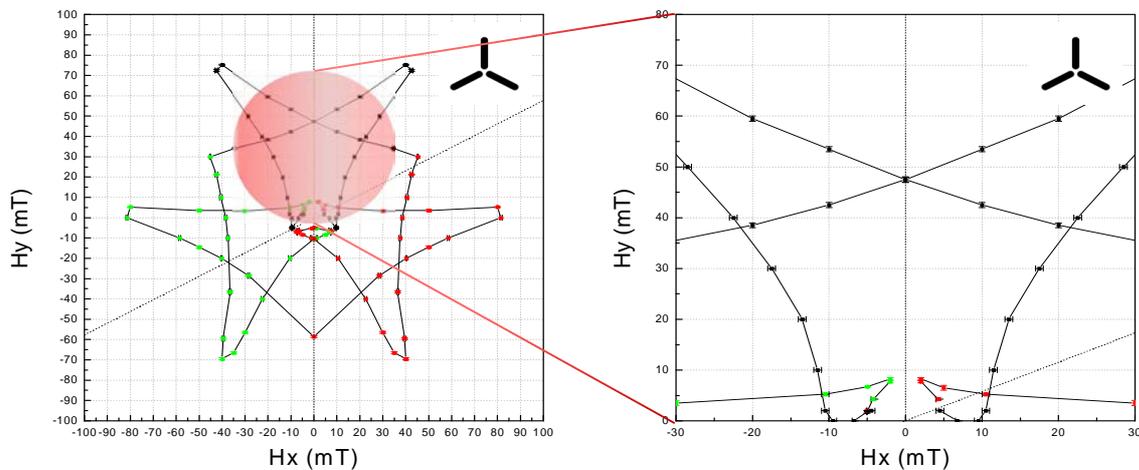


Figure IV.27 *A gauche, astroïde de l'état interdit pour un vertex λ ; A droite, agrandissement sur les champs de renversement du brin vertical.*

Comme nous pouvons le voir sur la figure IV.28, si l'on applique un champ magnétique avec un angle de -10° alors l'état interdit présentant une chiralité CW (courbe rouge) disparaîtra pour une valeur de champ plus faible que si la chiralité était CCW (courbe bleue).

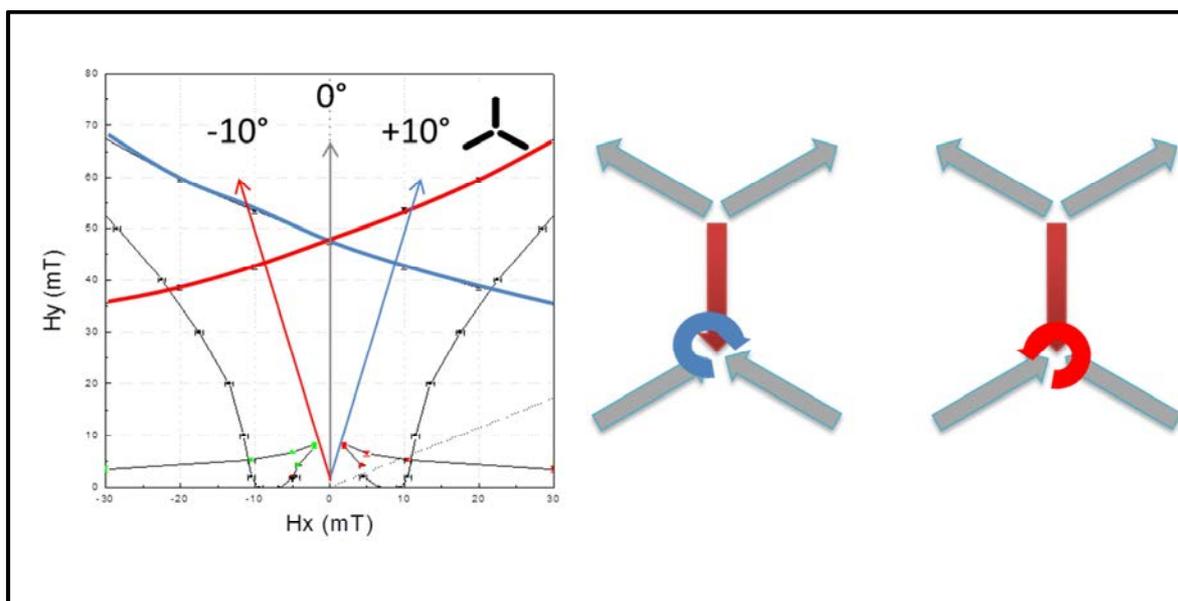


Figure IV.28 Zoom de l'astroïde de l'état interdit, la courbe bleue représente les champs de renversement du brin vertical pour une chiralité CW et la courbe rouge représente les champs de renversement du brin vertical pour une chiralité CCW. Les flèches illustrent les champs appliqués à direction fixe. Il est donc possible de mettre en évidence expérimentalement la présence de chiralité en appliquant des champs magnétiques avec de faibles angles sur les états interdits.

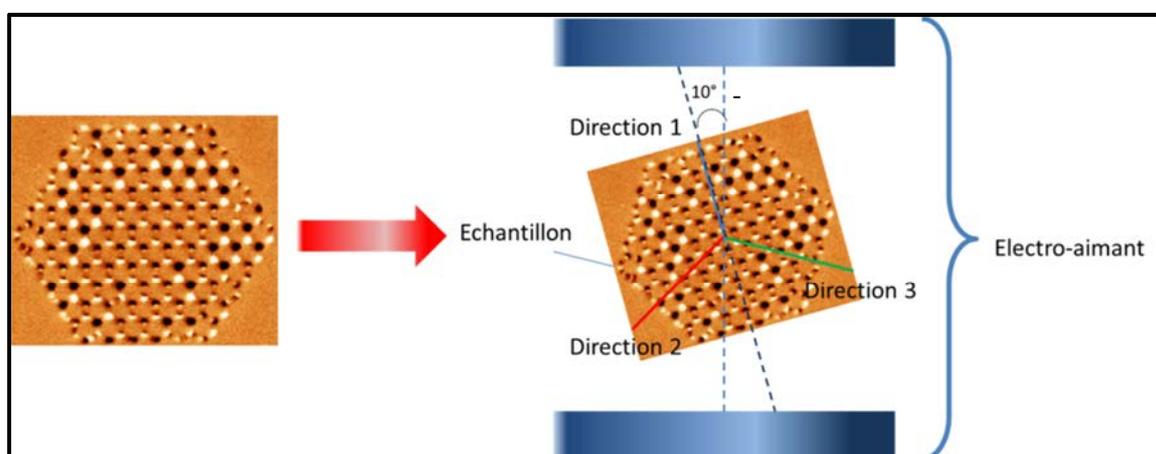


Figure IV.29 Schéma illustrant l'expérience à -10° , après saturation et génération d'états interdits à 0° . L'échantillon est placé dans l'électro-aimant avec un angle de -10° par rapport à la direction 1.

1. Etude de la chiralité des états interdits : Protocole expérimental

La mise en évidence expérimentale de la chiralité associée aux états interdits nécessite dans un premier temps d'en générer un maximum afin d'obtenir une statistique suffisante sur les

mesures. Pour cela, l'échantillon est préparé à 0° comme il est décrit dans le paragraphe II.1 à la différence que, le renversement d'aimantation est arrêté au pas de champ pour lequel le réseau présente un maximum d'états interdits soit à 1,15 kOe.

Une fois l'échantillon préparé dans ces conditions, il est placé dans l'électroaimant avec un angle de -10° par rapport à la direction 1 (figure IV.29). Ensuite, une image MFM est prise à rémanence tous les 50 Oe. Ceci permet de relever les champs de disparition des états interdits. Cette expérience est répétée avec un angle de 10° . Une fois les champs de renversement des états interdits relevés, les valeurs sont ensuite comparées à l'astroïde de l'état interdit réalisée numériquement.

Si la visualisation directe des configurations micromagnétiques des bouts de brin et ainsi des chiralités des états interdits avait été possibles, nous aurions pu démontrer sans ambiguïté l'effet prédit par le calcul micromagnétique. Cependant, nous n'avons pas été en mesure de résoudre les configurations de bout de brin ni par MFM, ni par XPEEM. Afin de pouvoir comparer les champs de disparition des états interdits à $+10^\circ$ et -10° , nous faisons l'hypothèse que lors de leur préparation, chaque état interdit possède à chaque préparation la même chiralité. Ceci peut être vrai pour une minorité de monopole d'où l'intérêt d'en stabiliser un maximum.

2. Résultats

Les résultats sont reportés dans la figure IV.30.

Dans cette expérience, la majeure partie des états interdits présente un comportement non anticipé par les simulations micromagnétiques. Sur 18 états interdits, chaque état interdit étant toujours localisé sur le même vertex, 15 disparaissent à des valeurs de champ paires lorsque le champ est appliqué à -10° et $+10^\circ$. Ce comportement est celui de la courbe Cyan de la figure IV.30.

Les courbes bleue et rouge sont en accord avec les simulations micromagnétiques puisque la valeur du champ de disparition de ces états interdits est supérieure lorsque l'on applique le champ à $+10^\circ$ (respectivement inférieure pour l'autre chiralité) et inférieure lorsque celui-ci est appliqué à -10° (respectivement supérieure pour l'autre chiralité). De plus, un état interdit du réseau présente une particularité : lorsque l'expérience est répétée une seconde fois, celui-ci ne présente pas les mêmes valeurs de champ d'annihilation et la courbe expérimentale (rouge) n'a donc pas la même allure (figure IV.30b).

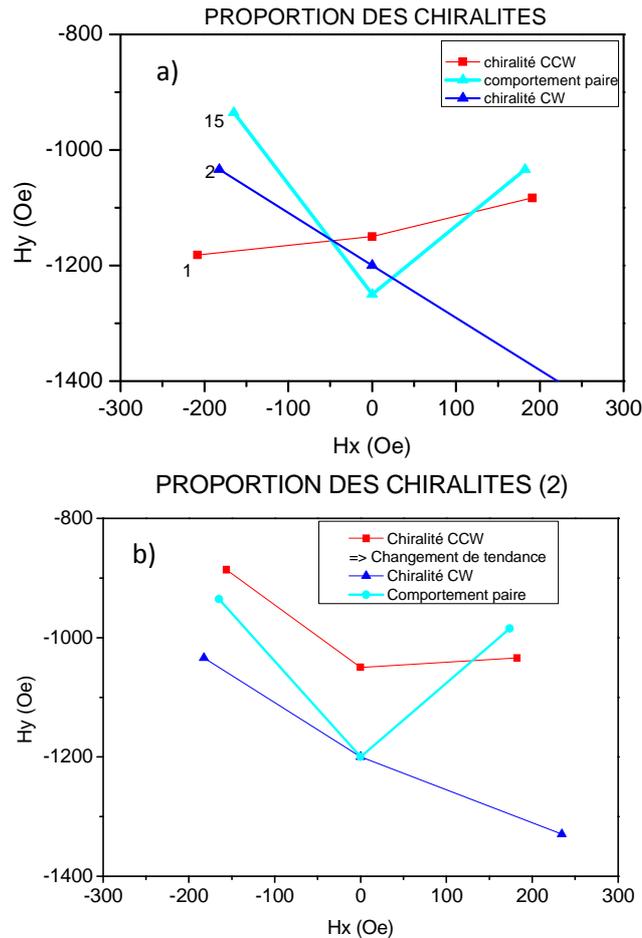


Figure IV.30 Courbes expérimentales représentant les champs de disparition H_x et H_y (à -10° , 0° , $+10^\circ$). a) première expérience, b) seconde expérience.

3. Discussion

Les résultats de l'étude des chiralités ne mènent pas à ceux prédits par les simulations micromagnétiques. Plusieurs origines peuvent être invoquées pour expliquer les résultats.

La première, la plus simple, repose sur la validité elle-même de l'hypothèse que lors de leur préparation les états interdits possèdent la même chiralité à chaque fois. Si la chiralité change lors de la préparation entre l'expérience à $+10^\circ$ et -10° , le comportement de la courbe cyan doit être observé.

Une seconde raison repose sur le fait que les états interdits se forment par paires (comme le montre la figure IV.31). La parité des courbes nous laisse envisager qu'au sein d'une paire de vertex, les 2 états interdits peuvent avoir les mêmes chiralités entraînant des orientations différentes des aimantations de bouts de brins du brin central. L'un sera orienté vers la droite et l'autre vers la gauche, ce qui aurait pour conséquence une valeur de champ de renversement d'aimantation identique si le champ est appliqué avec un angle négatif ou

positif. En effet, l'aimantation du brin se renverserait en commençant par une des deux extrémités si celle-ci est favorable sinon par l'autre extrémité.

Enfin, dans la partie sur le renversement d'aimantation à direction de champ fixe, nous avons montré l'existence d'une anisotropie dans les mécanismes de renversement d'aimantation du réseau. Cette anisotropie peut être l'origine de cette parité dans les champs d'annihilation des états interdits tout simplement par le fait qu'elle pourrait détruire la fermeture de flux au niveau du vertex. De ce fait, pour un champ appliqué à $+ 10^\circ$ ou $- 10^\circ$ l'annihilation de l'état interdit ne se fait pas forcément de façon monotone comme il est prévu dans les simulations.

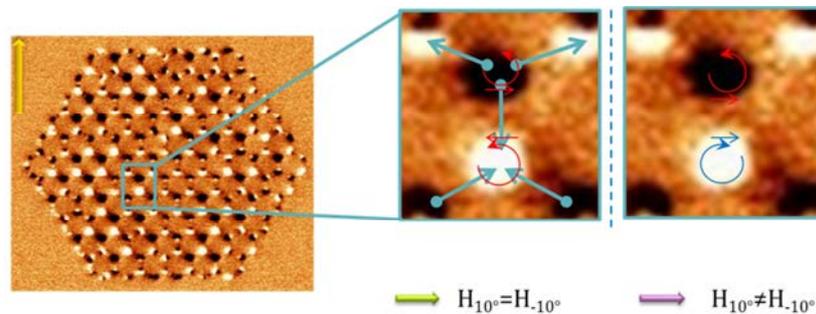


Figure IV.31 Illustration des différentes chiralités possibles dans un système de paires de vertex

Deux vertex possèdent cependant le comportement prédit, pour l'un de manière non reproductible. Statistiquement, nous ne pouvons pas assurer que ces faits sont significatifs et à l'heure actuelle, nous ne pouvons pas conclure sur l'existence ou non de chiralité de monopoles. Dans le futur, il sera nécessaire d'utiliser une technique de visualisation qui permette, pour chaque configuration stabilisée, une observation de la configuration des domaines de fermeture en bout de brin et la corrélérer au champ de retournement.

Bibliographie chapitre renversement du réseau kagomé

[CAS08]

C. Castelnovo, R. Moessner, and S. L. Sondhi, *Nature (London)* **451**, 42 (2008).

[MEN10]

Real-space observation of emergent magnetic monopoles and associated Dirac strings in artificial kagome spin ice

Elena Mengotti, Laura J. Heyderman, Arantxa Fraile Rodríguez, Frithjof Nolting, Remo V. Hügli and Hans-Benjamin Braun, *Nature Physics*, Article, PUBLISHED ONLINE: 17 OCTOBER 2010 | DOI: 10.1038/NPHYS1794

[LAD10]

Direct observation of magnetic monopole defects in an artificial spin-ice system

S. Ladak, D. E. Read, G. K. Perkins, L. F. Cohen and W. R. Branford, *Nature Physics*, Letter, PUBLISHED ONLINE: 11 APRIL 2010 | DOI: 10.1038/NPHYS1628

[SCH10]

Charge ordering of magnetic dipoles in artificial honeycomb patterns

A. Schumann, B. Sothmann, P. Szary, and H. Zabel, *Appl. Phys Lett.* **97**, 022509 (2010)

[GOM96]

J. M. Gómez-Rodríguez et al., *Phys. Rev. Lett.* **76**, 799 (1996)

Chapitre V. Vers une désaimantation thermique

L'un des enjeux encore actuel dans le domaine des glaces de spin artificielles est la démonstration des effets qui peuvent être liés au caractère dipolaire de l'interaction entre nano-aimants et notamment du caractère longue portée de cette interaction. L'existence de l'interaction dipolaire longue portée entraîne la levée de dégénérescence de l'état fondamental et induit l'apparition de nouvelles phases qui n'existent pas dans un modèle d'interaction entre premiers voisins. Cependant, afin de voir apparaître ces nouvelles phases, la température effective du système doit être fortement réduite. De manière historique, différentes stratégies ont été utilisées.

D'une part, des désaimantations sous champ magnétique alternatif et tournant ont été utilisées [WAN07][KE08][ROU11] et les températures atteintes ont permis de montrer pour un système que le modèle permettant de décrire les résultats expérimentaux est le modèle de glace de spin dipolaire [ROU11]. Cependant, il est raisonnable de penser que toutes histoires en champ ne permettent pas de sonder la totalité de l'espace des configurations et d'accéder aux configurations de plus basses énergies. En considérant que la température nécessaire pour un élément mésoscopique macrospin de surmonter la barrière d'énergie pour se renverser est prohibitive, des désaimantations purement thermique n'ont été testées que récemment [MAR13] et se sont cantonnées à des blocs de réseaux kagomé sans possibilité d'analyse à longue distance [FAR13a][ARN12]. Des désaimantations thermiques [FAR13a] et des configurations natives (as grown) [MOR11] ont été réalisées et observées sur des réseaux carrés.

Dans cette étude, nous avons utilisé un matériau original, un alliage ferrimagnétique CoGd qui possède une température de Curie telle que le matériau lui-même peut être désaimanté sans altérer ni le matériau, ni les nanostructures. Avec sa température de Curie de 200°C, il sera possible de désaimanter les nanostructures en passant la température de Curie et en ramenant la température de l'échantillon à température ambiante. Nous allons montrer que les configurations observées ne sont pas celles prévues par le modèle dipolaire de spin à

l'équilibre ce qui montrera l'importance du processus hors équilibre de la formation de domaines et de parois d'antiphase. Nous montrerons également l'ordre de charge partiel qui a pu être obtenu expérimentalement dans nos réseaux kagomé.

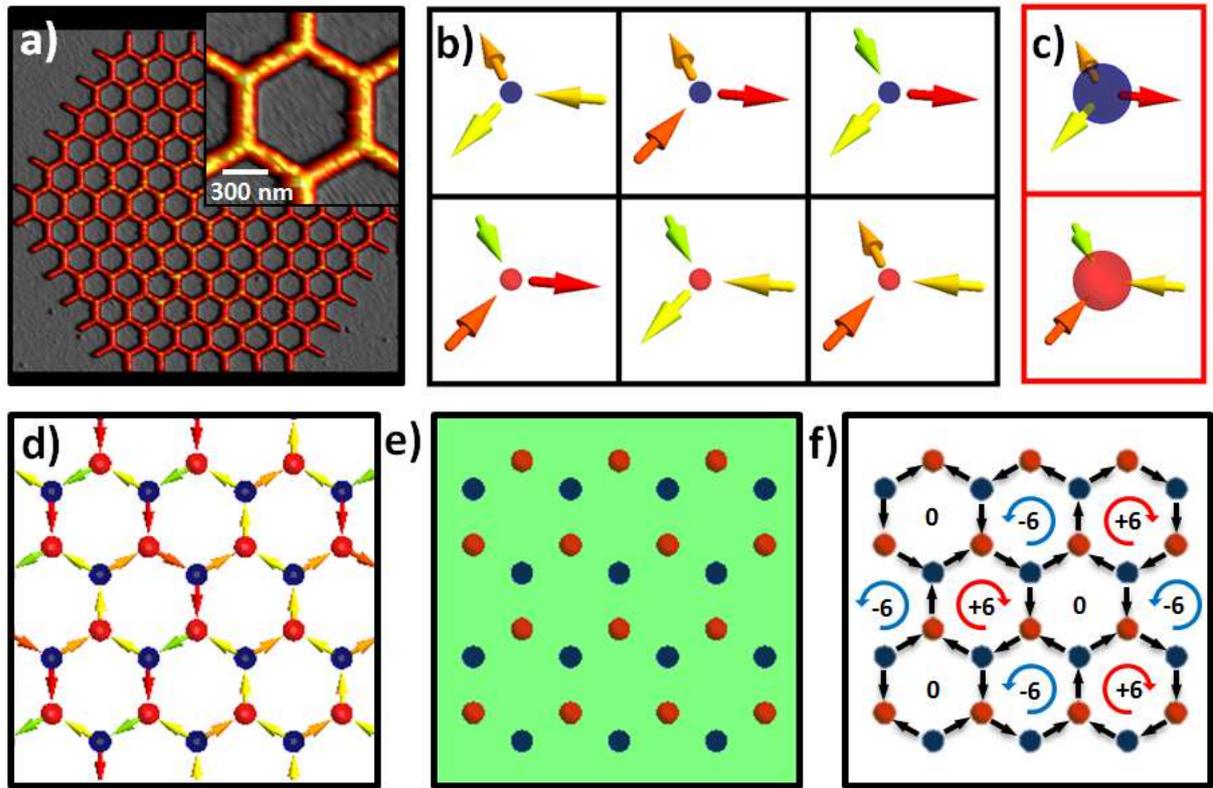
I- La quête de l'état fondamental

Dans les glaces de spin frustrées, l'Hamiltonien du système est décrit en termes d'interaction de spin. Ces interactions et la topologie du réseau kagomé font que les configurations doivent se soumettre aux règles de la glace ou règles de Bernal-Fowler. Pour un réseau bidimensionnel qui possède trois spins équivalent à chaque vertex (voir fig V1.a pour notre réalisation expérimentale), les règles de la glace de spin s'expriment de la manière suivante : à chaque vertex, seules sont permises les configurations possédant deux spins sortant et un spin entrant (figure V1.b, ligne supérieure) ou deux spins entrant et un spin sortant (figure V1.b, ligne inférieure). A l'équilibre et en excluant le régime paramagnétique dans lequel aucune corrélation entre spin existe, les règles de la glace de spin doivent toujours être suivies. Les configurations permises peuvent naturellement être représentées pour une charge magnétique ± 1 à chaque vertex (fig V1.b). Une violation de la règle de la glace de spin entraîne l'apparition d'une charge ± 3 (fig V1.c).

Lorsque l'interaction longue portée c'est à dire au-delà des premiers voisins est considérée, le modèle est appelé glace de spin dipolaire ou DSI. Il a été décrit pour la première fois par Moeller and Moessner [MOE09] puis Chern et al. [CHE11] et possède en terme de stabilisation de phases ordonnées un comportement plus riche. En effet, la variation de l'entropie du système avec la température présente quatre plateaux, quatre plateaux correspondant à des phases ordonnées ou non du réseau que nous allons décrire dans la suite.

A haute température, le système est dans le régime paramagnétique, régime dans lequel les règles de la glace de spin sont violées. Lorsque la température est réduite, le système rentre dans l'état glace de spin ou spin ice dans lequel seuls les états permis sont présents. En poursuivant la réduction de la température, le système rentre dans l'état Spin Ice II. Dans cet état décrit récemment [MOE09][CHE11], les spins des brins continuent à fluctuer alors que la configuration des charges magnétiques est gelée. Une phase ordonnée est prédite avec une alternance de charges positives et de charges négatives lorsque l'on se déplace de vertex en vertex (voir fig. V.1 d et V.1 e). Enfin, à très basse température, le système rentre dans son état fondamental composé d'un cristal de boucles dans lequel à la fois les charges et les spins sont totalement ordonnés [LAD12] (fig V.1f).

L'observation des configurations stabilisées dans nos réseaux kagomé va révéler un ordre de charges partiel avec des spécificités liées au type de désaimantation choisi.



g)

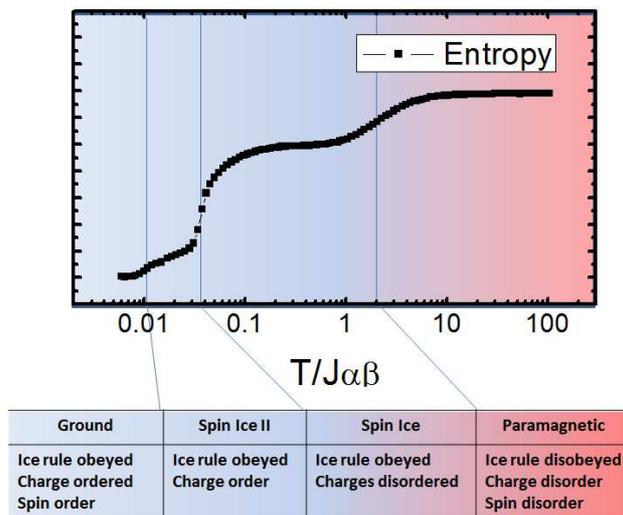


Figure V.1 **a)** Image de microscopie à force atomique d'un réseau kagomé connecté de nanoaimants de CoGd. **b)** Dessins des six configurations permises par les règles de la glace pour un vertex. Les sphères bleu et rouge de petit rayon correspondent respectivement aux charges magnétiques -1 and +1 d'un vertex. **c)** Dessins des configurations interdites. Les sphères bleu et rouge de grand rayon correspondent respectivement aux charges magnétiques -3 and +3 d'un vertex. **d)** Configurations de spins et de charges dans le régime Spin Ice II. **e)** Le monodomaine de charges dans le régime Spin Ice II. **f)** Dans le régime Spin Ice II, le monodomaine de boucles. **g)** Variation de l'entropie en fonction de la température pour un réseau kagomé dans le modèle DSI. La température est normalisée au coefficient de couplage premiers voisins.

II- Les désaimantations et réalisations expérimentales

1. Le réseau et son observation

1.1. Réseau et détermination des configurations

Le réseau est composé d'éléments connectés réalisés à partir d'un film mince de 10nm d'épaisseur avec la composition $\text{Co}_{0.7}\text{Gd}_{0.3}$, un matériau ferrimagnétique qui possède une température de Curie de 480 K (voir le chapitre III, techniques expérimentales, [HAN89]). Les nanoaimants sont arrangés dans la géométrie kagomé sur une surface de $10\mu\text{m}\times 10\mu\text{m}$ et le réseau est composé de 342 éléments connectés de 140nm de large (figure V.2 gauche). La lithographie électronique et la gravure ionique ont été utilisées pour la fabrication du réseau.

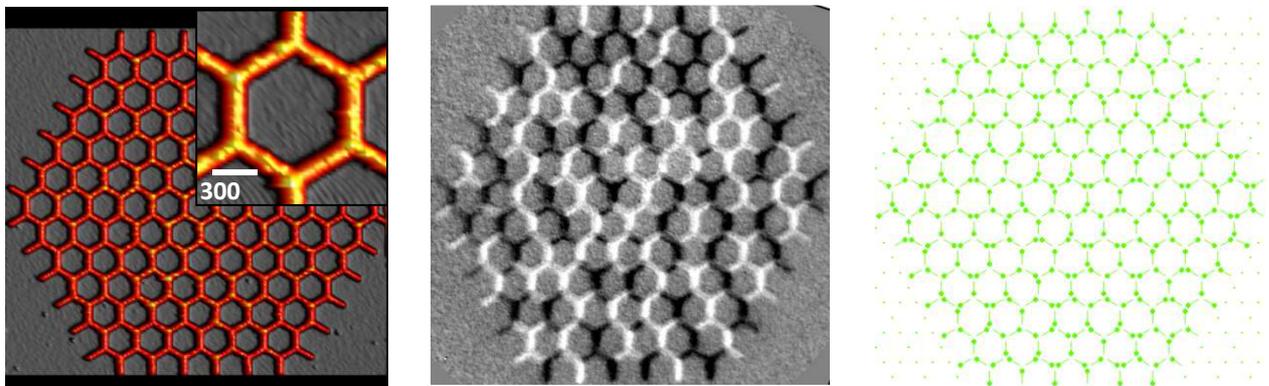


Figure V.2 *A gauche* : Image de microscopie à force atomique d'un réseau kagomé connecté de nanoaimants de CoGd ; *au centre* : Image obtenue par XPEEM ; *à droite* : fléchage des configurations permettant l'extraction des coefficients de corrélation, des domaines de charges et de spin.

Les configurations magnétiques ont été obtenues par microscopie XPEEM au seuil du cobalt (fig V.2 milieu). Afin d'augmenter le contraste de mesure, les mesures ont été réalisées à la température de l'azote liquide. Afin d'augmenter la statistique, 18 réseaux ont été observés. Lors des différentes observations ou désaimantation, aucune configuration interdite n'a été observée et aucune paroi de domaines dans les éléments n'a pas été observée. L'aimantation est toujours uniforme et alignée le long de l'axe des brins et mime ainsi le réseau de spin Ising multiaxes. Dans toutes les désaimantations, le réseau est dans une première étape saturé dans une direction dans le plan. Après désaimantation et mesure, le réseau est fléché ce qui permet l'extraction des coefficients de corrélation, des domaines de charges et de spin.

1.2. Analyse par microscopie de force magnétique

L'accès au microscope XPEEM étant restreint à quelques jours ou semaines dans l'année, nous avons tenté ces mêmes expériences au laboratoire à l'aide de la microscopie de force magnétique. Pour cela, plusieurs conditions d'imagerie ont été testées afin d'obtenir des conditions d'observation qui ne perturbent pas les configurations des nano-aimants. Au laboratoire, le microscope opère à température ambiante. Il n'est donc pas possible d'augmenter les contrastes en refroidissement l'échantillon à l'azote liquide.

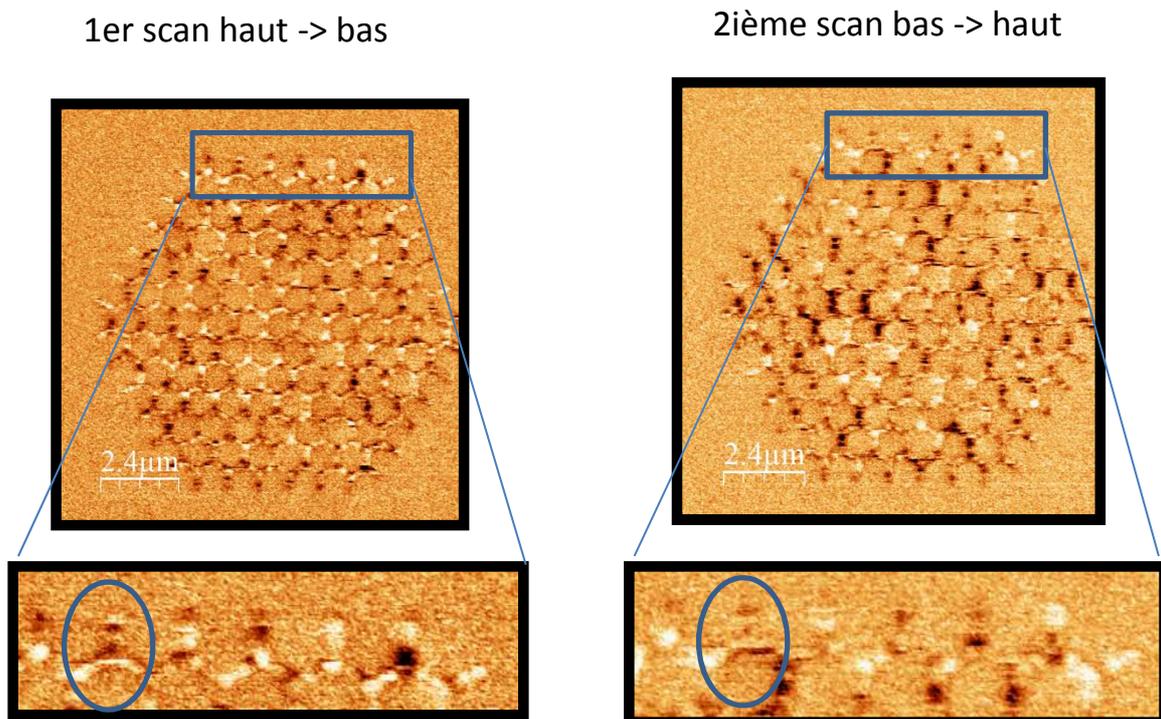


Figure V.3 Image de microscopie à force magnétique d'un même réseau lorsque le scan est réalisé du haut du réseau vers le bas (à gauche) et du bas du réseau vers le haut (à droite). Les zooms montrent les configurations de la dernière rangée de vertex.

Pointe standard

Dans un premier temps, des pointes standard à fort moment ont été utilisées. Ces dernières, achetées chez Atomic Force, possèdent un revêtement de CoCr d'épaisseur 50 nm. Lors de ces expériences, un contraste magnétique a pu être obtenu. Cependant, comme nous pouvons l'observer dans la figure V.3, le champ de fuite de la pointe magnétique influence fortement les configurations et cela indépendamment des conditions d'observation (à différentes hauteurs de vol ou amplitude de vibration de la pointe). En effet, le même réseau observé à l'aide d'un balayage du haut vers le bas et du bas vers le haut de l'image ne présente pas les mêmes configurations micromagnétiques. Cela se révèle flagrant sur les zooms de la figure V.3.

Pointe bas moment

Dans un second temps, des pointes bas moment ont été utilisées. Ces dernières, achetées chez Asylum, possèdent un revêtement de CoCr d'épaisseur 15 nm. Lors de ces expériences, aucun contraste magnétique n'a pu être obtenu et cela indépendamment des conditions d'observation (à différentes hauteurs de vol ou amplitude de vibration de la pointe). L'interaction entre la pointe et le champ de fuite des nanoaimants est alors trop faible et les configurations n'ont pas pu être déterminées.

Conclusion

Ces constatations ont mis un terme à l'observation des réseaux kagomé CoGd avec la seule technique d'observation de configurations de résolution suffisante présente au laboratoire. Les observations se feront exclusivement en XPEEM.

1.3. Les protocoles de désaimantation

Comme nous l'avons évoqué dans ce tapuscrit, le choix de la composition du $\text{Co}_{0.7}\text{Gd}_{0.3}$ a été motivé par la possibilité de réaliser une désaimantation thermique qui n'avait pas été réalisée avant le début de ce travail de thèse. Le second atout du $\text{Co}_{0.7}\text{Gd}_{0.3}$ est qu'il est magnétique même à température ambiante. Il est vrai que son aimantation est réduite de 50% (passage de 600 emu/cm³ à 4K à 300 emu/cm³) mais cette aimantation permet une comparaison inédite entre une désaimantation en champ alternatif tournant et une désaimantation thermique.

1.3.1. La désaimantation en champ

Durant la désaimantation sous champ magnétique, l'échantillon est placé sur un support tournant à 4000t/mn dans l'entrefer d'un électro aimant. Le champ de départ est supérieur au champ nécessaire pour saturer l'échantillon dans n'importe quelle direction dans le plan. Ensuite, l'intensité du champ est oscillante entre des valeurs positives et négatives tout en réduisant l'amplitude en fonction du temps comme cela est représenté sur la figure V.4. Ce protocole est identique à celui proposé et utilisé dans l'article historique de R. F. Wang et al [WAN07].

Etant donné que nous n'avons pas pu préparer les expériences qui se sont déroulées au synchrotron par l'optimisation de la désaimantation au laboratoire (impossibilité d'explorer les paramètres de la désaimantation par des observations MFM au laboratoire), nous avons utilisé les paramètres de désaimantation optimisés pour les réseaux kagomé de cobalt. Il n'est cependant pas exclu que ces paramètres ne soient pas optimum comme l'équipe a pu le montrer sur des réseaux kagomé de CoFeB ou comme cela a été montré par R. F. Wang et al [WAN07].

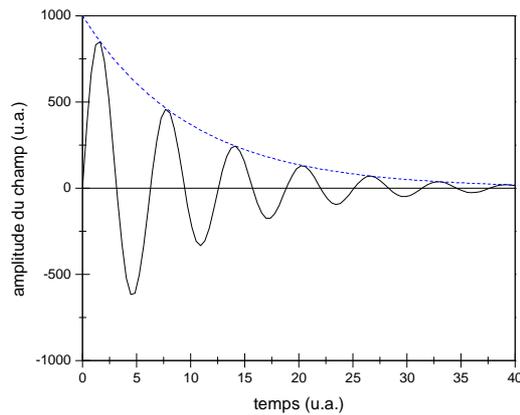


Figure V.4 Variation de l'intensité de champ magnétique avec le temps lors de la désaimantation sous champ magnétique.

1.3.2. La désaimantation thermique

Lors de la désaimantation thermique, l'échantillon est chauffé *in situ*. Etant donné que l'XPEEM se fait sous vide, il n'y a aucun risque d'oxydation de l'échantillon. La température est progressivement augmentée jusqu'à atteindre la température de Curie de l'échantillon. Après 5 minutes, le courant de l'élément chauffant est rapidement ramené à zéro et l'échantillon refroidit progressivement. Ce recuit est réalisé dans une chambre attenante au microscope. En l'espace de 15 minutes, l'échantillon est retransféré dans le microscope et ramené à la température de l'azote liquide.

1.3.3. Efficacité des désaimantations

Afin de vérifier que nos désaimantations soient « efficaces » ou montrer que nos réseaux possèdent des configurations isotropes après désaimantation, l'orientation de l'aimantation de chaque brin a été déterminée et l'aimantation dans les six directions des brins du réseau kagomé a été calculée.

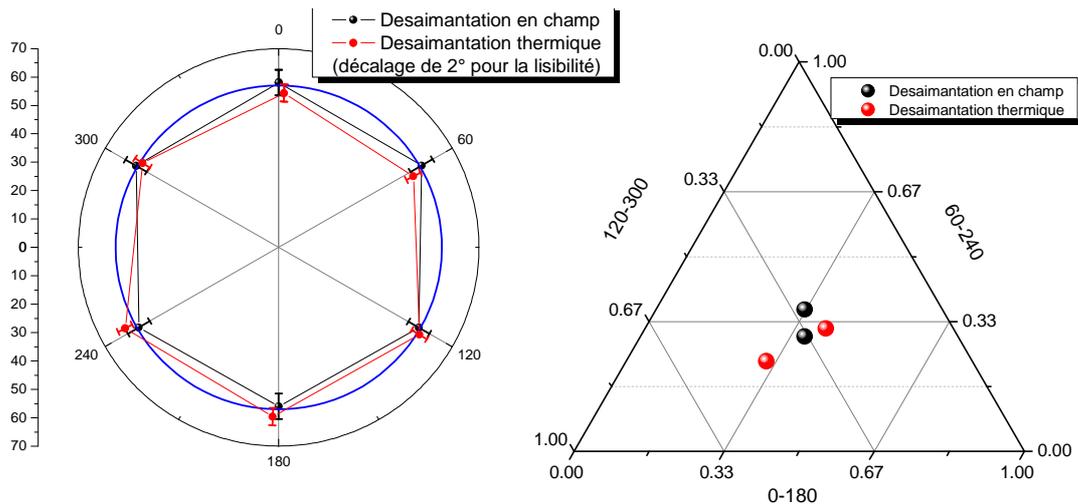


Figure V.5 **A gauche** : Distribution de l'aimantation dans les six directions des brins constituant le réseau kagomé. Le cercle bleu est la distribution attendue pour une répartition homogène dans les six directions ; **A droite** : Répartition des vertex. Plus on est proche du centre, plus la distribution est isotrope.

On observe sur la figure V.5 que la distribution est parfaitement isotrope pour la désaimantation en champ même en utilisant les paramètres optimisés pour la désaimantation des réseaux kagomé de cobalt. Il apparaît une très légère anisotropie unidirectionnelle pour la désaimantation thermique autour de 210° . Aucune trace de la saturation en champ avant désaimantation n'est perceptible. Ainsi, globalement, nos deux désaimantations sont efficaces. De plus, ces désaimantations tendent à montrer que les réseaux sont structurellement isotropes puisqu'aucune direction n'est privilégiée.

Une analyse fine des vertex montre que la distribution des configurations des vertex est isotrope pour la désaimantation en champ. Cependant, ici aussi, une anisotropie existe pour la désaimantation thermique.

La question maintenant est de savoir si les configurations que l'on obtient traduisent un comportement spin ice ou un comportement dipolar spin ice et de voir si la température effective atteinte par le réseau est suffisamment basse pour trancher entre les deux comportements.

2. Analyses

2.1. L'analyse du corrélateur de charges

L'un des indicateurs nous permettant de trancher entre un comportement SI ou DSI est le corrélateur de charges que nous avons déterminé à la fois pour la désaimantation en champ et la désaimantation thermique.

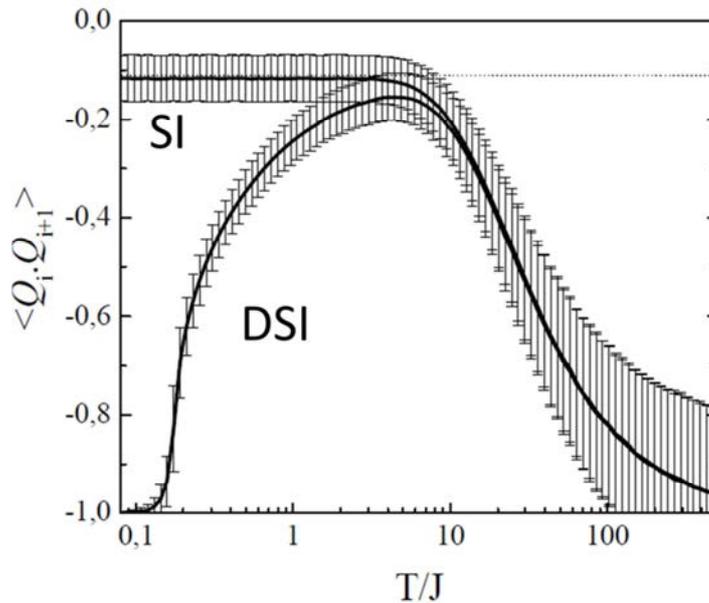


Figure V.6 Corrélateur de charges en fonction de la température pour un modèle en équilibre SI et DSI [ROU11]. La température est normalisée au couplage premier voisin. Ce dernier a été augmenté par rapport à la valeur du couplage dipolaire pour tenir compte de la proximité des éléments premiers voisins.

La figure V.6 reporte des simulations de l'évolution du corrélateur de charges en fonction de la température à l'équilibre. Selon le modèle utilisé, deux comportements différents sont observés en dessous de $T/J=10$ (J est la constante de couplage premiers voisins). Le fait que nous n'ayons pas trouvé de configuration interdite nous montre que nous sommes rentrés dans la variété SI ou DSI et que la température doit être inférieure à $10J$. En dessous de cette température, le corrélateur de charges soit sature à une valeur constante de $-1/9$ pour le modèle SI, soit rediminue pour le modèle DSI pour atteindre une valeur de -1 aux plus basses températures. Or plus le corrélateur de charge diminue, plus l'ordre de charge sera important. Une façon de regarder à quel modèle correspond nos deux désaimantations est donc de regarder leurs corrélateurs de charges.

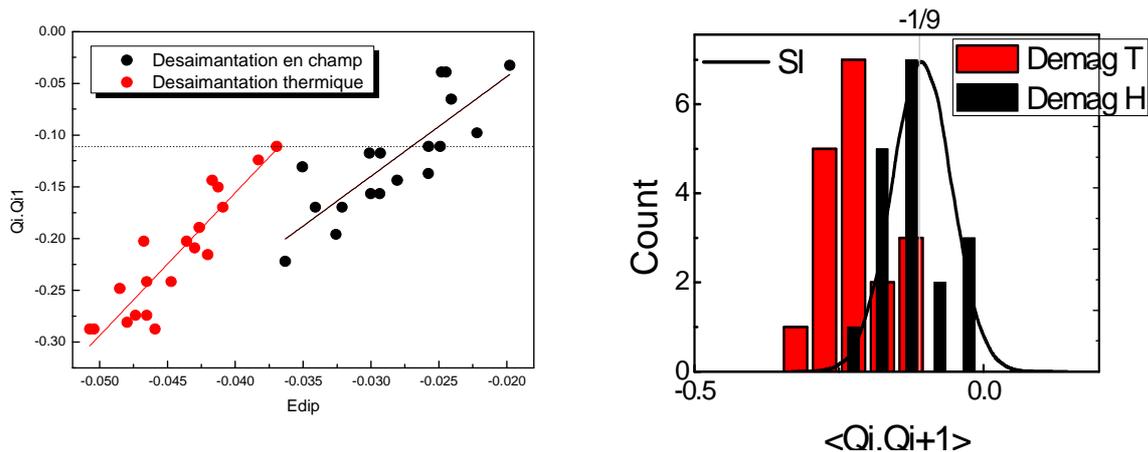


Figure V.7 **A gauche** : variation du corrélateur de charges en fonction de l'énergie dipolaire longue portée pour la désaimantation thermique (en rouge) et sous champ (en noir) ; **à droite** : nombre de configurations ayant un corrélateur de charges donné pour la désaimantation thermique (en rouge) et sous champ (en noir). La courbe noire représente la courbe attendue dans un modèle SI.

Sur la courbe gauche de la figure V.7, nous voyons très clairement deux contributions apparaître, l'une liée à la désaimantation en champ et l'autre liée à la désaimantation thermique. Cette dernière permet de diminuer le corrélateur de charges, compatible avec la minimisation de l'énergie dipolaire, longue portée. Pour cette désaimantation, tous les corrélateurs de charges calculés pour les configurations mesurées sont inférieurs à celui prévu dans le modèle SI. Le modèle DSI est compatible avec ce type de désaimantation.

Sur la figure V.7 droite, nous avons représenté les corrélateurs de charges en fonction de la densité de probabilité pour les deux désaimantations, mais également pour le modèle spin ice. Pour le modèle spin ice, nous avons représenté son corrélateur de charges par une gaussienne centrée en $-\frac{1}{9}$, comme attendu pour ce modèle.

Nous constatons que les deux désaimantations ne portent pas le même réseau à la même température. La température atteinte avec la désaimantation thermique permet de mettre sans ambiguïté en évidence les effets liés au caractère longue portée des interactions entre spin. La désaimantation en champ quant à elle ne porte pas le réseau à une température suffisamment basse pour faire apparaître une signature de l'interaction longue portée. Tout se passe comme si les propriétés du réseau pouvaient être décrites à l'aide du modèle spin ice ou dipolar spin ice à haute température. Elle permet cependant de montrer que les configurations atteintes ne sont pas pathologiques d'un réseau de mauvaise qualité (exempt de défaut, d'anisotropies etc...).

Si l'on se concentre sur la désaimantation thermique, le corrélateur de charges moyen mesuré est de -0.22 (avec une déviation standard de 0.06). Ce dernier est plus petit que $-1/9$ mais loin de -1 requit pour l'obtention du cristal émergent de charges. Une analyse précise

de la distribution de charges est nécessaire pour comprendre les valeurs intermédiaires obtenues.

2.2. L'analyse des domaines et des tailles de domaines

2.2.1. Domaines et parois

A l'aide des configurations de spin numérisées, nous avons déterminé la distribution spatiale des charges magnétiques localisées au niveau des vertex (Figure V.8). Nous voyons apparaître un ordre de charges partiel. Des domaines d'antiphase apparaissent dans lesquels une alternance de charges ± 1 existe. Ces domaines ont été coloriés en jaune et vert sur la figure V.8c. La taille de ces domaines peut atteindre 80 vertex soit 37% du nombre total de vertex du réseau. Ces domaines sont séparés par des parois d'antiphase dans lesquelles des charges identiques sont cotes à cotes (voir figure V.8d). Pour en dire plus et notamment sur le processus de relaxation qui a donné naissance à ces domaines, nous en faisons une analyse de morphologie et de taille.

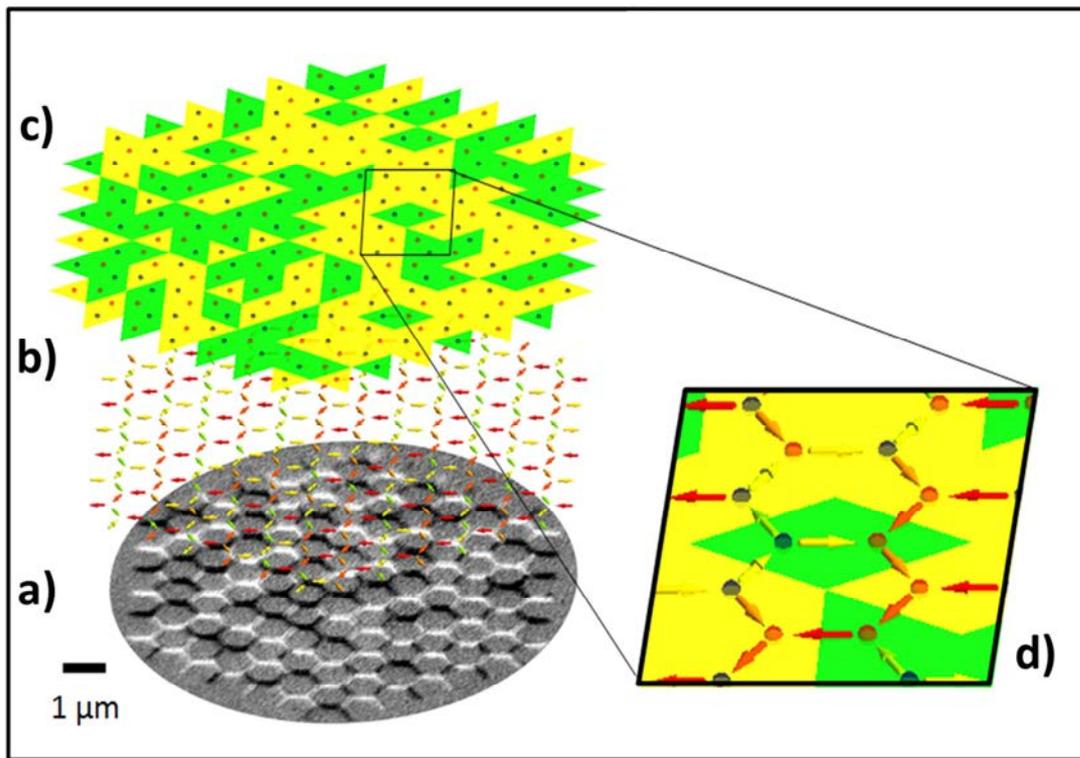


Figure V.8 **a)** Image XPEEM déterminée par mesure ; **b)** Configuration de spin déterminée à partir de l'image XPEEM ; **c)** Charges magnétiques associées aux configurations de spin et domaines d'antiphase ; **d)** Zoom sur le réseau afin de montrer l'existence de parois d'antiphase.

Comme on pouvait s'y attendre, plus les domaines de charges sont grands, plus le corrélateur de charge diminue et se rapproche de -1. On retrouve sur la figure V.9 que les

caractéristiques de la désaimantation en champ sont proches de celles prédites dans le modèle SI ou DSI haute température contrairement à la désaimantation thermique pour laquelle le caractère DSI 'basse température' est marqué.

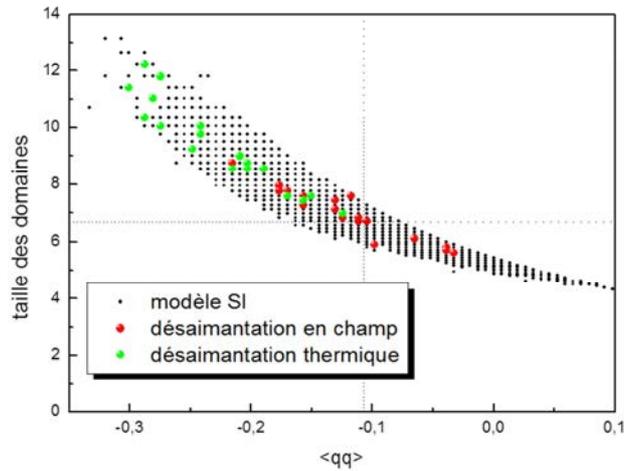


Figure V.9 Variation de la taille des domaines en fonction du corrélateur de charges.

Enfin, le corrélateur de charges est directement relié à la longueur totale des parois. En effet, lorsque l'ordre de charges est complet, le corrélateur de charges est égal à -1 . Lorsqu'il n'y a pas de corrélation entre les charges mais que les états interdits ont disparus des configurations possibles, le corrélateur de charges est égal à $-1/9$. Il doit y avoir une transition continue entre ces deux valeurs lorsque le périmètre total des parois tend vers zéro.

2.2.2. Morphologies

Après la taille des domaines, regardons maintenant leur morphologie. Pour expliciter les différentes formes attendues, intéressons-nous aux différentes configurations possibles pour des domaines allant jusqu'à six vertex et regardons également leur périmètre. Le périmètre est défini ici comme la longueur de la paroi du domaine.

Deux types de configurations sont possibles : une configuration dite dendritique et une configuration dite cyclique. La configuration dite dendritique correspond à une chaîne de charges magnétiques d'épaisseur égale à un vertex. La configuration dite cyclique est une chaîne de charges magnétiques dont l'épaisseur est supérieure à un vertex. Cette dernière configuration apparaît pour un nombre minimal de six vertex. De plus, selon que l'on adopte l'une ou l'autre des configurations, on constate que le périmètre est différent. En effet, pour

une configuration cyclique, le périmètre est plus petit que pour une configuration dendritique, comme nous le montre l'exemple d'un domaine composé de six vertex.

Une façon d'analyser la forme des domaines consiste donc à regarder le périmètre de chaque domaine en fonction du nombre de vertex qu'il possède, c'est-à-dire sa taille.

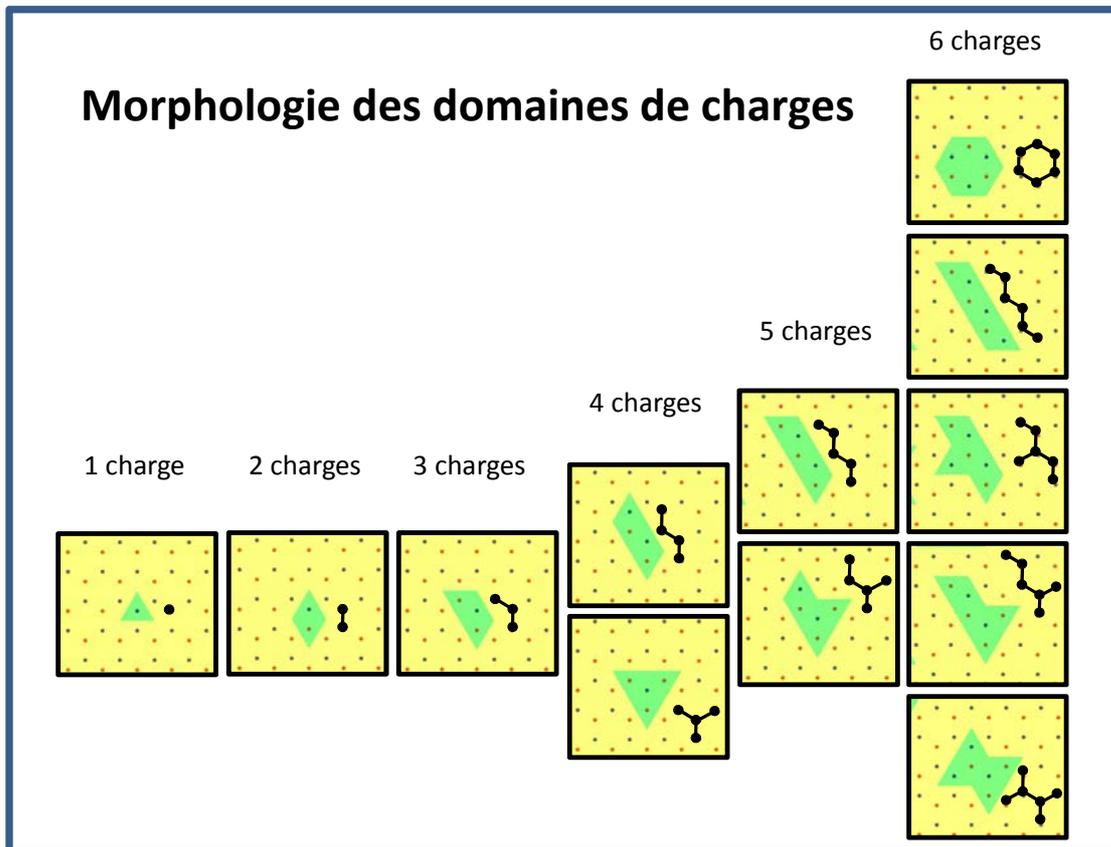


Figure V.10 Exemple de morphologies possibles des domaines en fonction du nombre de charges dans le domaine.

Sur la figure V.11, nous avons représenté le périmètre en fonction de la taille des domaines pour les deux désaimantations. Cette figure nous permet ainsi d'avoir l'information sur la morphologie des différents domaines présents dans nos configurations. Pour avoir rapidement cette information, nous avons représenté une droite correspondant à l'évolution du périmètre si les domaines étaient dendritiques. Nous avons également reporté une fonction représentant l'évolution du périmètre si les domaines étaient compacts. Ainsi on observe que tous nos points sont compris entre ces deux courbes, mais également que la majorité de ceux-ci sont sur ou proches de la droite représentant les domaines dendritiques, et ce pour les deux désaimantations. Cette observation montre que nos domaines sont majoritairement dendritiques et ce, quelle que soit la désaimantation utilisée.

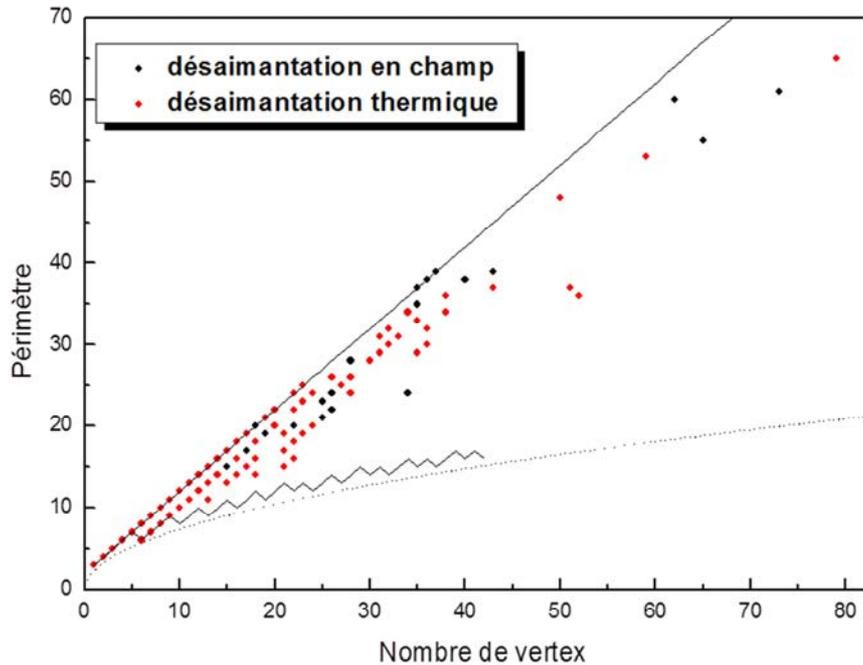


Figure V.11 *Périmètre en fonction du nombre de vertex dans un domaine.*

Passons maintenant à une analyse plus fine de l'occurrence de la taille des domaines, indépendamment du corrélateur de charges pour les deux désaimantations. La figure V.12 représente deux histogrammes donnant la répartition des domaines selon leurs tailles, l'un correspondant à toutes les tailles de domaines que l'on peut obtenir à partir d'un réseau de 342 éléments, et l'autre correspondant aux domaines possédant au maximum 10 vertex. On observe tout d'abord sur l'histogramme du haut que la probabilité de trouver des petits domaines (1-10 vertex) est beaucoup plus importante que d'observer des grands domaines. De plus, on voit apparaître une différence entre la désaimantation thermique et en champ puisque la désaimantation thermique aboutie à moins de petits domaines que la désaimantation en champ, et que cette différence se retrouve, de par le fait, dans les grands domaines.

On voit donc en observant la répartition en taille globale des domaines que la désaimantation thermique semble se différencier du modèle SI contrairement à la désaimantation en champ. En se concentrant maintenant sur les petits domaines, on observe que leur distribution n'est pas la même pour les deux désaimantations. En effet la désaimantation en champ présente une décroissance monotone de la répartition des domaines en fonction de leurs tailles, tout comme nos simulations. En revanche la désaimantation thermique, bien que montrant une décroissance de la répartition des

domaines lorsque l'on augmente leurs tailles, fait apparaître une diminution du nombre de domaines impairs.

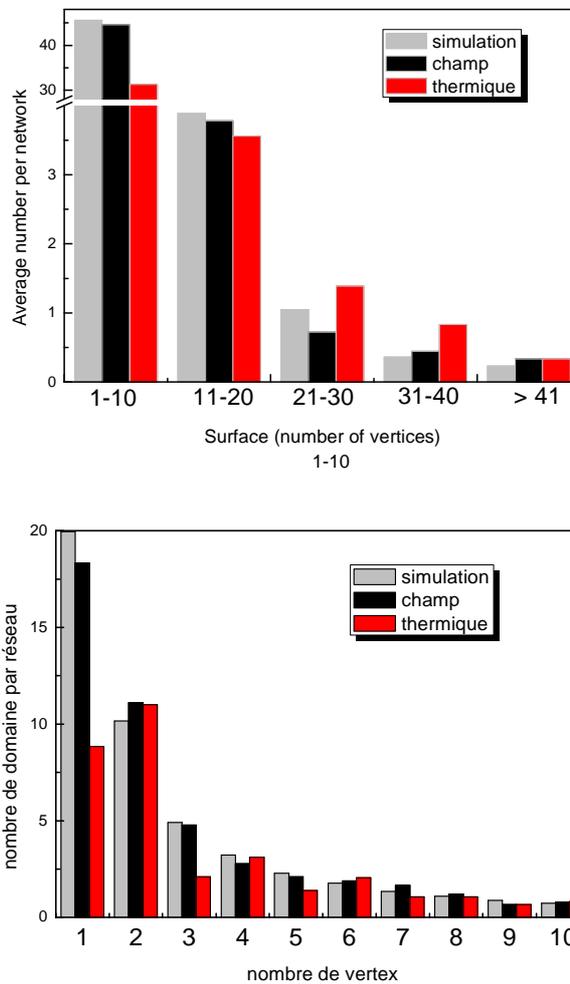


Figure V.12 Répartition de la taille des domaines pour les désaimantations thermique et en champ tournant alternatif ainsi que pour le modèle SI.

A l'aide de simulations Monte Carlo à l'équilibre, et cela indépendamment de la température de la simulation, nous n'avons pas pu reproduire ce comportement. Ainsi, comme cela se produit souvent lorsque des parois d'antiphase persistent, un processus hors équilibre devra certainement être invoqué pour reproduire les résultats expérimentaux.

2.3. L'analyse des coefficients de spin et des chiralités

Regardons maintenant si cet ordre de charges provient d'un ordre de spins sous-jacent. Pour cela, les coefficients de corrélation de spin ont été calculés, les chiralités de boucles mais également les corrélations possibles entre les boucles et les domaines d'antiphase.

2.3.1. Coefficients de corrélations de spin

Sur la figure V.13, on constate une évolution importante des coefficients de corrélation de spin en fonction de la désaimantation. Encore une fois, la désaimantation en champ est proche de ce qui est observé dans le modèle SI ou DSI haute température.

Dans le cas de la désaimantation en température, plusieurs constats remarquables peuvent être faits :

- Diminution importante de $C\alpha\gamma$ et $C\alpha\delta$, compatible avec le modèle DSI
- Diminution importante et changement de signe de $C\alpha\nu$. Ce comportement n'a jamais été observé auparavant, dans aucun système étudié.
- Valeurs importantes pour des corrélateurs de spin à "grande distance"

Jusqu'à présent, nous avons toujours comparé nos résultats au modèle SI. Dans la figure V.14, nous comparons les résultats de la désaimantation thermique et le résultat d'une réalisation du fondamental du système, le cristal de boucles.

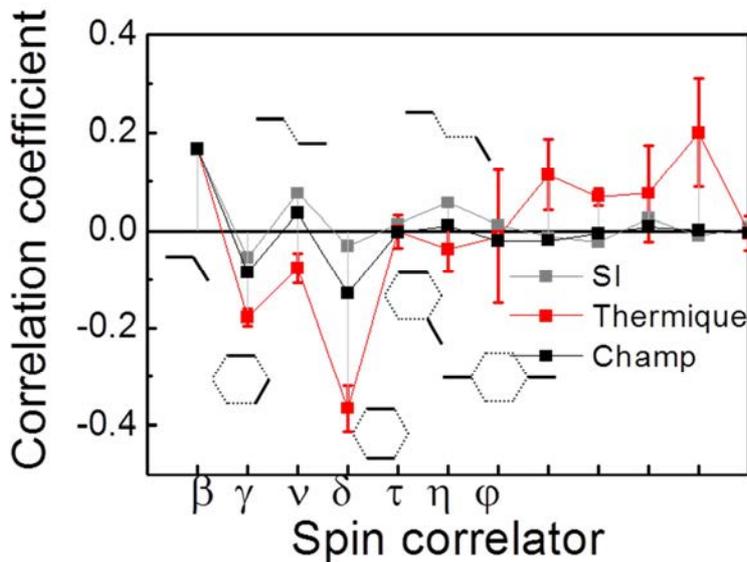


Figure V.13 Coefficients de corrélation pour les désaimantations thermique et en champ tournant alternatif. Comparaison avec le modèle SI.

Nous voyons ici apparaître dans la caractéristique du fondamental une forte diminution des coefficients $C\alpha\gamma$ et $C\alpha\delta$ mais également et surtout le changement de signe $C\alpha\nu$. Ce changement de signe peut être associé à une formation partielle du cristal de boucles. En ce

qui concerne les corrélateurs de spin à "grande distance", aucune similitude à l'état fondamental ne semble transparaître. Alors que sur la désaimantation thermique, les coefficients longue distance sont tous positifs, ils changent de signe pour le fondamental.

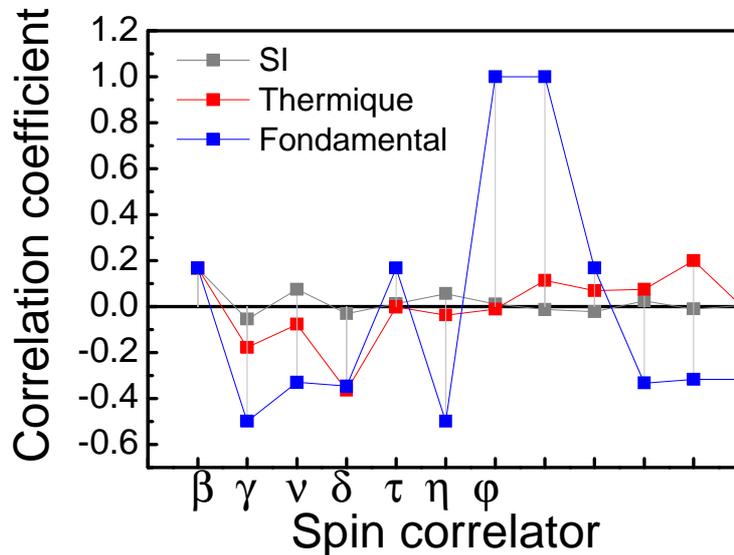


Figure V.14 Coefficients de corrélation pour la désaimantation thermique. Comparaison avec le modèle SI. Comparaison avec une réalisation du fondamental, cristal de boucles.

2.3.2. Chiralités

Nous reportons dans ce paragraphe, l'étude des chiralités des boucles pour les deux désaimantations.

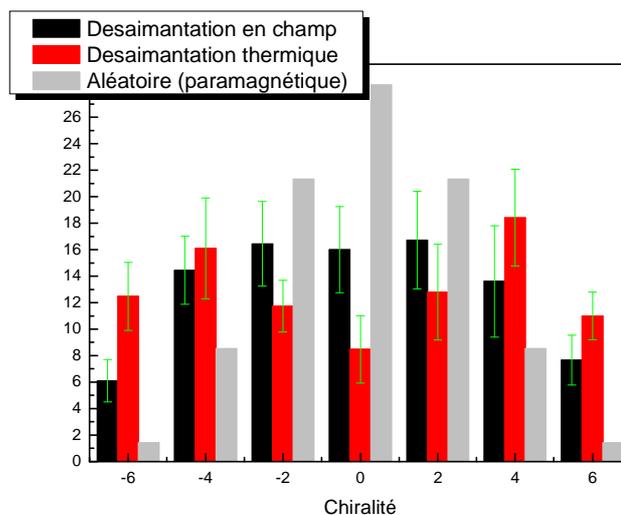


Figure V.15 Distribution des chiralités pour les désaimantations thermique et en champ tournant alternatif ainsi que pour des configurations tirées au hasard (mais sans état interdit).

Encore une fois, il semble que la répartition des chiralités de la désaimantation en champ tournant AC soit proche de celle attendue dans le modèle SI. Dans la désaimantation thermique, la chiralité 0 est réduite au profit de la chiralité +/- 4. La chiralité +/- 6 est significativement augmentée. C'est cette dernière, accompagnée d'une ré augmentation de la chiralité 0, qui est le signe de l'apparition du cristal de boucles de l'état fondamental. Nous nous trouvons ainsi dans une situation intermédiaire déjà révélée par l'étude des coefficients de corrélation de spin.

2.3.3. Corrélations cristal de boucles et cristal de charges

Pour finir, nous avons regardé si l'ordre de charges provient d'un ordre de spins sous-jacent ou si les deux réseaux ordonnés ne sont pas corrélés. Pour cela, les coefficients de corrélation de spin ont été calculés dans les domaines, en regardant leur variation en fonction de la taille des domaines (figure V.16).

On constate tout d'abord de manière remarquable qu'il y a peu d'évolution des coefficients en fonction de la taille des domaines (à part pour les coefficients très longue portée) mais que ces coefficients sont différents de ceux calculés sur tout le réseau. Dans les domaines, ils paraissent plus proches du fondamental et donc du cristal de boucles.

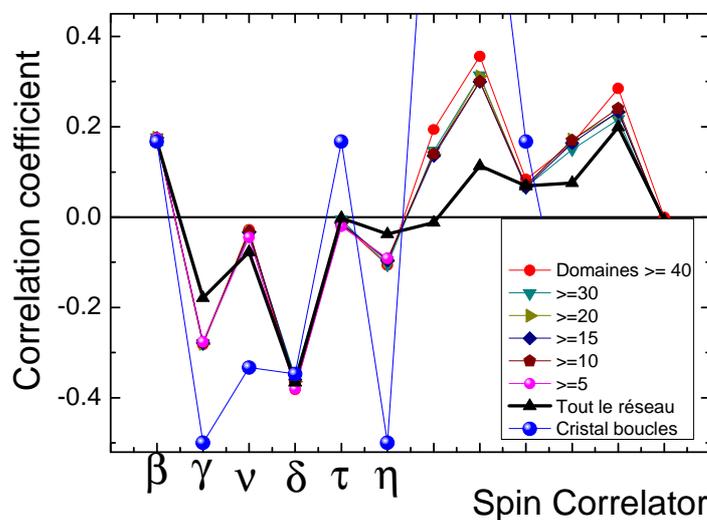


Figure V.16 Coefficients de corrélation en fonction de la taille des domaines pour la désaimantation thermique.

Ainsi, il semble d'une part qu'il y a corrélation entre l'ordre de charges et l'ordre de boucles et d'autre part que la contribution des parois d'antiphase ramène le système vers un comportement SI. Ceci est compréhensible de part la distribution de charges dans une paroi.

3. Bilan

Dans cette étude, nous avons utilisé un matériau original, un alliage ferrimagnétique CoGd qui possède une température de Curie telle que le matériau lui-même peut être désaimanté sans altérer ni le matériau, ni les nanostructures. Avec sa température de Curie de 200°C, il a été possible de désaimanter les nanostructures en passant la température de Curie et en ramenant la température de l'échantillon à température ambiante et de comparer cette désaimantation à celle obtenue en champ tournant.

L'ensemble des analyses converge vers un constat que les caractéristiques de la désaimantation sous champ peuvent être comprises à l'aide du modèle Spin Ice ou Dipolar Spin Ice « haute température » alors que les caractéristiques de la désaimantation en température sont plus proches des prédictions du modèle Spin Ice Dipolaire « basse température ». Etant donné que les deux désaimantations ont été faites sur le même réseau, ce qui est une force de cette étude, nous montrons que ce réseau est bien décrit par les prédictions du modèle Spin Ice Dipolaire mais que les deux désaimantations ne ramènent pas le réseau à la même température effective.

De plus, dans une première analyse, nous montrons que dans la désaimantation thermique la décroissance de la répartition des domaines lorsque l'on augmente leurs tailles fait apparaître une diminution du nombre de domaines impairs. Ce fait n'a pas été reproduit jusqu'à présent à l'aide du modèle Spin Ice Dipolaire dans les simulations Monte Carlo thermalisées. **Un processus hors équilibre devra certainement être invoqué pour reproduire les résultats expérimentaux.**

Le processus devra reproduire les mesures expérimentales à savoir

1. Diminution importante de $C\alpha\gamma$ et $C\alpha\delta$.
2. Coefficient $C\alpha\nu$ négatif, jamais observé jusqu'à présent.
3. Un corrélateur de charges moyen mesuré de -0.22 (avec une déviation standard de 0.06).
4. Occurrence des domaines de taille impaire inférieure à l'occurrence des domaines de taille paire.
5. Un maximum de chiralité à 4 et un minimum à 0.

Et tenir compte des considérations suivantes

6. Le réseau est bien décrit par le Spin Ice dipolaire : le champ dipolaire doit jouer un rôle dans le mécanisme particulier de première aimantation.
7. Le réseau est connecté : on peut penser à un processus d'aimantation de proche en proche.
8. Les domaines de charges sont allongés. Ceci pourrait être la conséquence d'un régime de nucléation multiple avant propagation. A cause de la fluctuation de la

concentration de Gd, on peut avoir sur la zone du réseau une distribution de Tc et donc des points de nucléation multiples.

9. Réseau isotrope du point de vue structural, c'est la désaimantation en champ tournant alternatif qui nous le dit. A priori pas de direction privilégiée de l'aimantation

10. Il y a une dissymétrie dans les vertex.

A l'heure actuelle, les modèles sont en cours d'élaboration et de test.

Bibliographie chapitre désaimantation thermique

[ROU11] N. Rougemaille, F. Montaigne, B. Canals, A. Duluard, D. Lacour, M. Hehn, R. Belkhou, O. Fruchart, S. El Moussaoui, A. Bendounan, and F. Maccherozzi, Artificial Kagome Arrays of Nanomagnets: A Frozen Dipolar Spin Ice, *Phys Rev. Lett.* 106, 057209 (2011)

[WAN07] R. F. Wang, J. Li, W. McConville, C. Nisoli, and X. Ke J. W. Freeland, V. Rose, M. Grimsditch, P. Lammert, V. H. Crespi, and P. Schiffer, Demagnetization protocols for frustrated interacting nanomagnet arrays, *JOURNAL OF APPLIED PHYSICS* 101, 09J104 (2007)

[KE08] X. Ke, J. Li, C. Nisoli, Paul E. Lammert, W. McConville, R. F. Wang, V. H. Crespi, and P. Schiffer, Energy Minimization and ac Demagnetization in a Nanomagnet Array, *PRL* 101, 037205 (2008)
PHYSICAL REVIEW LETTERS

[FAR13a] A. Farhan, P. M. Derlet, A. Kleibert, A. Balan, R. V. Chopdekar, M. Wyss, J. Perron¹, A. Scholl, F. Nolting, and L. J. Heyderman, Direct Observation of Thermal Relaxation in Artificial Spin Ice, *Phys. Rev. Lett.* 111, 057204 (2013)

[FAR13b] A. Farhan, P. M. Derlet, A. Kleibert, A. Balan, R. V. Chopdekar, M. Wyss, F. Nolting, L. J. Heyderman and L. Anghinolfi, Exploring hyper-cubic energy landscapes in thermally active finite artificial spin-ice systems, *Nature Physics* 9, 375-382 (2013)

[ARN12] U. B. Arnalds, A. Farhan, R. V. Chopdekar, V. Kapaklis, A. Balan, E. Th. Papaioannou, M. Ahlberg, F. Nolting, L. J. Heyderman, and B. Hjörvarsson, Thermalized ground state of artificial kagome spin ice building blocks, *Appl. Phys. Lett.* 101, 112404 (2012)

[MOR11] J. P. Morgan, A. Stein, S. Langridge and C. H. Marrows, Thermal ground-state ordering and elementary excitations in artificial magnetic square ice, *Nat. Phys.* 7, 75 (2011)

[MAR13] C. Marrows, *Nature Physics*, News and views, 5 May 2013

[MOE09] G. Moeller, R. Moessner, *Phys. Rev. B* 80, 140409 (2009)

[CHE11] G.W. Chern, O. Mellado, O. Tchernyshyov, *Phys. Rev. Lett.* 106, 207202 (2011)

Chapitre VI. Conclusion et perspectives

I- Conclusions

Dans le cadre de ce travail de thèse, nous avons étudié les propriétés de réseaux magnétiques lithographiés type kagomé réalisés par lithographie électronique, dont les éléments de la maille mesurent quelques centaines de nanomètres. À l'aide de la visualisation des configurations par diverses techniques d'imagerie magnétique, la caractérisation magnétique de ces réseaux après désaimantation (sous champ ou en température) nous a permis d'étudier les corrélations entre les désaimantations et de dresser une statistique de l'énergie des réseaux expérimentaux. Le renversement de l'aimantation lors de la désaimantation a également été étudié. Ainsi, ce travail de thèse repose sur l'utilisation d'un vaste panel de techniques allant de la réalisation des nanostructures par la voie "top-down" (nanotechnologies), à l'imagerie magnétique des nanostructures par des moyens de laboratoire tels que la microscopie de force magnétique (AFM-MFM), ou de centres de rayonnement synchrotron (X-PEEM). Cette étude est complétée par une modélisation micromagnétique des réseaux déterminante dans l'interprétation physique des résultats. Ainsi, le thème a été abordé à la fois du point de vue expérimental et des simulations.

Dans un premier temps, l'évaluation des coefficients de couplage dipolaire entre voisins et l'étude du retournement des nanostructures ont été faites par une approche micromagnétique. Les calculs ont été réalisés à l'aide du code OOMMF. La structure à calculer est discrétisée en cellules carrées d'aimantation homogène dont la forme est définie par un masque. OOMMF procède à une discrétisation de l'élément par un maillage présentant une symétrie d'ordre 4 tandis que la structure présente une symétrie d'ordre 3. Par conséquent un élément n'occupe pas le même volume qu'il soit orienté verticalement ou à 60° et ne possède donc pas la même énergie et la même distance entre voisins. Des calculs réalisés sur des couples de nano-aimants en interaction montrent une dépendance en énergie selon l'orientation du maillage par rapport aux éléments. Nous avons mis en place une méthode originale qui repose sur l'utilisation d'un masque en « niveaux de gris ». Dans OOMMF, le niveau de gris associé à la valeur du moment local est une pondération de la valeur de l'épaisseur de la cellule. Nous avons montré à l'aide de cette méthode que les effets de discrétisation sont grandement atténués. Cette méthode pourrait s'avérer être utile pour le traitement d'autres problèmes micromagnétiques.

A partir de cette pré-étude, nous avons étudié les configurations micromagnétiques de systèmes à 1, 3 et 5 brins. Nous avons mis en évidence de manière numérique que les éléments ne se comportent pas comme des spins d'Ising et que le renversement de leur aimantation implique la nucléation et la propagation de parois de domaines magnétiques. De plus, en champ non nul pour un système à 1 brin ou en champ magnétique nul pour un système à 3 ou 5 brins, la configuration d'aimantation n'est pas monodomaine mais peut s'apparenter à une configuration homogène avec deux domaines de fermeture aux deux extrémités. Nous avons montré l'implication de ces configurations de bout de brins sur le renversement de l'aimantation des réseaux. Nous montrons également expérimentalement que le renversement peut être très anisotrope et un lien avec les paramètres physiques du réseau a été faite. Enfin, nous montrons numériquement que lorsqu'une configuration interdite est stabilisée (un monopole émergeant), les domaines de fermeture ferment le flux laissant apparaître deux chiralités différentes qui possèdent des champs de disparition différents lorsque le champ est appliqué hors axe de la nanostructure. D'un point de vue expérimental, nous avons tenté de mettre en évidence l'existence de la chiralité des monopoles.

Enfin nous avons testé l'influence d'une désaimantation thermique sur les configurations d'un réseau kagomé. De manière conventionnelle, les réseaux sont désaimantés sous champ magnétique alternatif et tournant et il est raisonnable de penser que toutes histoires en champ ne permettent pas de sonder la totalité de l'espace des configurations et d'accéder aux configurations de plus basses énergies. En considérant que la température nécessaire pour un élément mésoscopique macrospin afin de surmonter la barrière d'énergie pour se renverser est prohibitive, des désaimantations purement thermiques n'ont été testées que récemment. De telles désaimantations thermiques et des configurations natives (*as grown*) ont été réalisées et observées sur des réseaux carrés. Dans cette étude, nous avons utilisé un matériau original, un alliage ferrimagnétique CoGd qui possède une température de Curie telle que le matériau lui-même peut être désaimanté sans altérer ni le matériau, ni les nanostructures. Avec sa température de Curie de 200°C, il a été possible de désaimanter les nanostructures en passant la température de Curie et en ramenant la température de l'échantillon à température ambiante. Nous avons montré que les configurations observées ne sont pas celles prévues par le modèle dipolaire de spin à l'équilibre ce qui montre l'importance du processus hors équilibre de la formation de domaines et de parois d'antiphase.

II- Perspectives

Depuis la proposition faite en 2006¹ d'utiliser des nanoaimants réalisés par une approche top down pour réaliser des structures de spin artificielles, l'étude de tels systèmes a attiré l'attention de la communauté du magnétisme. Les perspectives sont nombreuses, elles passent par l'extension des études menées dans le cadre de cette thèse jusqu'à l'étude de structures plus exotiques et notamment des structures aperiodiques. Nous donnons ici quelques pistes de recherche.

1. Désaimantation thermique

Très récemment, en dépit d'une grande barrière énergétique attendue pour le renversement d'aimantation des pseudo-spins (10^4 - 10^5 K), il a été montré qu'un traitement thermique serait prometteur pour atteindre les basses énergies. Deux approches ont montré des résultats intéressants :

L'état *superparamagnétique* : à haute température, l'aimantation des éléments du système n'est pas stable, elle fluctue et ces fluctuations mènent à l'énergie fondamentale du système.

L'état paramagnétique. Une approche différente consiste à croiser la température de Curie d'un matériau magnétique pour complètement désaimanter le système.

Nous avons étudié la désaimantation par le passage de la température de Curie pour le composé GdCo. Cette méthode nous a permis d'observer des formations de grands domaines d'ordre de charges. Cependant, une analyse détaillée des configurations magnétiques révèle des caractéristiques spécifiques théoriquement non attendues et clairement associées à une cinétique hors équilibre.

Le processus survenant au cours de ces traitements thermiques n'est pas pleinement compris il est donc important d'établir les conditions dans lesquelles une désaimantation thermique entraîne, ou pas, un "vrai" état d'équilibre. Le processus conduisant à la ré-aimantation du système pendant le refroidissement à partir de la T_c peut être très complexe et particulièrement l'apparition d'un état super paramagnétique n'est pas exclue.

Une extension du travail de thèse pourrait consister à reproduire ces mêmes expériences de désaimantation thermique en contrôlant soigneusement la vitesse de refroidissement de l'échantillon afin d'acquérir de nouvelles informations de la dynamique d'aimantation. Le contrôle de la température permettra aussi de procéder à des expériences où la T_c ne sera franchie et donc d'essayer d'effectuer une désaimantation dans l'état superparamagnétique et la comparer au processus lorsque la T_c est franchie.

¹ R. F. Wang, C. Nisoli, R. S. Freitas, J. Li, W. McConville, B. J. Cooley, M. S. Lund, N. Samarth, C. Leighton, V. H. Crespi & P. Schiffer, Vol 439|19 January 2006|doi:10.1038/nature04447

Avec cette expérience, il sera possible de montrer sur le même réseau, l'impact des 3 différents désaimantations : désaimantation sous champ AC, désaimantation thermique par comportement superparamagnétique et désaimantation thermique en apportant le matériel à sa température de Curie. En effet, jusqu'à maintenant, les trois méthodes ont été utilisées sur des matériaux et réseaux différents, par conséquent, leur comparaison s'avère difficile.

2. Aimantation perpendiculaire et universalité

Une autre piste de recherche consiste à regarder si les comportements observés sur des réseaux kagomé à aimantation planaire peuvent être observés sur des réseaux kagomé à aimantation perpendiculaire. Une première étude a déjà été publiée à ce sujet par S. Zhang et al (PRL 109, 087201 (2012)). Dans le cas de l'aimantation perpendiculaire, les interactions favorisent un couplage antiferromagnétique entre premiers voisins alors qu'il est ferromagnétique dans le cas de l'aimantation planaire. Il est reporté que les deux systèmes montrent des similarités qui tendent à démontrer une universalité des comportements dans les glaces de spin artificiels. D'autres matériaux doivent être étudiés, notamment ceux que l'on pourrait désaimanter par chauffage afin de comparer les comportements avec ceux des matériaux à aimantation planaire.

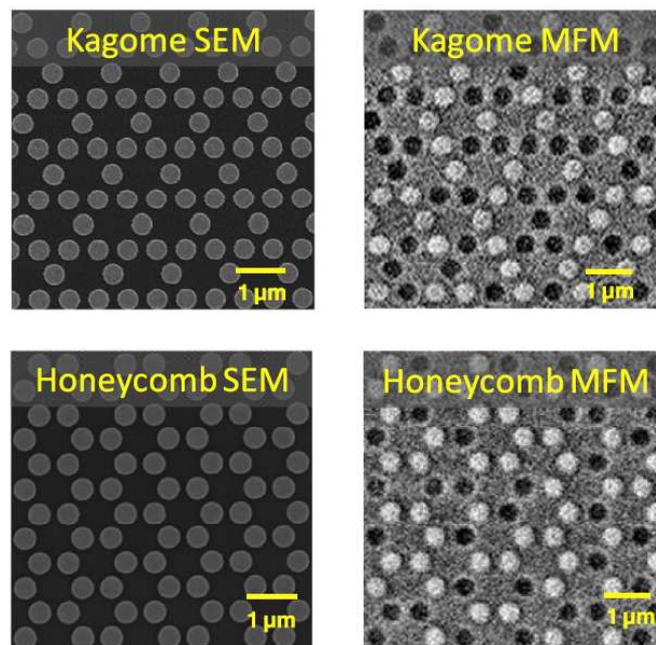


Figure VI.1 SEM and MFM images of perpendicular moment nanomagnet arrays in kagome and honeycomb geometries with 600 nm lattice spacing. Each island in MFM shows either black or white, indicating that it consists of a single magnetic domain with moment pointing either up or down.

A priori, ces structures à aimantation perpendiculaire ne possèdent pas de configuration de bout de brins. Les monopoles ne devraient pas être chiraux. Qu'en sera-t-il du comportement des chaînes de Dirac dans de tels systèmes ?

3. Structures apériodiques

De manière plus exotique, d'autres structures commencent à être étudiées par la communauté. Dans l'étude publiée par V. Bhat et al (PRL 111, 077201 (2013)), un film de permalloy a été gravé sous forme d'un quasicristal avec un motif Penrose. A l'heure actuelle, seules ses propriétés macroscopiques ont été observées, notamment son aimantation macroscopique et sa réponse à la résonance ferromagnétique sous champ magnétique. Il est montré que des anomalies apparaissent dans le cycle d'hystérésis à faible champ magnétique. Des simulations micromagnétiques ont été entreprises mais aucune observation par imagerie n'a été faite.

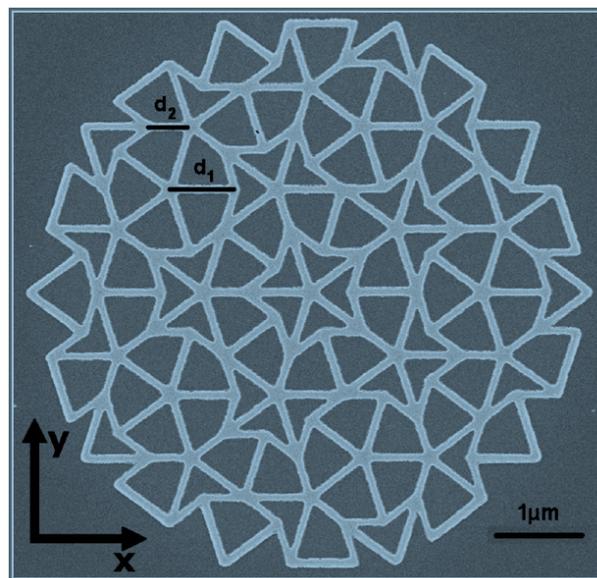


Figure VI.2 Image SEM d'un film de permalloy qui a été gravé sous forme d'un quasicristal avec un motif Penrose.

Il est clair que l'interprétation des configurations micromagnétiques deviendra de plus en plus complexe et qu'un rapprochement des communautés des technologues, micromagnéticiens et de théoriciens de la physique statistique et de la matière condensée est nécessaire.

Résumé

Cette thèse traite des propriétés des glaces de spins artificielles de type kagomé. Il s'agit de réseaux de nano-aimants magnétiques que nous avons fabriqués par dépôt d'un film mince, lithographie électronique et gravure ionique. Les éléments de la maille appelés brins possèdent des tailles typiques que 500 nm de long, 100 nm de large et 10nm d'épaisseur. L'intérêt de ces brins mésoscopiques repose sur la possibilité d'en déterminer la configuration magnétique par imagerie. Les caractérisations réalisées après désaimantation nous ont permis de mettre en évidence l'impact des différents types de désaimantation et de faire apparaître pour la première fois un polycristal de charges.

Pour approfondir notre compréhension de ce système, nous avons aussi réalisé une étude numérique. Nous avons montré que les brins ne se comportent pas comme des spins d'Ising. En effet, la configuration d'aimantation d'un brin peut s'apparenter à une configuration homogène avec un domaine de fermeture aux deux extrémités. Nous avons étudié l'impact de ces configurations de bout de brins dans le renversement de l'aimantation des réseaux. Nous montrons également expérimentalement que le renversement peut être très anisotrope. L'origine de cette anisotropie a été étudiée. Enfin, nous montrons numériquement que lorsqu'une configuration interdite est stabilisée, les domaines de fermeture ferment le flux laissant apparaître deux chiralités qui possèdent des champs de disparition différents lorsque le champ est appliqué hors axe de la nanostructure. D'un point de vue expérimental, nous avons tenté de mettre en évidence l'existence de cette chiralité des monopoles.

Mots clés

Micromagnétisme, frustration magnétique, monopoles, microscopie de force magnétique, cristal de charges, couplage dipolaire